



HAL
open science

Antenne optique tunnel pilotée électriquement : une source lumineuse large bande à l'échelle du nanomètre

Mickaël Buret

► To cite this version:

Mickaël Buret. Antenne optique tunnel pilotée électriquement : une source lumineuse large bande à l'échelle du nanomètre. Optique [physics.optics]. Université Bourgogne Franche-Comté, 2019. Français. NNT : 2019UBFCK084 . tel-02498023

HAL Id: tel-02498023

<https://theses.hal.science/tel-02498023v1>

Submitted on 4 Mar 2020

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.

**THESE DE DOCTORAT DE L'ETABLISSEMENT UNIVERSITE BOURGOGNE FRANCHE-COMTE
PREPAREE AU LABORATOIRE INTERDISCIPLINAIRE CARNOT DE BOURGOGNE**

Ecole doctorale n°553

Carnot Pasteur

Doctorat de Physique

Par

Buret Mickaël

**ANTENNE OPTIQUE TUNNEL PILOTEE ELECTRIQUEMENT : UNE SOURCE LUMINEUSE
LARGE BANDE A L'ECHELLE DU NANOMETRE**

Thèse présentée et soutenue à Dijon le 21/11/2019

Composition du Jury :

M. SAVIOT Lucien
M. DOUILLARD Ludovic
M. COTTANCIN Emmanuel
M. DUJARDIN Erik
M. SAUVAN Christophe
M. BOUHELIER Alexandre

Directeur de Recherche Univ. Bourgogne Dijon
Directeur de Recherche CEA Saclay
Professeur Univ. Claude Bernard Lyon 1
Directeur de Recherche CEMES / CNRS Toulouse
Chargé de Recherche Univ. Paris Saclay
Directeur de Recherche Univ. Bourgogne Dijon

Président
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Directeur de thèse

Titre : Antenne optique tunnel pilotée électriquement : une source lumineuse large bande à l'échelle du nanomètre

Mots clés : jonction tunnel - antenne - plasmonique - nano-optique

Résumé : Cette thèse a pour objectif la conception d'une source optique nanométrique, directive, et pilotée électriquement. Le dispositif repose sur l'intégration d'une jonction tunnel émettrice en tant que point d'alimentation d'une antenne optique métallique. L'intégration de ce nouveau type de composant a nécessité une étude approfondie du mécanisme d'émission. Les travaux menés à l'aide de mesures optiques et électriques démontrent que le processus de conversion électron-photon peut être décrit par la désexcitation radiative d'une population électronique portée à haute température par le passage à travers une barrière de potentiel. Le composant développé est un dispositif d'interfaçage entre une couche de contrôle électronique et une émission électromagnétique large bande. Nous avons complété nos travaux par une étude des propriétés de modulation du signal. Le temps de vie des électrons chauds étant très court (ps), la source nanométrique ainsi développée devrait permettre des taux de modulation nettement supérieurs aux technologies s'appuyant sur les semi-conducteurs.

Title : Electron-fed Optical Antenna

Keywords : tunnel junction - antenna - plasmonic - nano-optics

Abstract : Nanoscale electronics and photonics are among the most promising research areas providing functional nanocomponents for data transfer and signal processing. By adopting metal-based optical antennas as a disruptive technological vehicle, we demonstrate that an optical antenna coupled to a tunnel junction can be interfaced to create an electronically driven self-emitting unit. This nanoscale plasmonic transmitter operates by injecting electrons in a contacted tunneling antenna feed gap. Under certain operating conditions, we show that the device radiates a broadband light spectrum which can be related to a thermal like spectrum. We propose a model based upon the spontaneous emission of hot electrons that correctly reproduces the experimental findings. The electron-fed optical antennas described here are critical devices for interfacing electrons and photons, enabling thus the development of optical transceivers for on-chip broadcasting of information at the nanoscale. Based on the relaxation of hot carriers with life-times (ps) shorter than semiconductors, this technology could be a new paradigm for high frequency modulation.

Remerciements

Ce travail est le fruit du doctorat que j'ai effectué au Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne au sein de l'équipe OSNC. Je remercie sincèrement toutes les personnes que j'ai côtoyées, ainsi que celles avec qui j'ai collaboré. Ces années ont été plus que formatrices pour moi, et j'en garderai un très agréable souvenir.

La première personne que j'aimerais remercier est mon directeur de thèse Alexandre Bouhelier, dont l'infinie patience reste une source d'inspiration pour moi. Je ne le remercierai jamais assez de m'avoir ouvert une superbe opportunité en m'acceptant au sein de son projet SWIFT. J'ai particulièrement apprécié ses méthodes de travail, sa disponibilité malgré ses nombreuses responsabilités, et sa façon de gérer l'équipe participant au projet. Même si j'ai parfois eu l'impression d'être seul face à certains problèmes, je comprends aujourd'hui que ces moments ont été très bénéfiques pour moi. Tu m'as ainsi permis de sortir de ma zone de confort, tout en me poussant à développer de plus en plus d'autonomie. Je pense qu'Alexandre a été plus qu'un directeur de thèse pour moi. Son humanité et sa personnalité (que j'apprécie beaucoup) m'ont aussi aidé dans mon parcours de vie. Merci à toi Alex pour m'avoir accepté dans cette formidable aventure.

Je remercie Alain Dereux, le directeur du laboratoire qui m'a accueilli, ainsi que le Centre National de la Recherche Scientifique pour le financement de mon doctorat.

Je tiens à remercier sincèrement Ludovic Douillard et Emmanuel Cottancin qui ont acceptés la tâche chronophage de rapporter mon manuscrit, ainsi que Erik Dujardin, Christophe Sauvan et Lucien Saviot pour m'avoir fait l'honneur de faire partie de mon jury de soutenance de doctorat.

C'est avec plein de gratitude que je souhaiterais remercier Alexander Uskov et Igor Smetanin du Lebedev Physical Institute. Les modèles théoriques qu'ils ont développés pour nous et les discussions scientifiques que nous avons eues m'ont beaucoup nourri. Je garde un souvenir très agréable de leur accueil à Moscou. Un grand merci aussi à Gérard Colas-Des-Francis, Olivier Demichel, Benoît Cluzel, Jean-Claude Weeber et Sviatlana Viarbitskaya pour les échanges que nous avons eus. Toute la partie fabrication des échantillons de ma thèse n'aurait pu être menée à bien sans les conseils et la formation de Laurent Markey et Juan Arocas, sans oublier Brice Gourier de l'atelier mécanique.

Il me serait impossible d'oublier Marie-Maxime Gourier, ma « collègue de cellule » d'après ses propres termes. La proximité et la complémentarité de nos sujets de recherche ont donné lieu à de nombreuses discussions enrichissantes, ainsi qu'un

soutien mutuel, qui fut indispensable pour moi dans les moments difficiles. Sa persévérance, son courage et sa bonne humeur au quotidien ont été de vraies sources d'inspiration, et c'est avec plaisir que je retravaillerai avec elle si j'avais à refaire ce choix. Je n'oublierai pas non plus les longues discussions passionnées et le grand soutien que m'a apporté Jean-Emmanuel Clément. J'ai particulièrement apprécié ton ouverture d'esprit et ta soif de comprendre tout ce qui nous entoure. Merci aussi à Reinaldo, Andrea, Christian, Nicolas, Arindam, Adrian et Thibault en tant que collègue, avec une mention particulière pour Reinaldo qui m'a supporté durant son stage de Master.

Enfin, je souhaiterais remercier ma famille, mes amis et mes proches, qui m'ont toujours soutenu dans cette longue aventure. Merci à Margarida, pour m'avoir apporté le courage et le soutien dont j'avais besoin durant la longue phase de rédaction.

Table des matières

Résumé	iii
Remerciements	v
1 Introduction	1
2 Fabrication d'antennes optiques tunnels planaires par électromigration	7
2.1 Protocole de fabrication	7
2.1.1 Première étape : lithographie électronique	9
2.1.2 Deuxième étape : photolithographie ultraviolette	12
2.2 Fabrication des jonctions tunnels planaires	14
2.2.1 Électromigration non contrôlée	16
2.2.2 Mesure de la conductance dynamique	19
2.2.3 Électromigration contrôlée	21
2.2.4 Évolution de la conductance du nanofil durant la mise sous tension	25
2.2.5 Topologie des nanofils et localisation de la rupture	27
2.2.6 Évolution de la morphologie du nanofil durant l'électromigra- tion	29
2.2.7 Topologie des jonctions	33
2.2.8 Stabilité des jonctions dans le temps	33
2.2.9 Transports diffusif et balistique durant l'électromigration	36
2.3 Propriétés électroniques des jonctions	37
2.3.1 Transport par effet tunnel	37
2.3.2 Caractéristiques courant/tension et instabilités	39
2.3.3 Mesure de la conductance des jonctions à partir des caractéris- tiques courant/tension	41
2.3.4 Modèle théorique du courant tunnel	44
2.3.5 Tension de transition et représentation de Fowler-Nordheim	48
3 Émission lumineuse générée par des antennes optiques tunnels	55
3.1 Partie optique du dispositif expérimental	55
3.2 Premières observations d'émissions lumineuses	58
3.3 Spectres lumineux : anomalie aux hautes énergies	60
3.3.1 Violation de la limite quantique	63
3.4 Modèle à deux températures de la désexcitation radiative des électrons	65

3.4.1	Relation entre spectre et puissance dissipée : Loi de Planck . . .	71
3.5	Détermination de α à partir de Chen <i>et al.</i>	78
3.6	Résonances plasmoniques	81
3.7	Polarisation de l'émission	83
3.8	Directivité	85
3.9	Rendement quantique d'émission	89
4	Émission lumineuse en régime balistique	93
4.1	Mesure de l'émission lumineuse en fonction de la conductance	94
5	Excitations électrique radio-fréquence et pulsée	113
5.1	Excitation sinusoïdale radio-fréquence	114
5.2	Excitation pulsée	121
5.2.1	Variation de l'amplitude	123
5.2.2	Variation de la largeur temporelle	126
5.3	Limite de modulation	129
6	Conclusion et perspectives	133
	Bibliographie	145

À Margarida, Sophie, et tout ceux que j'aime...

Chapitre 1

Introduction

Les nanotechnologies représentent un domaine de recherche très fertile depuis quelques décennies. Initialement pressentie par R. Feynman lors de son discours à la Société américaine de physique en 1959 [1], l'échelle du nanomètre a permis de repousser les frontières de nos connaissances, pour ouvrir la porte à de nouvelles physiques (physique mésoscopique, physique quantique, ...). Le développement de techniques de fabrication de plus en plus précises et sophistiquées donne aujourd'hui la possibilité de concevoir des structures dont les propriétés et l'encombrement dépassent les prédictions établies auparavant [1]. Ces travaux sont motivés par les besoins grandissant dans les secteurs du traitement de données et de la communication, mais aussi dans le domaine de la santé et de l'environnement, et c'est pourquoi la transmission d'information fait aujourd'hui partie des champs de recherche les plus sollicités [2, 3]. La croissance exponentielle du nombre de communications et d'informations à traiter poussent l'émergence de nouvelles technologies, miniaturisées, dont la rapidité et l'efficacité ne cessent de croître.

Les limitations intrinsèques des conducteurs métalliques utilisés dans les communications ont poussé à développer dès la fin des années 80 le transfert optique d'information, avec l'arrivée massive de la fibre optique. Vers des dimensions de plus en plus restreintes, l'intégration de ces technologies s'est ensuite dirigée jusqu'au cœur même des puces électroniques [4, 5]. Les fibres optiques, de dimensions trop importantes pour une intégration sur puce, ont donné naissance à de nouveaux dispositifs tels que la photonique sur silicium. Ce champ de recherche est aujourd'hui très prometteur [6, 7] mais des problèmes comme les contributions thermiques, la taille du dispositif, la consommation d'énergie ou encore les diaphonies optiques et électroniques limitent aujourd'hui son implantation au sein des puces, bien que des progrès conséquents aient été récemment réalisés [8]. Dans le même contexte, une autre technologie alternative fait son apparition : la plasmonique. Basée sur la propagation de plasmons polaritons de surface sur un guide métallique, cette technologie a permis d'atteindre des encombrements plus restreints en offrant la possibilité de transporter à la fois sur la même structure les informations optiques et électriques [9-11]. Les principales limites de ces technologies résident souvent dans la nécessité d'une excitation optique extérieure comme le laser. En raison de pertes trop

importantes lors de la propagation, ces technologies requièrent aussi parfois d'autres éléments pour relayer l'information sur des distances millimétriques, comme par exemple les antennes optiques.

Les antennes optiques ont d'abord été utilisées pour leur aptitude à exalter les interactions lumière-matière, de part leur capacité à confiner un champ électromagnétique dans un volume restreint [12-16]. Ces antennes se sont largement inspirées de leurs homologues opérant aux fréquences radio et micrométriques, malgré quelques différences dans la physique sous-jacente. Alors que le champ électromagnétique d'une antenne radio-fréquence est généré électriquement par un courant de conduction, c'est par un courant de déplacement qu'une antenne optique opère. La géométrie et la nature des matériaux utilisés permettent d'influer sur les propriétés de résonances et de directionnalité des antennes optiques [16]. Elles diffèrent aussi de leurs consœurs macroscopiques de part leur mode d'utilisation. Alors que les antennes radio-fréquences sont à la fois utilisées pour générer un champ électromagnétique (à partir d'un courant de conduction oscillant) et le recevoir, les antennes optiques sont quant à elle utilisées pour confiner un champ électromagnétique incident (oscillation localisée de porteurs de charges).

Cette thèse s'intègre au sein du projet SWIFT (Surface Plasmon-Based Wifi for Nanoscale Optical Information Transport) visant à proposer une nouvelle solution aux enjeux technologiques actuels en terme de transmission de l'information. Ce projet s'appuie sur l'élaboration d'un nouveau composant multifonctionnel, de dimension nanométrique, capable de convertir au sein d'une antenne optique métallique les électrons en photons et vice-versa. Agissant à la fois en tant que source lumineuse et en tant que récepteur, ce composant offre ainsi une alternative à d'autres systèmes moins compacts et dont les dimensions sont limitées par la complexité des structures existantes. Les travaux présentés dans cette thèse s'orientent sur la partie émettrice du dispositif (voir partie gauche de la figure 1.1).

L'antenne optique développée dans cette étude, pilotée électriquement, présente la particularité d'agir en tant que dispositif émetteur d'ondes électromagnétiques aux fréquences optiques. Cette émission est réalisée à l'aide d'une jonction tunnel, insérée en tant que source au sein de l'antenne optique métallique. L'effet tunnel, permettant le passage d'un électron à travers une barrière de potentiel, ne peut être décrit que grâce à la mécanique quantique. Initialement mis en évidence par l'étude de la radioactivité à la fin du 19^e siècle [17], l'effet tunnel apparaît ensuite dans des expériences sur la conduction des gaz [18]. Le développement de la physique quantique au début de 21^e siècle permet alors de proposer un modèle mathématique de l'effet tunnel, orienté dans un premier temps pour l'étude de la radioactivité. Born et Gamow reconnaissent par la suite l'existence de l'effet tunnel dans d'autres domaines, ce qui permet le développement des technologies semi-conducteurs avec les

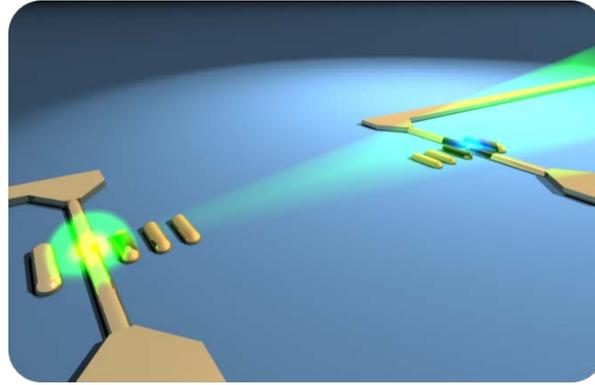


FIGURE 1.1 – Dessin montrant le concept de la communication optique sans fil développée par le projet SWIFT. Une antenne optiques émettrice pilotée électriquement est couplée avec une autre antenne de même nature, utilisée en tant qu'élément récepteur.

transistors et les diodes tunnels dès 1957 [17]. Le principe de l'effet tunnel est décrit par la figure 1.2 (a). Deux milieux conducteurs sont séparés par une distance d . L'électron, dont la fonction d'onde est décrite par $\Psi(x)$, a alors une probabilité non nulle de traverser la barrière de potentiel de hauteur Φ et de longueur d .

Le phénomène d'émission lumineuse par effet tunnel a pour la première fois été identifié expérimentalement par Lambe et McCarthy à l'aide d'empilements verticaux métal-isolant-métal [19]. Il avait cependant été notifié quelques années plus tôt par Hickmott [20]. La première interprétation théorique de l'émission sur les structures d'empilements verticaux fut formulée par Davis, qui s'appuya sur un processus d'émission similaire aux pertes d'énergie d'un faisceau d'électrons [21]. Le terme source est assimilé à une transition quantique de la densité de courant, décrivant un processus inélastique. Cette théorie a été initialement développée dans le domaine de la spectroscopie moléculaire [22-24]. D'autres auteurs, comme Scalapino *et al.*, proposent quant à eux une théorie s'appuyant sur un phénomène élastique. Ils considèrent que le terme source peut être modélisé par les fluctuations du courant tunnel, appelées aussi bruit de grenaille et provenant du transit tunnel des électrons à travers une barrière de potentiel. Dans ces deux interprétations, c'est la rugosité de surface qui permet la désexcitation radiative de plasmons de surface excités au sein de la jonction tunnel [25, 26]. Ces travaux [27, 28] permirent alors de concevoir de nouvelles structures aux géométries et propriétés émissives variées [29-31].

L'arrivée du microscope à effet tunnel dans les années 80 donne un second souffle à l'étude de ce phénomène, grâce à la possibilité de faire varier la longueur de la barrière tunnel. Les travaux de Davis [21] sur les sources de courant quantique (processus inélastique) inspirèrent alors de nouvelles formulations théoriques sur l'origine du phénomène d'émission lumineuse, nommé effet tunnel inélastique [32-34].

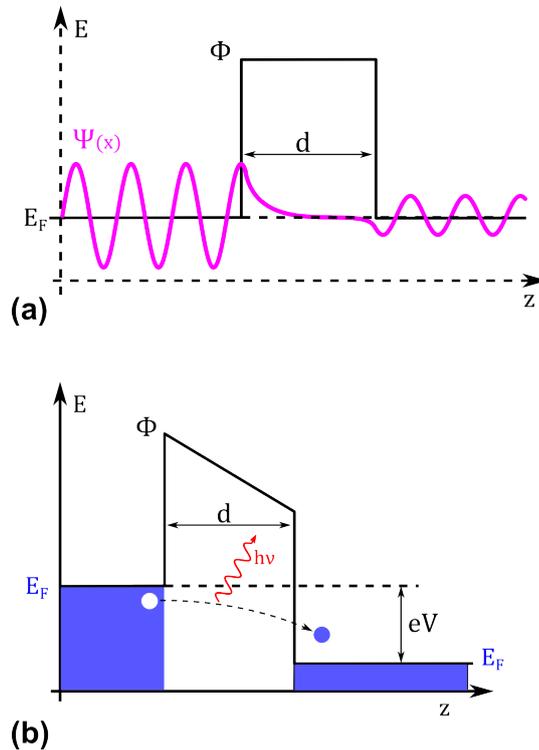


FIGURE 1.2 – (a) est une représentation schématique du passage d'un électron de fonction d'onde $\Psi(x)$ à travers une barrière de potentiel de longueur d et de hauteur Φ . L'électron est un électron de conduction au niveau de Fermi E_F . (b) est un schéma illustrant le principe d'émission lumineuse par effet tunnel inélastique décrit par Baratoff. La barrière de potentiel de hauteur Φ et de largeur d est polarisée par une tension d'énergie eV . La différence d'énergie entre les niveaux de Fermi de chaque côté de la barrière est alors égale à eV . L'électron est symbolisé par une sphère bleue. Une partie de son énergie est relaxée par l'émission d'un photon d'énergie $h\nu$ (flèche courbe en rouge).

Les théories basées sur le phénomène élastique inspirèrent moins de travaux à partir du microscope à effet tunnel [35]. Une des raisons principale est la démonstration effectuée par Persson et Baratoff [36]. Dans leur article, les auteurs présentèrent par le biais d'un formalisme emprunté au modèle de transfert hamiltonien [37, 38], une comparaison entre les probabilités d'émission issues d'un processus élastique avec celles issues d'un processus inélastique. Ils démontrèrent ainsi qu'un photon émis par interaction inélastique d'un électron avec la barrière de potentiel (voir figure 1.2 (b)), a une probabilité cent fois plus importante que la désexcitation radiative d'électrons ayant tunnelés de façon élastique à travers la barrière. D'autres observations expérimentales confirment de plus cette interprétation [39-42].

Contrairement au phénomène élastique, l'émission par processus inélastique est limitée par l'énergie maximale d'un électron traversant la barrière tunnel. La différence d'énergie des niveaux de Fermi de part et d'autre de la jonction impose donc une limite, appelée limite quantique, donnée par l'énergie associée à la tension de

polarisation eV . En dessous de cette limite quantique, il est difficile de séparer expérimentalement le phénomène d'émission par effet tunnel inélastique de celui par interaction élastique, car les deux autorisent l'émission dans cette gamme d'énergie. Nous verrons dans les chapitres suivants qu'un autre canal d'émission existe où la limite quantique qui contrôle la limite énergétique des photons n'est plus respectée.

Dans la plupart des travaux présentés précédemment, les jonctions tunnels ont été élaborées soit par la réalisation d'empilements verticaux (métal-isolant-métal) [20, 29-31, 41], soit par l'utilisation de la pointe d'un microscope à effet tunnel sur une surface [32-35, 39, 40]. L'encombrement de ces jonctions et les conditions expérimentales peuvent alors devenir contraignants. Un des enjeux expérimentaux de cette thèse s'appuie sur la réalisation d'un composant pouvant être intégré au sein d'autres structures existantes (puces, structures photoniques, etc). L'encombrement doit être minimisé afin d'être inséré dans le plus de structures possibles. Le développement d'une structure planaire de dimensions restreintes permet de répondre à cette problématique. La jonction tunnel réalisée doit être de l'ordre du nanomètre pour assurer le passage d'un courant par effet tunnel. Les techniques classiques de nanofabrication telles que la lithographie par faisceau d'électrons ou la gravure par faisceau d'ions n'ont pas la résolution nécessaire pour réaliser ce type d'interstices. La création de jonction tunnel par brisure mécanique est une autre solution, mais l'encombrement de ce type de structure limitent leur intégration [43]. Ces différentes contraintes nous ont ainsi orienté vers l'utilisation d'une technique de nanofabrication moins répandue : l'électromigration.

Les chapitres suivant décrivent les différentes étapes qui ont orientées cette thèse. Le chapitre 2 présente la fabrication des jonctions tunnels émettrices. Cette partie décrit dans un premier temps le protocole de fabrication de fils d'Or de dimensions nanométriques, qui sont ensuite électromigrés de façon contrôlée, pour mener à la création d'interstices de largeur sub-nanométrique. Les différentes étapes de l'électromigration y sont présentées, ainsi que l'impact de celles-ci sur la morphologie des nanofils. La connaissance des paramètres électriques des jonctions tunnels réalisées est importante pour le contrôle électrique de l'antenne optique tunnel. L'étude des propriétés conductrices de ces jonctions tunnels est présentée dans la seconde partie du chapitre. Cette étude est réalisée par le biais d'un système d'adressage et de mesure électrique. Les paramètres physiques de la jonction tunnel sont ensuite extraits et discutés à partir d'un modèle théorique du courant tunnel.

Une fois la création de jonction tunnel maîtrisée et leurs propriétés électriques connues, nous nous sommes intéressés aux propriétés optiques des jonctions. Le caractère émetteur des antennes optiques tunnels est démontré dans le chapitre 3. L'activité lumineuse des jonctions tunnels est étudiée en fonction de la tension électrique appliquée et du courant tunnel mesuré. Une étude approfondie est permise

grâce à la méthode de fabrication développée, permettant de réaliser des jonctions sur une gamme de conductance s'étendant du quantum de conductance G_0 à moins de $10^{-5} G_0$. La présence de photons émis au delà de la limite imposée par l'effet tunnel inélastique (eV) permet alors de proposer une interprétation alternative du processus d'émission, basée sur la relaxation radiative d'électrons chauds ayant tunnelés de façon élastique à travers la barrière de potentiel. L'antenne optique tunnel réalisée doit permettre d'orienter l'émission lumineuse dans l'espace. Le diagramme d'émission de l'antenne optique tunnel (composée de l'antenne optique couplée à la jonction tunnel émettrice), et la polarisation des photons émis, sont ensuite analysés dans la dernière partie du chapitre.

Une fois l'étude des propriétés optiques des jonctions réalisées, nous nous sommes interrogés sur l'existence d'une émission lumineuse similaire en régime de conduction balistique, c'est-à-dire durant les derniers instants de l'électromigration. Le chapitre 4 présente l'étude de l'activité lumineuse de la constriction du nanofil avant rupture. Cette étude en régime de conduction balistique est menée par l'utilisation d'un modèle théorique décrivant un système hors équilibre à deux températures. L'application de courant de l'ordre de quelques centaines de millivolts permet de sonder les effets non-linéaires du type de constriction étudiée, avec contre-intuitivement une décroissance exponentielle de l'émission lumineuse en fonction de la puissance électrique traversant la constriction. Une interprétation alternative, basée sur le bremsstrahlung des électrons chauds du système avec les parois de la constriction est développée.

Enfin, l'antenne optique tunnel réalisée doit être capable de convertir une information électrique en une information optique. Cette information est transportée dans le signal par le biais d'une modulation de l'amplitude de celui-ci. La capacité du système à moduler en fréquence le signal électrique et le signal optique définit alors le débit d'informations qui pourra être transporté par le système. Le chapitre 5 présente une étude sur les réponses des antennes optiques soumis à des excitations électriques radiofréquences. Le système est ensuite sondé par un signal électrique pulsé, dans le souci d'évaluer les limites de la rapidité du système à transmettre l'information. L'application d'un signal pulsé permet alors l'investigation de la dynamique de relaxation du système.

La conclusion permet de revenir sur les différents objectifs achevés durant cette thèse, mais aussi sur les possibilités et perspectives que proposent ce type de dispositif.

Chapitre 2

Fabrication d'antennes optiques tunnels planaires par électromigration

Ce chapitre, organisé en trois parties, est consacré à la description du procédé de fabrication des jonctions tunnels métalliques, ainsi qu'à la mesure de leurs propriétés électroniques. La première partie expose les différentes étapes de la fabrication des échantillons. La deuxième partie décrit le processus de formation des jonctions à partir de fils d'Or électromigrés. Enfin, la mesure des caractéristiques électriques des jonctions, et leur stabilité dans le temps sont étudiées dans une dernière partie.

2.1 Protocole de fabrication

Les jonctions tunnels planaires sont façonnées par électromigration de nanofils d'Or. Ce métal a été choisi pour plusieurs raisons. Tout d'abord, l'Or est un métal noble. Son caractère inaltérable face à l'oxydation simplifie l'étude, contrairement à d'autres métaux comme le Cu ou l'Ag qui s'oxydent en milieu ambiant. Ce métal bénéficie aussi de propriétés optiques et électroniques intéressantes. Sur une plage de longueurs d'onde s'étendant de quelques centaines de micromètres jusqu'aux alentours de 600 nm, l'Or possède une réflectivité supérieure à 90%. La limite supérieure est due aux transitions interbandes au sein de la structure électronique. Elles entraînent une absorption accrue pour les longueurs d'ondes inférieures à 600 nm, et donc assez énergétiques pour permettre des transitions entre les bandes d et s . Aux fréquences optiques, la partie réelle de sa permittivité diélectrique ϵ est négative, ce qui le rend aussi propice à l'excitation collective d'électrons appelée plasmon de surface.

Afin de minimiser la taille utile du dispositif, les jonctions tunnels sont réalisées à partir de fils d'Or de section nanométrique. Deux types de géométries différentes ont été envisagées afin de déterminer laquelle des deux étaient la plus favorable à la création de jonctions tunnels stables. Ces géométries sont décrites par la figure 2.1. Dans le but d'optimiser le nombre de nanofils sur un échantillon, 24 nanofils sont

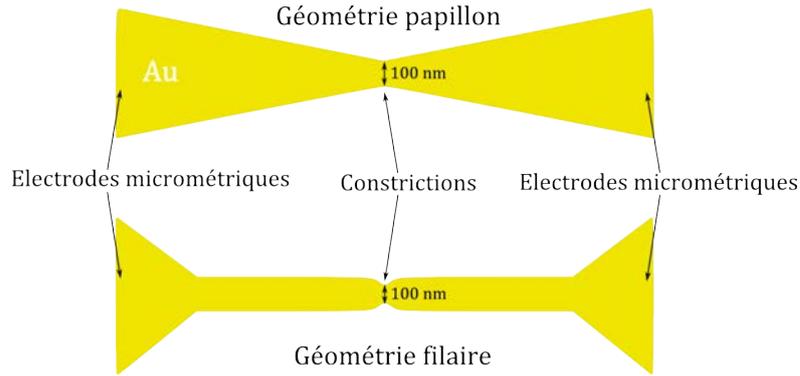


FIGURE 2.1 – Schéma représentant les 2 différents profils de nanofils fabriqués. La constriction, correspondant à la section la plus fine du nanofil ($100 \text{ nm} \times 50 \text{ nm}$), est localisée au centre. L'épaisseur du fil est homogène et mesure 50 nm . Des électrodes de taille micrométrique sont disposées de chaque côté des nanofils d' Au. La géométrie papillon permet d'obtenir une variation de la section conductrice du fil selon un gradient, croissant de chaque côté de la constriction. La géométrie filaire est un fil de section homogène, avec une constriction en son centre.

répartis autour d'une électrode de masse commune servant de source d'électrons. Chaque nanofil peut être adressé individuellement par une électrode drain qui lui est propre (figure 2.2 (b)).

La connexion aux bornes de ces nanofils est assurée de façon simple par des fils en cuivre soudés à l'étain. Pour pouvoir souder ces contacts électriques, les électrodes micrométriques des nanofils sont reliées à des pistes électriques de dimensions millimétriques (figure 2.2 (a)). Les nanofils et leurs pistes électriques sont déposés sur un substrat de verre transparent et carré, de 22 mm de côté et de $175 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Le substrat permet ainsi d'être installé sur le microscope optique décrit dans la partie 3.1.

Les figures 2.2 (a) et (b) impliquent des éléments métalliques dont les dimensions s'étendent de la centaine de nanomètres jusqu'au millimètre. La lithographie par faisceau d'électrons, disposant d'un point focal de taille inférieure à 20 nm , permet de réaliser les nanofils présentés dans la figure 2.1. Cette technique permet d'accéder à un niveau de précision de 10 nm , pour un champ d'écriture typique de $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$.

La fabrication des pistes électriques et des électrodes microscopiques, représentées en bleues dans les figures 2.2 (a) et (b) sur une zone étendue de $22 \text{ mm} \times 22 \text{ mm}$, ne nécessite pas une résolution inférieure au micromètre. La lithographie par faisceau d'électrons n'est pas adéquate en raison de la superficie à insoler. En revanche, la photolithographie ultraviolette est mieux adaptée. Grâce à cette technique, il est possible d'exposer simultanément une surface de plusieurs dizaines de cm^2 . En tenant compte des problèmes de diffraction, la résolution atteinte est de l'ordre du micromètre, en travaillant avec une longueur d'onde d'insolation de 400 nm .

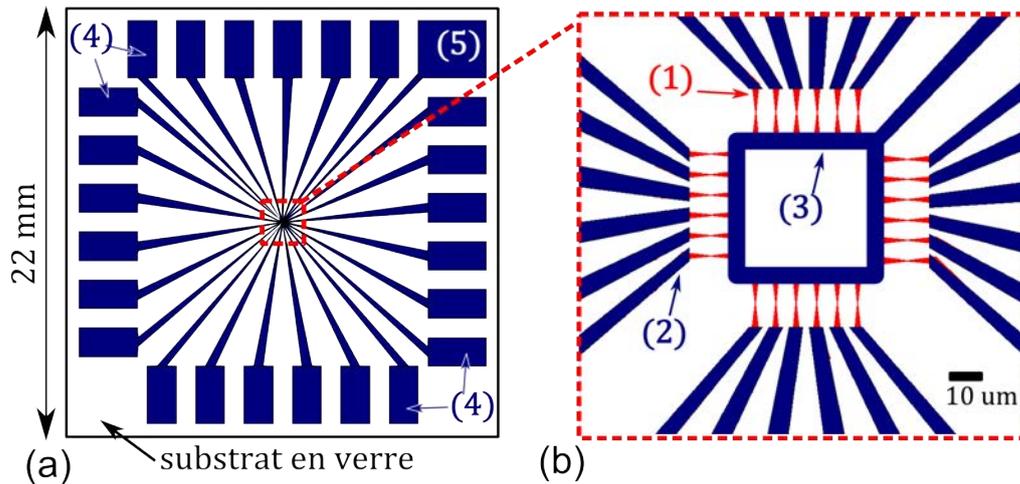


FIGURE 2.2 – Représentations schématiques des connexions électriques et de l’emplacement des nanofils sur le substrat de verre. (a) correspond à une vue générale de l’échantillon. Le carré rouge au centre de l’échantillon indique la zone représentée schématiquement par la figure (b). La masse centrale est connectée à la source des 24 nanofils. Ces derniers sont représentés en rouge et indexés par le repère (1). Les fils sont ici de géométrie papillon et ont une longueur totale de $15 \mu\text{m}$. Le drain de chaque nanofil est indépendant et lié individuellement à une électrode d’adressage (2), dont la fin de chaque piste électrique correspond à un des 24 index (4) de la figure (a). Dans cette figure, l’électrode de masse centrale bleue correspond à l’index (3). Sa piste électrique se prolonge jusqu’au repère (5) de la figure (a). Sur chaque bord de la lame de verre se trouvent 6 électrodes d’adressages repérées par l’index (4). Ces contacts électriques sont des pistes à souder liées au drain de chaque fil, représentant en tout 24 électrodes d’adressage. L’index (5) correspond à la piste à souder reliée à l’électrode centrale de masse commune.

Pour fabriquer un échantillon, il est donc nécessaire de réaliser deux étapes de lithographies. Les technologies employées et les étapes des procédés de fabrication sont décrites dans les deux sections suivantes.

2.1.1 Première étape : lithographie électronique

La lithographie par faisceau d’électrons consiste à dessiner un motif sur une résine électro-sensible, à l’aide d’électrons focalisés. Les parties de la résine exposées durant la lithographie subissent alors une modification locale à l’échelle moléculaire. Le motif insolé est révélé par un développement en solution. Seul les chaînes polymériques cassées par le faisceau d’électrons sont dissoutes à l’aide d’une solution de développement à attaque sélective.

Le polyméthacrylate de méthyle (PMMA) est une résine électro-sensible positive, qui est commercialisée avec différentes caractéristiques. Plus le poids moléculaire de cette résine est faible, plus sa sensibilité est élevée. La superposition de deux résines

PMMA de poids moléculaires différents (ici 50 K et 200 K) permet de contrôler le profil de développement de la résine. Le pied du profil de lithographie est élargi à l'aide d'une première couche de résine plus sensible que la couche supérieure. En effet, pour une même dose d'exposition, les volumes de résines insolées varient en fonction des sensibilités différentes des deux résines. Ce profil trapezoïdal présente l'avantage de supprimer les éventuelles résidus d'Au attachés aux parois et qui restent liés à la structure lithographiée après l'évaporation du métal et la révélation de l'échantillon (figure 2.3).

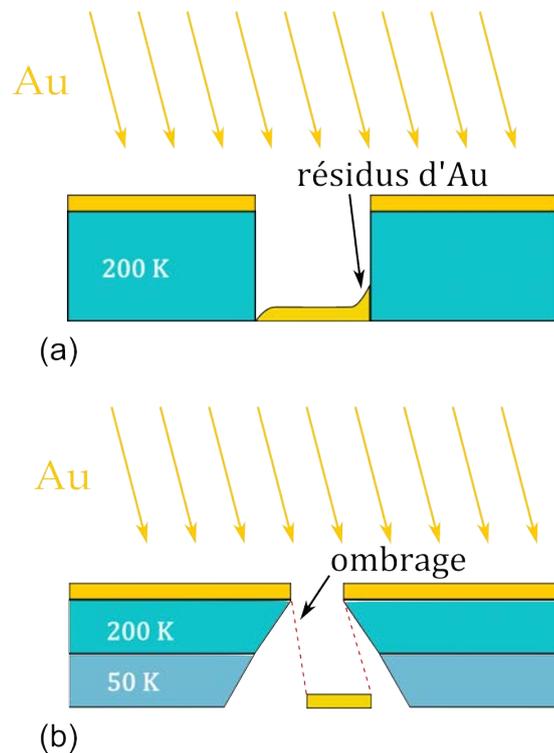


FIGURE 2.3 – (a) représente un profil de lithographie classique avec un seul type de résine. Avec un léger angle d'évaporation représenté par des flèches dorées, on remarque qu'un bourlet d'Au se forme sur un des bords du profil de lithographie. Ces résidus d'Au restent accrochés à la structure après révélation et détériorent la qualité de la lithographie. (b) représente un profil de lithographie de forme trapezoïdale avec une double couche de résine de poids moléculaires différents. Ce profil présente l'avantage d'accentuer l'ombrage du masque d'évaporation. Même si l'évaporation comporte un angle par rapport à la normale, il n'y a pas de bourlet d'Au déposé sur un des flancs du profil de lithographie.

Le protocole décrit par la figure 2.4 consiste à déposer par enduction sur une lame de verre, deux couches de PMMA successives¹. Le PMMA_{50K} constitue la première couche d'une épaisseur de 70 nm. L'ajout d'une couche de 130 nm de PMMA_{200K} permet d'augmenter, après insolation, la largeur du pied de lithographie en fond de gravure, favorisant ainsi le retrait de la résine à la fin du processus

1. 5000 t/min pendant 60s pour le PMMA 50K, et 4000 t/min pendant 60s pour le PMMA 200K. Une cuisson à 150 degrés Celsius est effectuée pendant 3 min après chaque étape de dépôt.

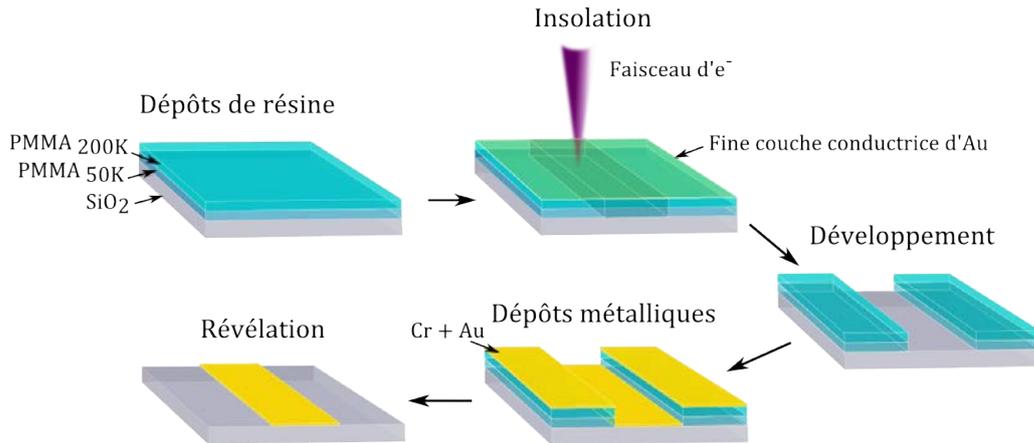


FIGURE 2.4 – Protocole de lithographie par faisceau d'électrons et dépôts métalliques. La première étape consiste à déposer par enduction sur une lame de verre deux couches successives de PMMA (respectivement de poids moléculaire 50K et 200K). L'échantillon est introduit dans le microscope à balayage électronique (MEB), après dépôt d'une couche conductrice d'Au de 5 nm. La résine est exposée suivant le motif rouge de la figure 2.5 (a). L'échantillon est ensuite plongé pendant 60 s dans une solution de développement à base de méthyl isobutyl ketone sans agitation ultrasonique, qui pourraient endommager la structure. Le processus est ensuite stoppé par immersion dans une solution d'isopropanol. Après séchage de l'échantillon, il est introduit dans un bâti sous vide de dépôt métallique par bombardement électronique. Sous un vide de 10^{-7} mbar, une couche d'accroche de Cr de 5 nm est déposée par évaporation thermique au canon à électrons. Cette étape permet de palier au manque d'adhérence de l'Au sur la lame de verre. Une couche d'Au de 50 nm est ensuite déposée par évaporation thermique. L'échantillon est ensuite retiré du bâti de dépôt métallique pour être plongé pendant quelques minutes dans un bain de révélation à base de solvant organique. Le masque d'évaporation en résine est dissout et seul le motif de la figure 2.5 (a) persiste.

de développement. Une fine couche en Au sacrificielle est déposée pour assurer la conductivité de l'échantillon, nécessaire pour l'écriture avec le faisceau d'électrons. L'échantillon est alors introduit dans un microscope à balayage électronique (MEB), pour y être ensuite insolé sur une zone de taille $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$. Le motif inscrit est illustré par la figure 2.5 (a). L'échantillon est ensuite plongé pendant 60 s dans une solution de développement avec ultrason, permettant de retirer la résine insolée et la fine couche conductrice d'Au. La résine restante forme alors le masque d'évaporation. Après avoir introduit l'échantillon dans un bâti sous vide de dépôt métallique (Plassys MEB 400), une couche d'accroche de 5 nm de Cr est déposée par évaporation au canon à électrons. Une couche de 50 nm d'Au est ensuite ajoutée par évaporation thermique, dans le même bâti sous vide. La dernière étape consiste à plonger les échantillons dans une solution de dissolution du masque d'évaporation en résine. Cette étape permet de révéler le motif métallique présent au centre de l'échantillon, visible sur la figure 2.5 (b).

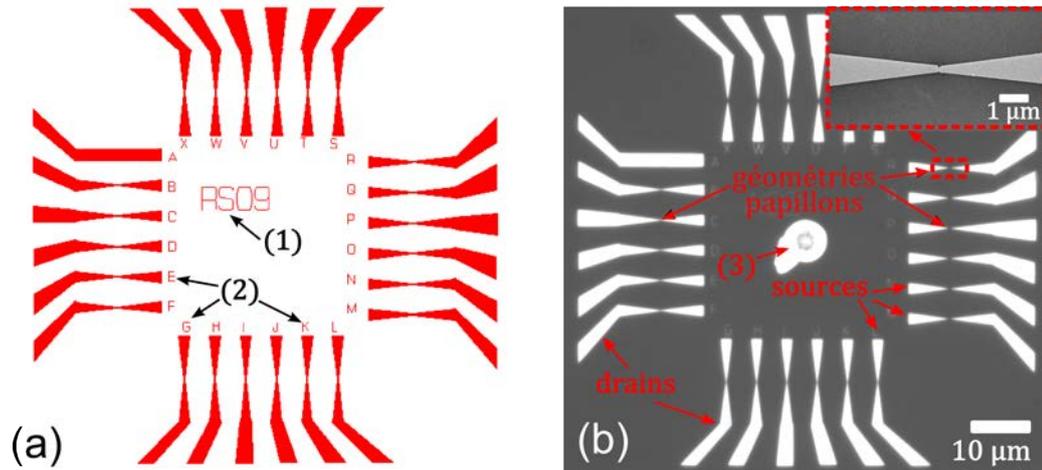


FIGURE 2.5 – La figure (a) est une représentation schématique du motif lithographié par faisceau d'électrons. L'index (1) désigne l'emplacement du nom de l'échantillon. L'index (2) désigne le système de repère utilisé pour les 24 nanofils, nommés par une lettre allant de A à X. La figure (b) est une image optique du motif métallique en fin de lithographie électronique. Une image MEB d'un nanofil de géométrie papillon est insérée en haut à droite, correspondant à un agrandissement du cadre rouge inférieur. L'index (3) correspond à la marque de surexposition de la résine, laissée par le faisceau d'électrons pendant les réglages préliminaires à l'exposition.

2.1.2 Deuxième étape : photolithographie ultraviolette

La taille des électrodes (de l'ordre du μm^2) ne permet pas de concevoir simplement un soudage standard. Pour pouvoir connecter ces nanofils, des électrodes macroscopiques sont ajoutées grâce à une deuxième étape de lithographie. La zone à insoler représente la totalité de l'échantillon ($22\text{ mm} \times 22\text{ mm}$) et la technique utilisée est la photolithographie ultraviolette.

Cette méthode consiste à insoler uniformément un échantillon à travers un masque d'insolation métallique à l'aide de photons d'une longueur d'onde de 400 nm . Une couche de $1\ \mu\text{m}$ de résine négative et photosensible AZnLOF 2070 est déposée par induction² sur l'échantillon sortant de l'étape précédente. L'échantillon est ensuite positionné face contre un masque métallique correspondant au motif bleu des figures 2.2. Une photographie de la partie centrale du masque est visible sur la figure 2.6 (a). Pour limiter les effets de diffraction pendant l'insolation, l'échantillon et le masque métallique doivent être en contact. Un vide est créé pour assurer un contact homogène. Après alignement avec les électrodes microscopiques déjà existantes, l'échantillon est insolé. Cette étape permet ainsi de réticuler la résine exposée. Une cuisson supplémentaire de 5 min après exposition est nécessaire pour parachever la réticulation. Le reste de la résine, non exposé aux photons ultraviolets, est

2. 3000 t/min pendant 50 s . Une cuisson à $110\text{ degrés Celsius}$ est effectuée pendant 2 min .

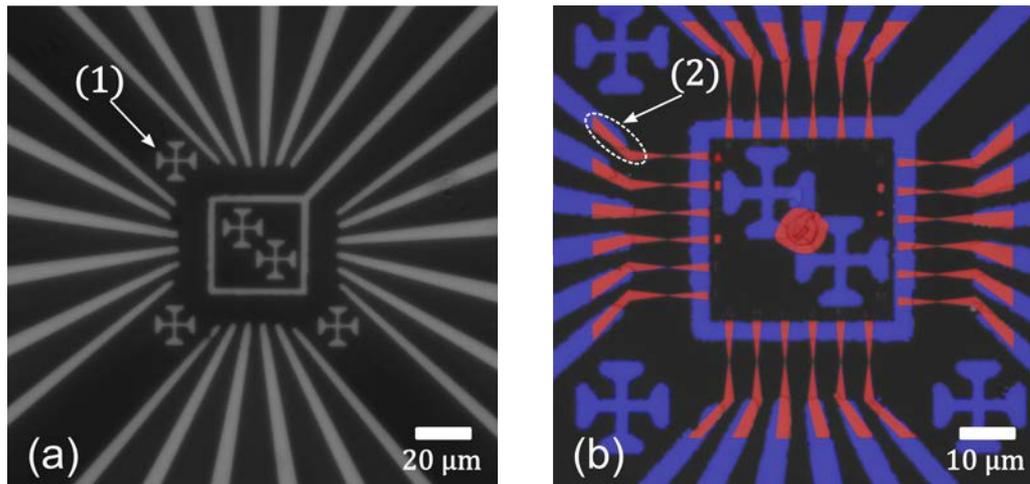


FIGURE 2.6 – (a) est une image optique en champ sombre du masque métallique d'insolation ultraviolette. Les croix indexées par (1) correspondent à des marques d'alignement. (b) représente une image optique d'un échantillon après la deuxième étape de lithographie. Les éléments sont coloriés en fonction de l'étape de lithographie à laquelle ils appartiennent. Les parties rouges correspondent à l'étape de lithographie par faisceau d'électrons, et les éléments bleus à l'étape de photolithographie ultraviolette. L'index (2) met en évidence une des 24 zones de recouvrement des deux étapes. Ces parties permettent l'alignement de l'échantillon et du masque d'insolation ultraviolette. La source de chaque nanofil est recouverte par la masse centrale carrée, ici en bleue.

retiré par développement pendant 45 s dans une solution basique de tetraméthylammonium-hydroxide. La résine restante forme le masque d'évaporation. L'échantillon est introduit de nouveau dans le bâti sous vide de dépôt métallique (Plassys MEB 400), pour subir le même protocole de dépôt que durant la première étape. Une fois recouvert d'une couche de Cr et d' Au, le masque de résine réticulée est dissous à l'aide d'un solvant à base de 1-méthyl-2-pyrrolidinone. Cette étape permet de révéler le motif final, illustré par la figure 2.6 (b). La figure 2.7 (a) est une photographie de ce même échantillon.

Une fois la fabrication des échantillons terminée, les pistes sont ensuite reliées électriquement sur une carte électronique, spécialement réalisée à cet effet. 25 points de soudures à l'étain sont alors effectués (24+1 pour les drains et la source commune). La figure 2.7 (b) représente un échantillon couplé à la carte de connexions électriques, préparé pour y être électromigré.

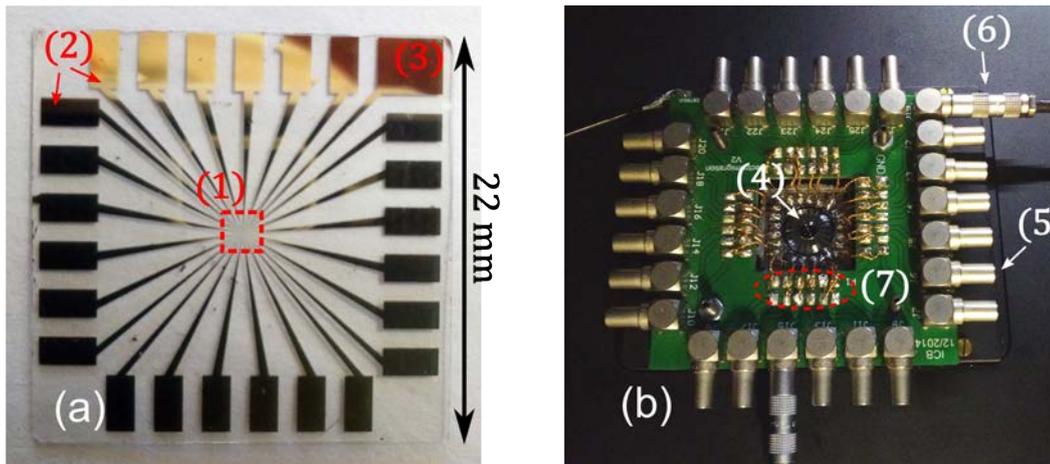


FIGURE 2.7 – L'image (a) est une photographie d'un échantillon en fin de fabrication, prêt à être connecté. La zone encadrée en rouge et indexée par (1) désigne la localisation du centre de l'échantillon, représenté par la figure 2.6 (b). Le repère (2) indique 2 des 24 électrodes d'adressage à souder. L'index (3) correspond à la piste de la masse centrale. L'image (b) est une photographie d'un échantillon connecté à la carte électronique. L'échantillon de la figure (a) est repéré par l'index (4). Il est relié à la carte par le biais de fils de cuivre. Les éléments désignés par le repère (5) sur le bord de la carte électronique sont des connectiques. Elles permettent d'adresser un potentiel électrique, acheminé par un câble de repère (6). La zone entourée en pointillés correspond à l'index (7). On retrouve cette double rangée de points de soudure tout autour de l'échantillon. Les rangées extérieures, les plus éloignées de l'échantillon, sont connectées à celui-ci par le biais de fils de cuivre. Ce sont les connexions qui permettent de piloter les différences de potentiel aux bornes du nanofil. Les rangées intérieures possèdent quant à elles le même potentiel. Elles correspondent au potentiel externe de blindage des câbles (6). Ces pistes ne sont pas reliées électriquement à l'échantillon et n'assurent qu'un rôle d'écrantage des champs électriques parasites.

2.2 Fabrication des jonctions tunnels planaires

La mission première de la thèse réside dans la réalisation d'une antenne optique pilotée électriquement. L'objectif est d'exploiter l'émission de photons par désexcitation radiative des électrons tunnelant entre deux électrodes d'au. Durant la section précédente, nous avons présenté comment étaient fabriqués les nanofils d'au. Ces nanofils constituent la base sur laquelle les antennes sont réalisées. L'étape suivante décrit comment le point d'alimentation de l'antenne est formé à partir d'un nanofil d'au piloté électriquement.

L'électromigration fut pour la première fois observée expérimentalement par M. Gérardin en 1861 [44]. Ce n'est qu'en 1914 qu'une explication théorique fut proposée [45]. L'apparition des premiers circuits imprimés suscite un regain d'intérêt pour l'électromigration, qui permet d'expliquer les ruptures fréquentes des pistes électriques en aluminium [46], ou les mouvements atomiques au sein de fil d'au [47]. Black propose le premier modèle mathématique en 1967, qui fait intervenir le transfert de quantité de mouvement entre les électrons de conduction et les atomes comme

principal vecteur du déplacement de la matière [48]. Les principaux paramètres tels que la température [49] et la structure cristalline du métal [50] ont été identifiés dès les années 80. Initialement étudiée pour son caractère destructeur, l'électromigration est ensuite réinvestie en tant que technique de fabrication avec le développement des transistors moléculaires. Des interstices créés par électromigration permettent ensuite d'étudier les propriétés conductrices de molécules [51] et de particules cristallines [52] insérées au sein de l'interstice. Ces techniques pointent la nécessité de contrôler des paramètres tels que la température et la densité de courant pour assurer la création d'un interstice de largeur nanométrique [53-55].

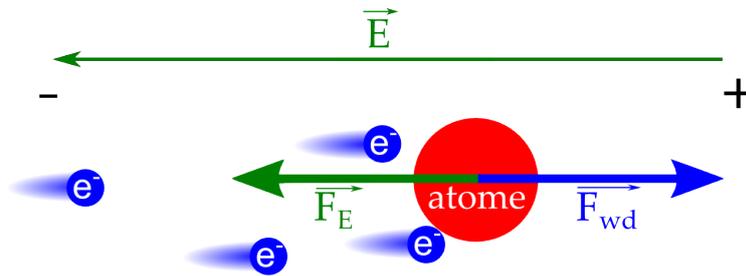


FIGURE 2.8 – Schéma illustrant les forces intervenant dans le phénomène d'électromigration. Les électrons qui se déplacent vers le potentiel positif, génère une force appelée \vec{F}_{wd} , en bleue. Le potentiel électrostatique \vec{E} exerce une autre force appelée \vec{F}_E . Dans le cas des anions, \vec{F}_E et \vec{F}_{wd} sont dans le même sens.

Comme énoncé précédemment, l'électromigration est un phénomène qui décrit le déplacement d'ions au sein d'un milieu conducteur. Lorsque la densité de courant traversant ce milieu devient assez importante, la quantité de mouvement véhiculée par les électrons est en partie transférée aux ions via des collisions. On observe alors la création et l'accentuation de constriction, menant finalement à une rupture du milieu conducteur. En raison de la différence de potentiel nécessaire à la création d'un courant électrique, on considère deux types de forces exercées sur les atomes : la force électrostatique \vec{F}_E , dépendant de la charge de l'ion et nulle si c'est un atome, et la force \vec{F}_{wd} , représentant le transfert de moment des électrons (traditionnellement appelée *electron wind* dans la littérature). Ces forces sont toutes les deux induites par le champ électrostatique \vec{E} . La force d'électromigration totale \vec{F}_{EM} prend alors la forme [56, 57] :

$$\vec{F}_{EM} = \vec{F}_{wd} + \vec{F}_E = Z^* e \vec{E} \quad (2.1)$$

avec e la charge élémentaire, \vec{E} le vecteur champ électrostatique et $Z^* = Z_E + Z_{wd}$ le nombre de charges effectives.

2.2.1 Électromigration non contrôlée

Comme présentée en introduction, l'électromigration est à l'origine un phénomène à caractère destructif [46]. Mais elle peut aussi être employée de façon contrôlée pour fabriquer des interstices de dimensions nanométriques, séparant deux électrodes métalliques [52]. En raison de sa taille, cette séparation se comporte électriquement comme une jonction tunnel. C'est pourquoi l'électromigration contrôlée a été choisie pour réaliser les jonctions tunnels nanométriques. La création de jonction brisée contrôlée mécaniquement a aussi été envisagée. Cette technique permet de créer un interstice et d'en contrôler la taille en exerçant une flexion de l'échantillon support, à l'aide de cristaux piezoélectriques par exemple. L'installation est cependant volumineuse par rapport au faible encombrement des pistes électriques utilisées pour l'électromigration. La possibilité de recueillir la lumière émise par la jonction planaire est aussi limitée par le fait que le système de flexion de l'échantillon est installé sur l'une des deux faces de l'échantillon.

La première méthode d'électromigration que nous avons utilisée est inspirée des travaux pionniers de H. Park *et al* [52]. Cette technique consiste à appliquer une rampe de tension croissante aux bornes du nanofil jusqu'à rupture de celui-ci. La tension est incrémentée de 10 mV toutes les 10 ms. La figure 2.9 (a) indique le type de montage utilisé et la figure 2.9 (b) représente l'évolution du courant en fonction de la tension appliquée. La chute brutale de courant correspond à la rupture du nanofil. Le résultat obtenu à l'aide de cette technique est mis en évidence par l'image MEB de la figure 2.9 (a). Sur ce nanofil, la zone de rupture mesure plus de 1 μm . L'électromigration n'a pas été contrôlée. Elle a conduit à la fusion du nanofil sous l'augmentation de la température par effet Joule.

Comme le fait remarquer le graphique incrusté dans la figure 2.9 (b) l'électromigration est un phénomène physique avec une cinétique qui diverge très rapidement.

En seulement quelques millisecondes, le courant chute brutalement. La tension peut être considérée constante pendant ces quelques millisecondes. La résistance, exprimée par $R = \frac{dV}{dI}$ dépend de plusieurs paramètres. En fonction de la longueur du nanofil l , de la section S , de la résistivité ρ , et de la température T , la résistance s'exprime par la relation :

$$R(T, S) = \rho(T) \times \frac{l}{S} \quad (2.2)$$

ρ est dépendant de la température locale. Cette dépendance en température est approximée de façon linéaire par :

$$\rho = \rho_0(1 + \alpha(T - T_0)) \quad (2.3)$$

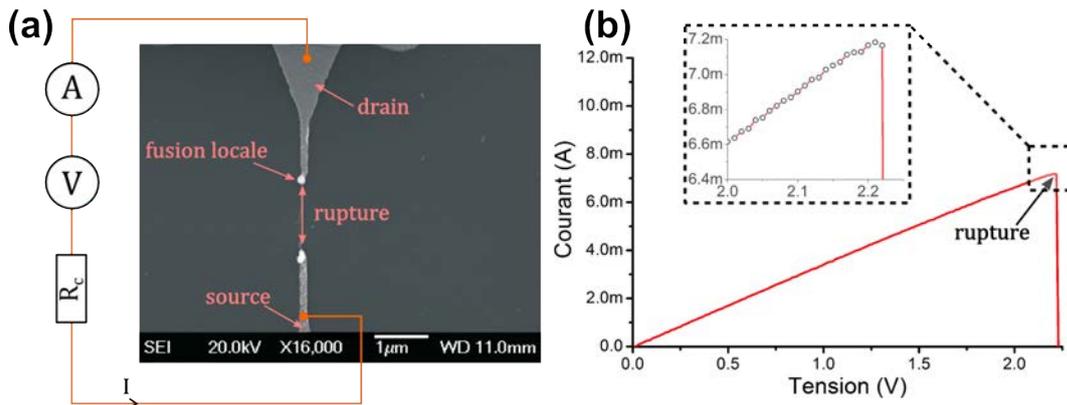


FIGURE 2.9 – La figure (a) est composée d’une image MEB d’un nanofil de géométrie filaire électromigré suivant le montage électrique correspondant. La rampe de tension est générée par une carte (BNC-2090A National Instruments) pilotée par un programme Labview. La mesure du courant est assurée par un convertisseur de courant/tension. La résistance $R_c=100\ \Omega$ représente les résistances intrinsèques au circuit. On remarque sur l’image MEB que la rupture séparant les deux électrodes du nanofil mesure plus de $1\ \mu\text{m}$. L’amas de matière blanche sur chaque extrémités de la rupture correspond à de l’Au qui est entré en fusion. L’application d’une tension a provoqué un échauffement du fil par effet Joule. La température atteinte a dépassé la température de fusion de l’Au, soit $1064\ ^\circ\text{C}$. Le graphique (b) représente le courant traversant le fil en fonction de la tension appliquée. La chute brutale de courant correspond à la rupture du nanofil. Le graphique incrusté est un agrandissement de la mesure quelques instants avant la rupture.

Dans cette équation, ρ_0 représente la valeur de la résistivité à la température T_0 . α est le coefficient de température du matériau. Pour ce type de nanofil, les mesures réalisées dans d’autres travaux [58-61] indique une valeur moyenne $\alpha = 2.4 \times 10^{-3}\ \text{K}^{-1}$.

Avec l constant, ces deux expressions permettent de montrer que R dépend essentiellement ici de deux variables : la température T et la section S . Ces paramètres sont liés aux deux principaux phénomènes responsables du changement de résistance du nanofil. Tout d’abord, le passage d’un courant dans un milieu résistif augmente la température par effet Joule. Ainsi, l’élévation de la température du nanofil provoque un accroissement de la résistivité (relation 2.3), et donc aussi de la résistance. Ensuite, lorsque l’électromigration opère, les atomes se déplacent localement sur le nanofil. La section S du nanofil diminue alors progressivement, ce qui entraîne aussi une augmentation de la résistance. L’élévation en température et la diminution de la section du nanofil par électromigration représentent ainsi les deux principales causes de l’accroissement de R .

À partir de ce résultat, détaillons ce qui se passe dans la répartition des puissances électriques du circuit. Soit V la tension appliquée aux bornes des résistances en série R_c et R_f , la résistance du nanofil. P_c désigne la puissance dissipée par R_c

P_f celle dissipée par le nanofil et $P_{totale} = P_c + P_f$. Le courant I s'écrit :

$$I = \frac{V}{R_f + R_c}$$

$$P_f = R_f \frac{V^2}{(R_f + R_c)^2}$$

$$P_c = R_c \frac{V^2}{(R_f + R_c)^2}$$

$$P_{totale} = (R_c + R_f) \frac{V^2}{(R_f + R_c)^2}$$

$$\frac{P_f}{P_{totale}} = \frac{R_f}{R_f + R_c}$$

Au début de l'électromigration $R_f \approx R_c$. Le rapport $\frac{P_f}{P_{totale}}$ tend alors vers $\frac{1}{2}$. La puissance totale est ainsi partagée entre les deux résistances R_c et R_f . Lorsque l'électromigration progresse, c'est-à-dire lorsque R_f devient très grand devant R_c , le rapport $\frac{P_f}{P_{totale}}$ tend alors vers 1. Ce changement dans la répartition des puissances électriques est la principale cause responsable de l'emballement de l'électromigration et de la surchauffe catastrophique du nanofil. Plus l'électromigration progresse, plus la puissance totale appliquée se reporte sur le nanofil. Ainsi, le processus diverge et le fil se rompt de façon non contrôlée.

Pour contrôler la dynamique, nous avons d'abord pensé à stopper manuellement l'application de la rampe en tension juste avant la rupture du nanofil. Comme la figure 2.9 (b) l'a démontré, l'emballement de l'électromigration arrive en seulement quelques millisecondes. Il n'est donc pas possible pour l'opérateur d'apprécier le moment opportun pour arrêter la rampe en tension. On remarque cependant sur cette figure que l'évolution du courant devient non linéaire juste avant de chuter brutalement. La représentation de la dérivé de cette courbe, correspondant à la conductance, permet de mettre en évidence cette déviation. Cette grandeur est calculée pour chaque mesure du courant par la relation $G = \frac{dI}{dV} = \frac{1}{R}$.

La figure 2.10 représente G et I en fonction de la tension appliquée. Dès le début de la rampe de tension, on observe que le courant dévie progressivement de la loi d'Ohm. Cette déviation est provoquée par l'effet Joule. Elle est mise en évidence par la chute de la conductance, représentée en rouge. La décroissance de la conductance correspond ainsi à l'augmentation de la température du nanofil par effet Joule. Dans les derniers instants, les atomes d'Au deviennent de plus en plus mobiles et le phénomène d'électromigration s'amplifie jusqu'à rupture. La représentation de la conductance en temps réel permet à l'opérateur de stopper la rampe de tension

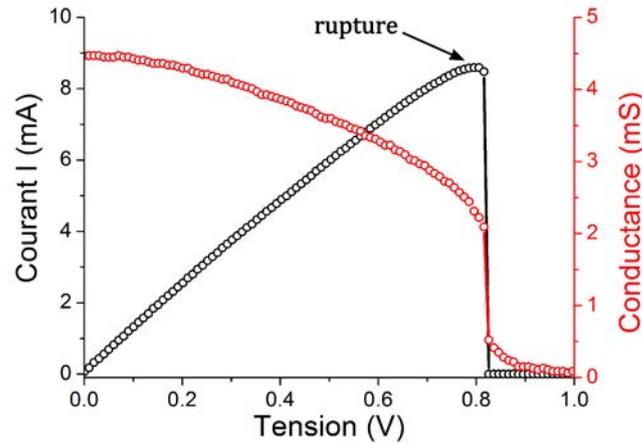


FIGURE 2.10 – Évolution du courant et de la dérivée (conductance) en fonction de la tension. Le courant est représenté en noir et la conductance en rouge. La flèche indique les points correspondant à la rupture du nanofil. Sur cette courbe, l'effet Joule conduit à une déviation de la loi d'Ohm, mise en évidence par l'évolution non linéaire de la conductance.

avant la rupture du nanofil. Il modifie alors les paramètres de la rampe de tension suivante, et recommence jusqu'à la rupture du nanofil.

2.2.2 Mesure de la conductance dynamique

Afin de mettre en évidence les changements de résistance du nanofil pendant et entre chaque rampe de tension, nous avons cherché une méthode pour mesurer la conductance. Cette mesure est appelée conductance dynamique. Pour pouvoir quantifier cette grandeur, il est nécessaire de dissocier la mesure de la conductance par rapport à l'application de la rampe en tension.

Cette mesure est réalisée par l'ajout d'une composante alternative $V_{AC}(t)$, de fréquence $f = \frac{\omega}{2\pi}$, sommée à la tension V_{DC} de la rampe. La tension totale $V_{totale}(t)$ s'écrit alors :

$$\begin{aligned} V_{totale}(t) &= V_{DC} + V_{AC}(t) \\ V_{totale}(t) &= V_{DC} + V_{AC} \times \cos(\omega t) \end{aligned} \quad (2.4)$$

Le courant total traversant le système peut alors s'écrire sous la forme :

$$\begin{aligned} I_{total}(t) &= I_{DC} + I_{AC}(t) \\ I_{total}(t) &= I_{DC} + I_{AC} \times \cos(\omega t) \end{aligned} \quad (2.5)$$

À partir de la mesure de I_{AC} , on obtient alors $G_{AC} = \frac{I_{AC}}{V_{AC}}$, avec G_{AC} représentant la conductance dynamique. Le principe de cette mesure est illustré par la figure 2.11 (a). L'extraction de la grandeur I_{AC} , modulée par le terme $\cos(\omega t)$, est réalisée à l'aide d'un amplificateur à détection synchrone (modèle HF2LI de Zurich Instruments). La partie électrique du montage expérimental est schématisée par la figure 2.11 (b).

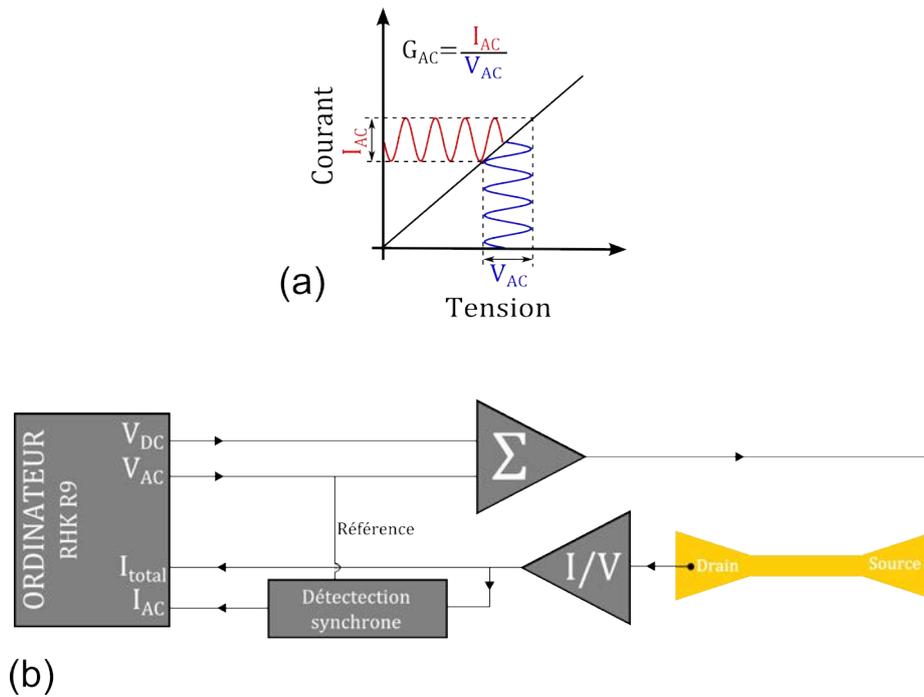


FIGURE 2.11 – La figure (a) illustre le principe de mesure de la conductance dynamique, appelée G_{AC} . Sous l'application d'une tension alternative $V_{AC} = 20$ mV et de fréquence $f = 12.1$ kHz, un courant I_{AC} est produit. La mesure de ce courant est extraite de $I_{totale}(t)$ par détection synchrone. Le schéma (b) représente la partie électrique du montage expérimental. La génération et la mesure des signaux sont réalisées par le système de contrôle de microscopie à balayage de sonde R9 de RHK Technology. Le pilotage du système de contrôle R9 est assuré par un ordinateur. La tension V_{totale} appliquée au nanofil est formée par la somme de la tension $V_{AC} + V_{DC}$. Le courant traversant le système est mesuré à l'aide du convertisseur de courant/tension I/V (DHPCA-100 FEMTO), qui assure aussi une amplification du signal. La composante I_{AC} du courant I_{total} est prélevée par la détection synchrone. Les mesures de I_{total} et de I_{AC} sont enregistrées sur le système R9. G_{AC} est alors calculée par l'ordinateur.

Le convertisseur courant/tension (DHPCA-100 FEMTO) assure aussi une fonction d'amplification du signal, dont le gain est ajustable de 10^2 à 10^7 $A.V^{-1}$. Cette amplification du signal permet ainsi de mesurer des courants sur une échelle allant du nA jusqu'au mA.

Le sommateur, interne à la source électrique du RHK R9, assure une superposition du signal continu et du signal alternatif appliqués. Le courant I_{total} qui parcourt le nanofil est ensuite converti en une tension, directement enregistrée par le système

d'acquisition, ainsi que par l'amplificateur à détection synchrone.

La détection synchrone consiste à extraire la partie alternative du courant I_{total} , modulée à la même fréquence $f = 12.1$ kHz que la tension V_{AC} appliquée. L'amplitude de la modulation extraite est envoyée au système d'acquisition du R9, où la conductance dynamique G_{AC} est calculée par l'opération $G_{AC} = \frac{I_{AC}}{V_{AC}}$.

2.2.3 Électromigration contrôlée

La rampe de tension est maintenant générée à partir de l'interface du système de contrôle R9. Les paramètres de cette rampe de tension, comme l'incrément et la valeur finale, sont déterminés par l'utilisateur. Elle peut être arrêtée à tout moment, dès que l'opérateur estime que la conductance mesurée en temps réel chute de façon dramatique. C'est-à-dire, lorsqu'une rupture de pente est observée sur la chute de conductance. La représentation de la conductance sur la figure 2.10, juste avant la rupture, met en évidence ce type d'évènement. On enregistre G_{AC} au début et entre chaque rampe de tension. Plusieurs rampes de tensions successives sont ainsi appliquées par l'opérateur, jusqu'à ce que la conductance dynamique G_{AC} mesurée soit de l'ordre du niveau de bruit de la mesure, environ 10^{-6} S pour un gain du convertisseur I/V de 10^2 A.V⁻¹.

La figure 2.12 (a) représente l'évolution de G_{AC} après chaque rampe de tension appliquée. Les flèches représentent le sens et l'ordre dans lequel les mesures ont été réalisées. La baisse de la conductance n'est mesurée qu'à partir de la 8^{ième} rampe. Avant cette étape, la conductance du nanofil ne fait qu'augmenter après chaque rampe. Ce phénomène est discuté dans la section 2.2.4.

Alors que l'électromigration avance progressivement, on observe ensuite que la tension maximale atteinte en fin de rampe diminue. Elle est presque divisée par 2 entre la 8^{ième} et 11^{ième} rampe. Elle diminue ensuite de façon quasi linéaire jusqu'à atteindre environ 600 mV. Après quelques rampes autour de cette tension maximale, l'arrêt des mesures symbolise la rupture du nanofil.

Une rupture prématurée est de nouveau enregistrée. La température atteinte augmente jusqu'au point de fusion de l'Au. C'est le cas de la figure 2.12 (b), qui confirme cette observation et démontre que la distance séparant les deux électrodes (70 nm) est bien trop large pour permettre le passage d'un courant par effet tunnel. Malgré la représentation de la conductance dynamique calculée en temps réel pendant l'expérience, la rupture de pente pendant la rampe en tension, indiquant la dérive de l'électromigration, est encore trop rapide, de l'ordre de la seconde. L'opérateur ne dispose pas du temps de réaction nécessaire pour stopper la rampe en tension.

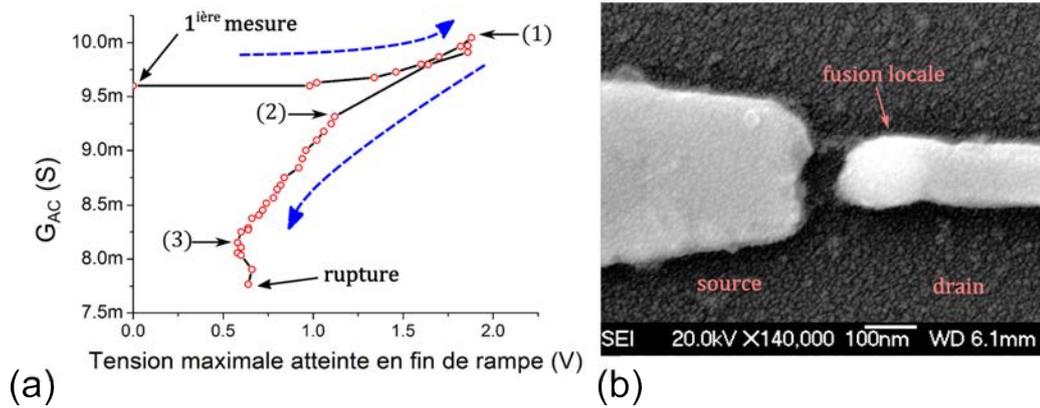


FIGURE 2.12 – Le graphique (a) représente l'évolution de la conductance dynamique mesurée entre chaque rampe de tension appliquée, en fonction de la tension maximale définie durant la rampe précédente. La 1^{ière} mesure est la valeur de la conductance dynamique au début de l'expérience. Les flèches bleues indiquent le sens de lecture de la courbe, c'est-à-dire l'ordre dans lequel les mesures ont été effectuées. G_{AC} augmente au cours des 7 premières mesures. La section 2.2.4 discute de cette évolution. Entre la 8^{ième} (indexée (1)) et la 11^{ième} rampe (indexée (2)), alors que G_{AC} diminue, la tension maximale atteinte décroît de 1.8 V à 1.1 V. La décroissance de G_{AC} en fonction de la tension maximale est ensuite linéaire jusqu'à ce que la tension atteigne environ 600 mV (index (3)). Les mesures suivantes de G_{AC} sont toutes faites pour des tensions maximales variant aux alentours de cette même consigne. Le dernier point correspond à la mesure de G_{AC} avant la rupture. Après la rupture, la conductance mesurée est égale au niveau de bruit. La figure (b) est une image MEB du nanofil électromigré par la technique de rampe en tension illustrée dans la figure (a). Comme dans l'image 2.9, les parties blanches représentent les restes du nanofil qui a fondu lors de l'électromigration. L'écart entre ces deux extrémités mesure environ 70 nm. Cette largeur est encore bien trop grande comparée aux dimensions recherchées, de l'ordre du nanomètre.

Les travaux de Strachan *et al.* en 2005 [54], ont permis d'affiner l'utilisation de cette technique [62-65], grâce à l'ajout d'une boucle de contre-réaction. La rampe en tension s'arrête lorsque la mesure de la conductance chute en dessous d'une valeur de consigne. Cette consigne est définie par un pourcentage de la conductance initiale du nanofil, par exemple 95 %. Dès cette consigne atteinte, la tension appliquée est alors diminuée progressivement de 100 mV pour ralentir le processus d'électromigration. Une nouvelle consigne de conductance à atteindre est définie en retirant 5 % à la valeur précédente. La tension est de nouveau incrémentée jusqu'à ce que la conductance atteigne cette nouvelle consigne. Ce processus est répété jusqu'à la rupture. L'élévation de la rampe en tension est stoppée chaque fois que la mesure de G_{AC} atteint une valeur inférieure à la consigne. Avec un taux de mesure à la milliseconde, cette condition supplémentaire a pour avantage d'être plus rapide que l'opérateur. Cependant, puisque une tension est appliquée de façon continue, un courant

traverse le nanofil. Ce courant maintient par effet Joule le nanofil à une température supérieure à la température ambiante. Le fait que la température du nanofil ne retombe pas à température ambiante a tendance à précipiter l'électromigration, menant au même type d'interstices que ceux illustrés précédemment. Les expériences de Strachan *et al.* ont cependant démontré que cette technique permet de fabriquer des jonctions tunnels avec un taux de succès important [54]. Les différences de résultats obtenues proviennent peut-être du fait que nous utilisons dans notre cas un générateur de tension, alors qu'un générateur de courant est employé dans les expériences de Strachan *et al.*

Afin de laisser thermaliser le nanofil entre chaque étape de l'expérience, la tension appliquée entre chaque rampe successive est maintenant ramenée à zéro. Plusieurs nanofils ont été électromigrés à partir de l'ajout de cette condition à la technique présentée précédemment. Seulement 10% des nanofils électromigrés ont permis de mesurer le passage d'un courant par effet tunnel. Deux d'entre eux sont représentées par les figures 2.13 (a) et (b).

Pour ces deux jonctions tunnels, les courants mesurés étaient de l'ordre du pA pour 1 V appliqué. Les interstices sont de formes irrégulières et il est parfois difficile de déterminer la zone où la distance entre les deux électrodes est la plus courte, ce qui est le cas de l'image 2.13 (a).

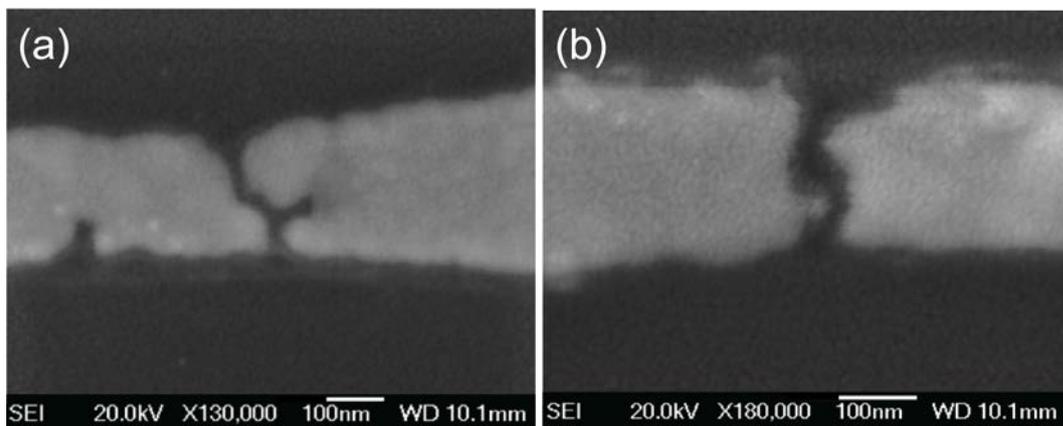


FIGURE 2.13 – Image MEB de jonctions électromigrées en rampe de tension. Les figures (a) et (b) représentent 2 jonctions différentes réalisées à partir de la technique des rampes en tension successives avec retour à 0 V. Des courants de l'ordre du pA ont été mesurés pour une tension appliquée de 1 V. On remarque le caractère désordonné et aléatoire du processus de formation des jonctions tunnels par électromigration. Aucune émission lumineuse n'a été mesurée pour ces deux jonctions.

Afin de caractériser les propriétés émettrices de ces jonctions, des images optiques ont été prises pendant la mesure d'un courant tunnel. Depuis la découverte du caractère radiatif de certaines jonctions tunnels par Lambe et Mc Carthy [66], il

a été montré à multiples reprises que la quantité de photons émis augmente avec l'intensité du courant tunnel traversant la jonction. Puisque aucun signal lumineux n'était mesuré, nous avons tenté d'augmenter la tension continue appliquée jusqu'à ce que la jonction soit détruite, ce qui est matérialisé par la perte du courant tunnel. La taille des interstices des image (a) et (b) n'est donc pas représentative de l'état de la jonction après électromigration, mais plutôt après plusieurs tentatives d'augmentation du courant tunnel jusqu'à leur destruction. Nous n'avons pas été en mesure de détecter une activité lumineuse sur les deux exemples. Pour augmenter la probabilité de mesurer des photons émis par les jonctions électromigrées, nous avons recherché à augmenter l'intensité du courant les traversant, c'est-à-dire à créer des jonctions de taille plus petite et donc de conductance plus élevée.

Toutes les méthodes d'électromigration en rampe de tension décrites présentent l'avantage de pouvoir être automatisées et asservies par des boucles de contre-réaction. Même si certaines techniques que nous avons employées nous ont permis de réaliser des jonctions tunnels, les courants mesurés n'ont pas permis d'observer d'émission lumineuse. De plus, le meilleur taux de succès obtenu pour ces techniques ne dépasse pas les 10%. L'expérience nous a montré que l'électromigration en tension continue, contrôlée et adaptée par l'opérateur, est la solution la plus efficace. La tension est incrémentée manuellement par palier de 10 ou 100 mV. La figure 2.14 (a) illustre le déroulement de ce type d'électromigration.

Après chaque palier de tension appliquée, l'évolution temporelle de la conductance dynamique est évaluée par l'opérateur. Durant les différents paliers de tensions appliquées, la conductance évolue au court du temps de trois façons différentes. Dans les 200 premières secondes, la figure 2.14 (b) met en évidence une augmentation de la conductance pour V_{DC} constant. Cet effet est discuté plus loin. Ensuite, l'index (1) de la figure 2.14 (a) indique une évolution différente avec décroissance de la conductance, dont la vitesse $\frac{dG}{dt}$, correspondant à la dérivée temporelle de celle-ci, diminue (voir figure (c)). En effet, la conductance chute de moins en moins vite au court du temps. Enfin, l'index (2) pointe une dernière tendance avec une décroissance de la conductance avec accélération rapide (voir figure (d)). Ce type de variation a déjà été identifié dans la figure 2.10 comme indiquant un emballement du processus d'électromigration. Ce phénomène apparait généralement pour des valeurs de $\frac{dG}{dt}$ supérieures à $5 \mu\text{S}\cdot\text{s}^{-1}$. Tant que la conductance ne décroît pas de façon accélérée au court du temps, l'opérateur continue d'incrémenter la tension appliquée. Ainsi on observe que la tension n'est diminuée qu'à partir de 500 s, moment pour lequel l'électromigration commence à se précipiter.

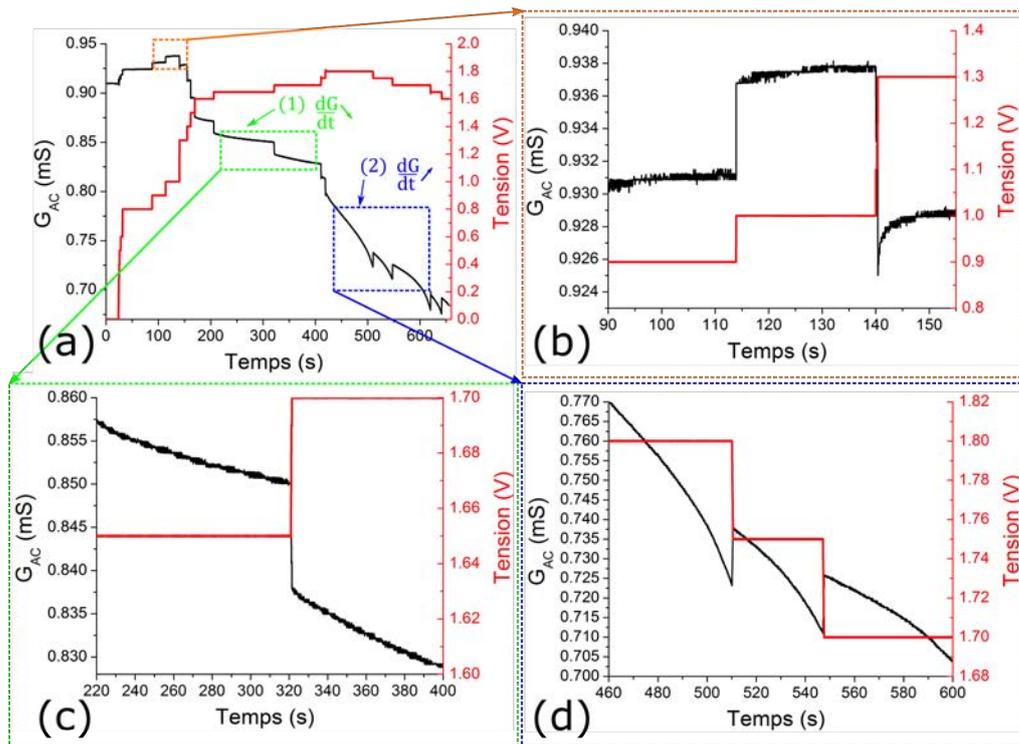


FIGURE 2.14 – Les graphiques (a), (b), (c) et (d) représentent l'évolution de la conductance dynamique et de la tension continue appliquée en fonction du temps. Les graphiques (b), (c) et (d) sont des agrandissements de la figure (a). La conductance, mesurée par détection synchrone, est représentée en noir. La tension appliquée est représentée en rouge. La figure (b), encadrée en orange, met en évidence une augmentation de la conductance dans les temps précédant l'électromigration. Cette observation a déjà été faite dans la figure 2.12. Elle est discutée dans la section suivante. La figure (c) correspond à l'index (1) en vert. Elle met en évidence une chute de conductance dont la vitesse de décroissance, correspondant à la dérivée temporelle de cette courbe, diminue. La figure (d) fait référence à l'index (2) en bleu. Elle indique une chute de conductance dont la vitesse de décroissance $\frac{dG}{dt}$ s'accélère, signifiant un emballement du processus d'électromigration, comme pour l'image 2.10. La tension appliquée n'est diminuée qu'à partir de l'observation d'une décroissance accélérée de la conductance (index (2) et figure (d)).

2.2.4 Évolution de la conductance du nanofil durant la mise sous tension

Revenons aux deux cents premières secondes où la conductance croît pour chaque palier de tension appliquée. Comme on le remarque avec les figures 2.14 (b) et 2.12, la conductance augmente avant que l'électromigration ne débute. Cette observation nécessite quelques explications.

À l'échelle microscopique, la température s'exprime par l'excitation de modes de vibrations collectifs des atomes (phonons). Sous l'application d'une différence de potentiel, les électrons de la bande de conduction se déplacent dans une direction commune, créant ainsi un courant électrique. Lors de leur transport, une partie

de ces électrons entre en collision avec les défauts cristallins du milieu. Les électrons communiquent ainsi une partie de leur énergie cinétique. Ce transfert d'énergie accentue alors les vibrations des atomes et contribue à l'élévation en température du milieu conducteur. Les électrons provoquent l'échauffement du nanofil par effet Joule. En augmentant la tension appliquée, et donc le courant parcourant le nanofil, la relation 2.2 indique que G_{AC} devrait diminuer. À priori, l'augmentation de la conductance de la figure 2.14 (b) s'oppose donc à la simple hypothèse de la montée en température du nanofil par effet Joule.

La croissance de G_{AC} se traduit au niveau microscopique par une amélioration du passage des électrons dans le nanofil. Ils rencontrent donc en moyenne moins d'obstacles, et donc moins de défauts cristallins. Pour comprendre ce phénomène, il est nécessaire de prendre en compte certains paramètres de l'expérience.

Tout d'abord, les nanofils d'Or sont réalisés par évaporation thermique sous vide. Leur structure est donc polycristalline [67], c'est-à-dire composée d'une multitude de cristaux séparés par des joints de grains (défauts cristallins). Lorsque la température croît, les atomes deviennent mobiles et se réorganisent pour atteindre des énergies de liaisons atomiques minimales. Cette recherche d'équilibre implique la réduction du nombre de défauts. Ce processus de recuit est largement utilisé en métallurgie. L'élévation de la conductance du nanofil suggère un recuit possible du nanofil, et donc une augmentation de sa conductance.

Les mesures étant réalisées en milieu ambiant, elles impliquent aussi la présence d'eau ou d'autres éléments adsorbés à la surface et dans les porosités du nanofil. L'élévation en température durant la mise sous tension entraîne donc certainement une désorption progressive de ces éléments par étuvage. Contrairement au recuit, ce phénomène provoque des variations réversibles de conductance du nanofil, qui ont déjà été étudiées dans d'autres travaux pour la réalisation de capteur [68].

Afin de comprendre l'impact du taux d'humidité sur la conductance du fil, des mesures en atmosphère contrôlée ont été effectuées. L'échantillon a été introduit dans un dessiccateur. La figure 2.15 représente l'évolution de la conductance d'un nanofil en fonction de l'hygrométrie dans l'enceinte, pour une température constante de 23 °C. La tendance indique que la conductance du nanofil augmente lorsque la présence d'eau diminue. Dans d'autres travaux concernant l'électromigration de nanofil d'Or [60, 63, 69], la température à partir de laquelle le processus d'électromigration débute a été mesurée autour de 120 °C. À cette température, l'eau peut être désorbée de la surface, améliorant ainsi les propriétés de conduction électrique du nanofil. Lorsque la mise sous tension est stoppée et que le nanofil reste à température ambiante pendant plusieurs heures, la conductance retombe à sa valeur

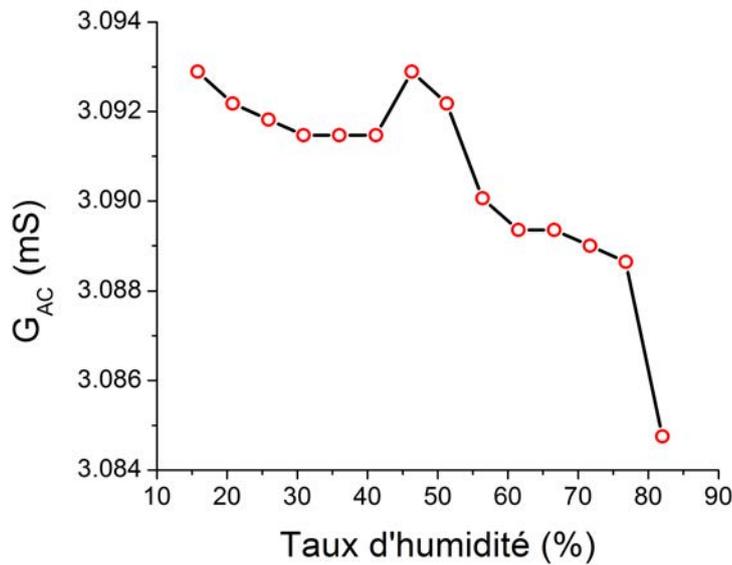


FIGURE 2.15 – Graphique représentant l'évolution de la conductance d'un nanofil en fonction du taux d'humidité à une température constante de 23 °C. L'échantillon est introduit dans un dessiccateur pendant toute la mesure. G_{AC} est mesurée à tension V_{DC} nulle. La conductance diminue globalement avec l'augmentation du taux d'humidité. L'origine du saut observée autour des points d'abscisse 50 % n'est pas établie.

initiale. Cette observation indique que de l'eau s'est de nouveau adsorbée sur le nanofil. Le caractère réversible de l'augmentation de conductance à la mise sous tension confirme bien l'hypothèse de la désorption d'éléments par étuvage. En effet, le recuit du nanofil n'est pas un phénomène réversible. C'est pourquoi l'élévation par effet Joule de la température du nanofil amène de façon contre-intuitive à une augmentation de la conductance mesurée. Cette remarque n'est valable qu'à la mise sous tension du nanofil. Une fois la désorption terminée, l'effet Joule entraîne naturellement une diminution de la conductance. Il arrive cependant de constater que la conductance du nanofil ne décroît pas jusqu'à sa valeur initiale. De façon générale, la désorption d'éléments pas étuvage est alors accompagnée d'un recuit du nanofil. La section suivante présente l'impact du recuit d'un nanofil sur la topologie de celui-ci.

2.2.5 Topologie des nanofils et localisation de la rupture

À l'origine étudiée pour son caractère destructif, l'électromigration est un phénomène modifiant la structure atomique d'un matériau conducteur. Comme nous l'avons expliqué dans les parties 2.2.1 et 2.2.4, l'électromigration est intimement liée à la température et aux propriétés conductrices locales du matériaux, directement affectées par la présence de défauts cristallins. Dans les images de nanofils électromigrés présentées par les figures 2.16 (a) et 2.19, le point de rupture n'est pas situé au

centre du nanofil. Alors que la section du nanofil la plus mince, correspondant à la constriction, devrait représenter le lieu privilégié de césure, les mesures démontrent que la rupture a lieu de façon excentrée du côté de l'électrode source.

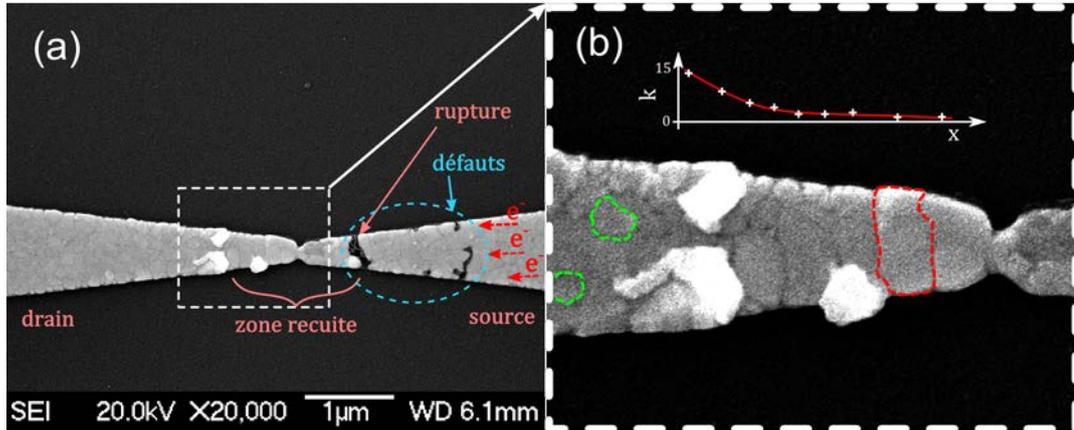


FIGURE 2.16 – Les figures (a) et (b) sont des images MEB représentant un nanofil électromigré. L'image (b) est un agrandissement de la zone indiquée en pointillés blancs dans l'image (a). L'électrode drain est à gauche de la constriction, l'électrode source à droite. Les électrons viennent de l'électrode source puis se dirigent vers l'électrode drain. L'arrangement et la taille des joints de grains, visibles dans la figure (b) en rouge et en vert, mettent en évidence un recuit inhomogène du nanofil par effet Joule. Le nombre de joints de grains k , dénombré pour quelques positions le long de l'axe x (sens du nanofil), est représenté par la courbe rouge de la partie supérieure de l'image. Le nombre de joints de grains a été dénombré pour quelques positions le long du nanofil. La zone la plus recuite est indiquée sur la figure (a). Des défauts, dont la rupture, sont visibles du côté de l'électrode source, en dehors de la zone recuite. Le point de rupture ne se situe pas au niveau de la constriction car l'électromigration opère là où le nombre de joints de grains est le plus important. La présence de plusieurs défauts démontre que l'électromigration est active en plusieurs lieux à la fois. Pendant l'électromigration, ces différents défauts sont en compétition.

Un échauffement par effet Joule a lieu dès qu'un courant traverse le nanofil. Ainsi, même avant que l'électromigration ne débute, chaque partie du nanofil s'élève en température. On considère le nanofil comme une succession de n éléments résistifs de même longueur L , et de même résistivité ρ . L'échauffement de chaque portion de section S_i du nanofil est fonction de la puissance dissipée par effet Joule $P_{J_i} = \rho \frac{L}{S_i} I^2$. Ainsi, la puissance dissipée maximale est obtenue pour la section S_i la plus petite, c'est-à-dire au niveau de la constriction. Pour un nanofil de géométrie papillon (figure 2.16 (a)), le gradient de section de chaque côté de la constriction implique une température qui décroît à mesure que la section s'élargie. En accord avec la partie 2.2.4, le recuit du nanofil n'est donc pas homogène. L'arrangement atomique au niveau de la constriction est donc modifié [57]. Ce phénomène a pour conséquence de faire croître la taille des monocristaux présents à cet endroit (entourés en rouge pointillé sur la figure 2.16 (b)). Les monocristaux entourés en vert

pointillé, en dehors de la zone recuite, sont de taille plus petite. Proche de la constriction, l'ensemble des joints de grains s'arrange le long du nanofil comme une série de monocristaux sur l'axe transversal du nanofil, à l'image de la structure d'un bambou [57]. Du côté de l'électrode source, le même phénomène de recuit se produit de façon symétrique. Le choix de représenter le côté de l'électrode drain dans la figure (b) est fait pour une question de visibilité des joints de grains. La courbe rouge sur la partie supérieure de la figure représente le nombre de joints de grain n , en fonction de la position sur le nanofil.

Cependant, comme nous l'avons expliqué en introduction, l'électromigration opère par l'intermédiaire des défauts cristallins. En accord avec différents travaux sur l'étude de ce phénomène [57, 70], les résultats mettent en évidence que l'électromigration est plus effective à l'intersection de plusieurs joints de grains. C'est-à-dire là où l'on trouve le plus de monocristaux, en dehors de la zone recuite, indiquée sur la figure 2.16 (a). Puisque les électrons se déplacent de l'électrode source vers l'électrode drain, ils déplacent d'abord les atomes du côté de l'électrode source en créant des défauts visibles sur la zone entourée en bleue pointillée dans la figure 2.16 (a). C'est pourquoi la rupture du nanofil apparaît très souvent du côté de la source. Les défauts croissent de façon compétitive à mesure que l'électromigration progresse, jusqu'à la rupture du nanofil.

Même si l'identité de l'électrode source est connue par avance, l'influence simultanée de l'électromigration et du recuit du nanofil par effet Joule empêchent la prédiction exacte du lieu de rupture. En effet, le gradient de joints de grains dépend alors de plusieurs paramètres :

- Les paramètres de dépôt métallique comme la température et la pression peuvent varier d'une expérience à l'autre. Les propriétés cristallines et conductrices de l'Au ne sont donc pas identiques entre les échantillons.
- Les dimensions géométriques, et plus particulièrement la taille des constriction, varient légèrement d'un nanofil à l'autre.
- La température atteinte pendant le recuit peut varier en raison des paramètres précédents [60].

2.2.6 Évolution de la morphologie du nanofil durant l'électromigration

Dans le but d'observer l'évolution de l'électromigration sur la morphologie du nanofil, plusieurs mesures ont été réalisées. Sur quatre nanofils distincts, le processus d'électromigration a été stoppé à différentes étapes, correspondant à une perte de conductance initiale en pourcentage. Ce pourcentage d'électromigration Γ est calculé à partir du rapport de la mesure de $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{initiale}$ et de $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{finale}$. Il est égale

à :

$$\Gamma = \left[1 - \frac{G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{finale}}{G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{initiale}} \right] \times 100 \quad (2.6)$$

Les figures 2.17 (a), (b), (c) et (d) révèlent plusieurs informations. On remarque sur ces images que la constriction (index (1)) n'a pas subi de modification. L'électromigration a créé des défauts sur l'électrode source, comme observé précédemment. De façon générale, lorsque le pourcentage électromigré Γ augmente, on constate que la proportion de défauts (index (2), en sombre sur l'image) est de plus en plus importante. Alors que l'électromigration progresse ($\Gamma \nearrow$), la valeur de $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{finale}$ a tendance à diminuer. Cette tendance n'est cependant pas vérifiée pour les nanofils (c) et (d). En effet, $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{finale}(c) \approx G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{finale}(d)$ alors que $\Gamma(c) < \Gamma(d)$. Si l'on s'intéresse à la conductance initiale du nanofil (d), on a $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{initiale}(d) = 5.271$ mS. Cette valeur est supérieure à celle des autres nanofils. Ainsi, bien que le pourcentage $\Gamma(d)$ soit plus avancée (40 %), la conductance finale atteinte exprimée par $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{finale}(d)$ reste de l'ordre de celle atteinte par le nanofil (c). En ce qui concerne le nombre et la taille des défauts, on remarque que leur apparence est semblable pour les images (c) et (d). Cette observation est en accord avec le fait que $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{finale}(c) \approx G_{AC}|_{V_{DC}=0V}^{finale}(d)$.

Les figures 2.17 (c) et (d), pour lesquelles Γ vaut respectivement 30 % et 40 %, comportent plusieurs défauts. Ces défauts s'étalent sur une zone plus large que pour les nanofils (a) et (b). Comme dans la figure 2.16, les images (c) et (d) mettent en évidence que le processus d'électromigration agit à plusieurs endroits en même temps. L'article de M.-M. Mennemanteuil [60] décrit comment la réponse optique non linéaire de la luminescence peut être utilisée pour cartographier la position exacte du lieu de rupture, parmi plusieurs zones en compétition. Cette technique, utilisée en temps réel, ne permet cependant pas de prédire le point de rupture avant que l'électromigration ne débute. Ce qui signifie dans notre cas l'impossibilité de l'utiliser pour déterminer la position exacte de la future jonction tunnel pendant l'étape de fabrication des échantillons.

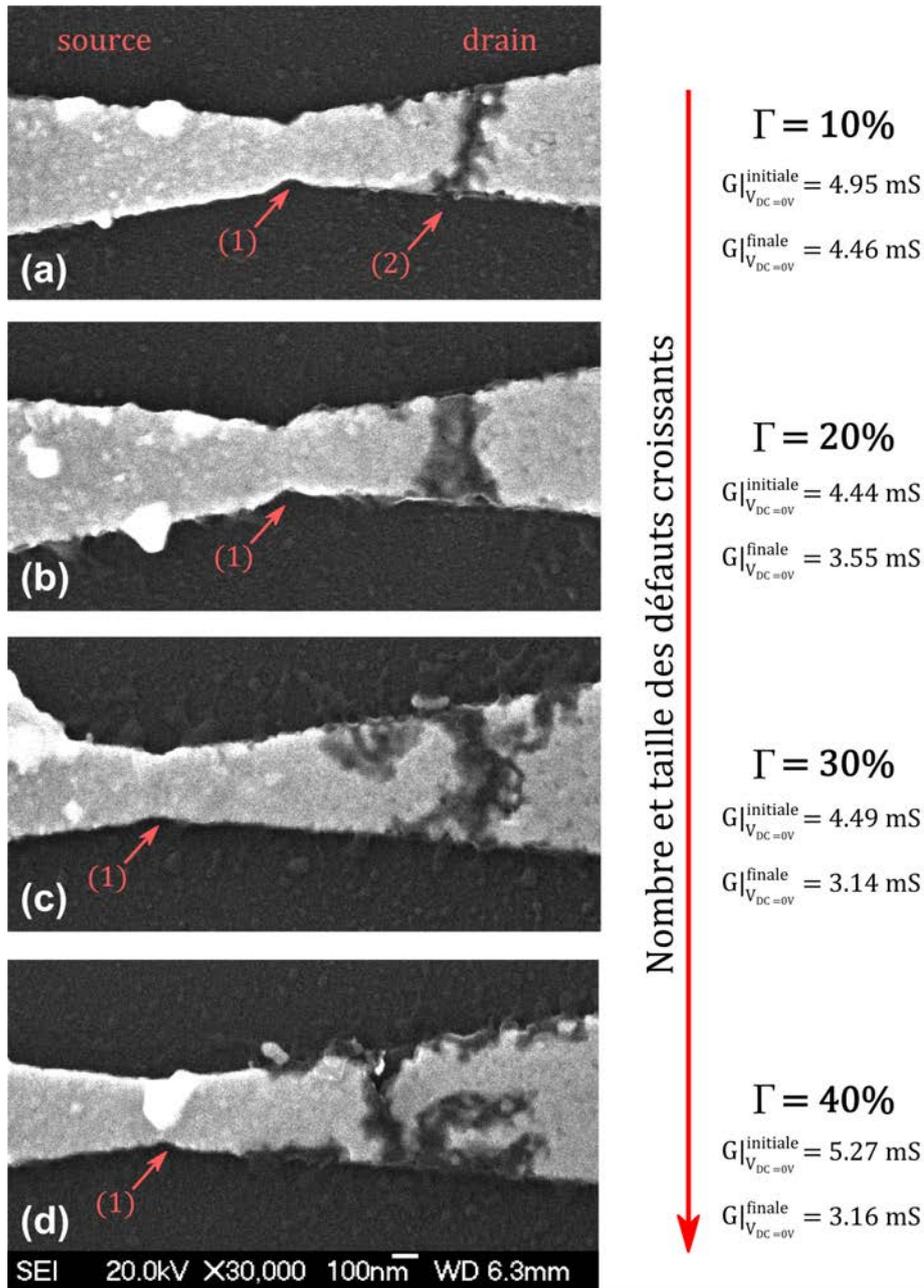


FIGURE 2.17 – Images MEB de l'évolution de la morphologie des nanofils de géométrie papillon durant l'électromigration. Les images (a),(b),(c) et (d) correspondent à des nanofils différents pour lesquels l'électromigration a été interrompue à une perte de conductance nommée Γ , indiquée sur la partie droite en pourcentage. L'index (1) correspond à la constriction centrale du nanofil. L'index (2) représente la zone où laquelle l'électromigration opère.

Le manque d'informations sur la position exacte de la jonction tunnel a eu pour conséquence de limiter les possibilités d'architecturer l'environnement électromagnétique autour de la source lumineuse. En effet, une des pistes explorées durant cette thèse concerne l'ajout d'éléments optiques autour de la jonction. Ces éléments ont pour but de modifier les propriétés de rayonnement des jonctions tunnel. Dans

notre étude, nous avons essayé de construire une antenne optique de type Yagi-Uda [71], en utilisant la zone d'électromigration comme point d'alimentation de l'antenne.

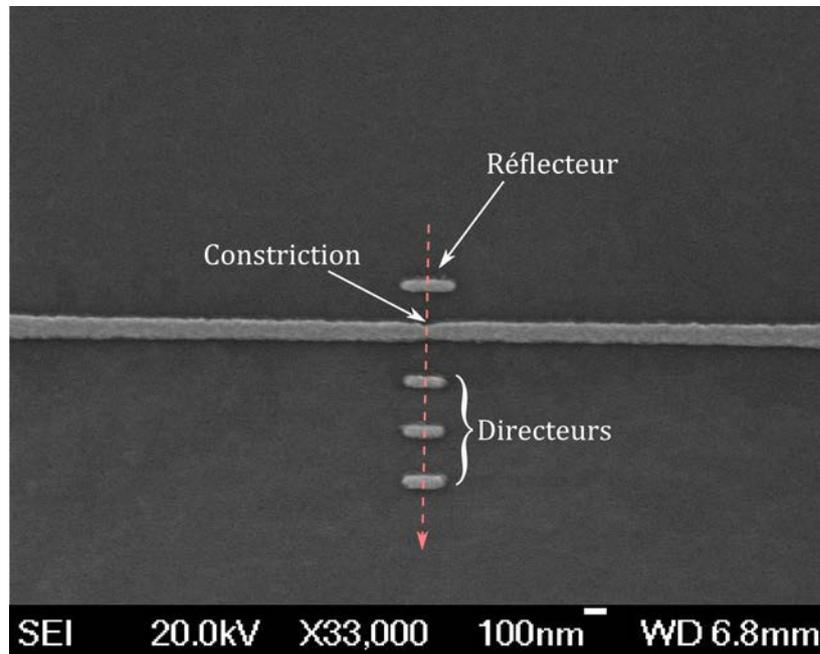


FIGURE 2.18 – Image MEB de l'ajout d'une structure d'antenne optique de type Yagi-Uda. Le milieu du nanofil, de géométrie filaire, est repéré par une constriction. Pendant l'étape de lithographie à faisceau d'électrons, un élément réflecteur et 3 éléments directeurs sont ajoutés autour de la constriction. L'axe rose indique le sens et la direction supposés de l'émission lumineuse.

Différents tests ont néanmoins été effectués, et la figure 2.18 en est un exemple. Sur cette image, le nanofil est de forme linéique. Le centre du nanofil est caractérisé par une constriction, réalisée dans le but de provoquer l'électromigration à cet endroit spécifique. Alignés avec ce défaut, on observe l'ajout d'éléments métalliques formant une antenne optique de type Yagi-Uda [71]. L'élément réflecteur a pour rôle de réfléchir la lumière émise par la jonction tunnel, jouant le rôle du point d'alimentation. Les éléments directeurs dirigent la lumière dans la direction déterminée par l'axe perpendiculaire, en rose pointillée sur la figure. Ce type de structure est réalisé en même tant que la première étape de lithographie. Comme nous l'avons expliqué précédemment, la difficulté de prédire la localisation exacte de la rupture, avant électromigration, ne nous permet pas de placer de façon optimale ce type d'éléments. La position de la jonction tunnel étant déterminée après électromigration, l'antenne Yagi-Uda se retrouve systématiquement excentrée par rapport à la source lumineuse, lieu de rupture.

2.2.7 Topologie des jonctions

Les figures 2.19 (a) et (b) représentent le type de jonctions obtenues par électromigration en tension continue. Ces images MEB permettent de constater l'étroitesse des jonctions réalisées. La résolution du MEB n'est pas suffisante pour distinguer clairement l'interstice séparant les deux électrodes. La dernière mesure en conductance de la jonction de la figure 2.19 (a), à $V_{DC} = 0$ V, est de $G|_{V_{DC}=0V} = \beta G_0$, avec $\beta = 4.27 \times 10^{-4}$ et $G_0 = \frac{2e^2}{h} = 7.748 \times 10^{-5}$ S, le quantum de conductance. Le facteur 2 correspond à la distinction de deux canaux quantiques (un canal pour l'électron de spin haut et un canal pour l'électron de spin bas). La figure 2.19 (c) représente une caractéristique courant/tension de la jonction (a). La non-linéarité de la réponse du courant et la valeur de $G|_{V_{DC}=0V} < G_0$ confirment que le régime de conduction est tunnel. Même si la résolution n'est pas assez suffisante pour observer en détail le lieu de rupture, on remarque cependant que la topologie des jonctions est assez différentes sur les figures 2.19 (a) et (b). Le caractère stochastique de l'électromigration des nanofils implique la formation de jonctions à géométries complexes, qui ne s'apparentent pas à une structure de plans parallèles.

2.2.8 Stabilité des jonctions dans le temps

La stabilité des jonctions réalisées dépend de plusieurs paramètres. Comme nous l'avons abordé dans la partie 2.3.2, si le champ électrique induit par la tension appliquée est trop intense, la jonction peut être détruite de façon catastrophique. Le fait que les jonctions tunnels soient fabriquées et caractérisées en conditions ambiantes implique aussi la présence de contaminants contenus dans l'air et pouvant détériorer les propriétés de la jonction. Il est ainsi possible que ces contaminants s'adsorbent au sein même de la jonction. Les caractéristiques électriques de la jonction sont alors modifiées.

Afin de caractériser la stabilité des jonctions formées, des traces temporelles de $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}$ ont été réalisées pour différentes jonctions. Les figures 2.20 (a) et (b) présentent les mesures effectuées sur deux jonctions tunnels particulièrement stables (durant plusieurs heures).

La valeur moyenne de la conductance de la jonction (a) est évaluée à $G_{AC}|_{V_{DC}=0V} \approx 10^{-2} G_0$. La mesure est stable avec une variation de ± 400 nS pendant tout le temps de la mesure, soit presque 4 jours. La stabilité de la jonction à $V_{DC} \approx 0V$ est donc confirmée par ces mesures. Cependant, il arrive aussi que la jonction ne reste pas stable sur un intervalle de temps aussi long. C'est le cas de la jonction (b). Après une mesure de la conductance $G_{AC} \approx 6.0 \times 10^{-2} G_0$ stable pendant environ 12 heures, on observe une remontée brutale de la conductance qui

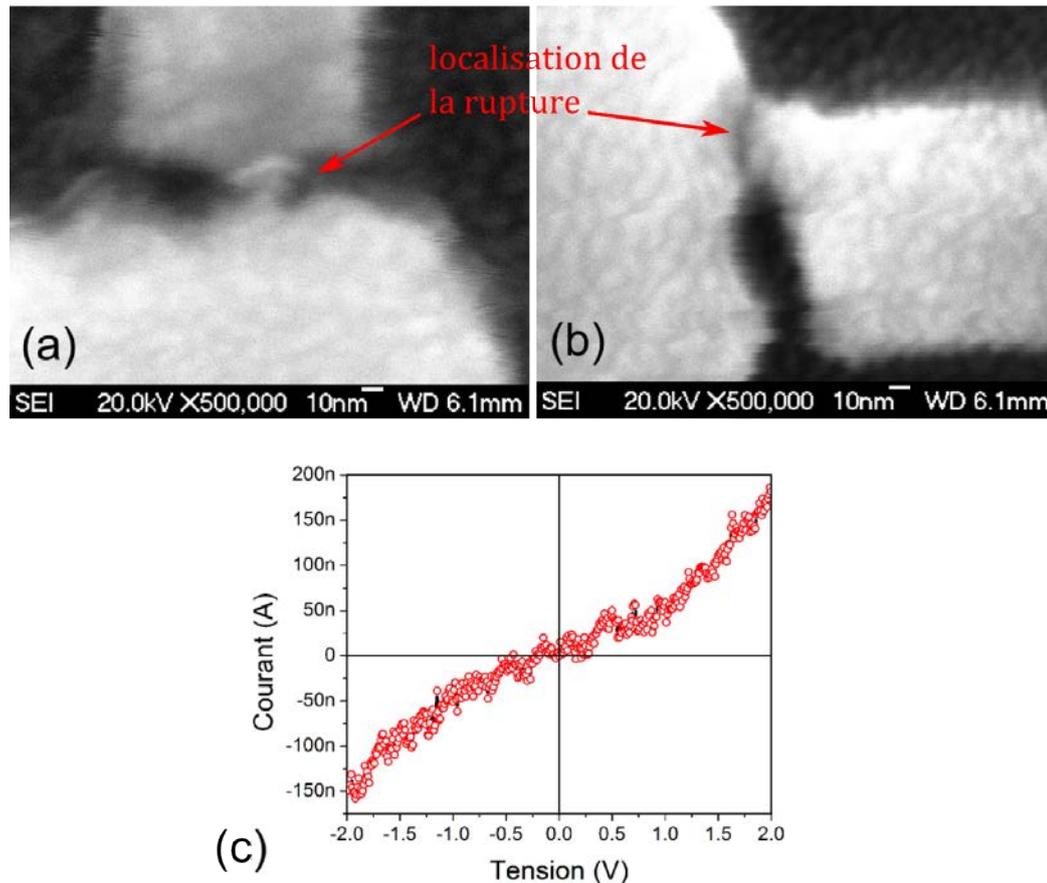


FIGURE 2.19 – Les figures (a) et (b) représentent des images MEB de nanofils électromigrés en tension continue. La localisation des jonctions tunnels est indiquée en rouge. Le graphique de la figure (c) est une caractéristique I(V) de la jonction de la figure (a). La résolution du MEB est insuffisante pour mesurer l'interstice, mais les images (a) et (b) mettent clairement en évidence que la distance de séparation est faible.

atteint une valeur au dessus de G_0 . Cette remontée soudaine correspond à l'obturation de la jonction par des adatoms d'Au, des polluants ou encore des agrégats atomiques divers. Il est aussi important de noter que beaucoup de jonctions ont une conductance qui dérive dans le temps, ce qui rend la caractérisation électriques et optiques difficile. Dans le reste du manuscrit, les propriétés qui sont discutées ont été déterminées sur des jonctions stables sur le temps de mesure pour caractériser leur propriétés électriques et optiques.

Malgré les instabilités mises en évidence par la figure 2.20 (b), on constate tout de même que les propriétés conductrices des jonctions peuvent dans certains cas rester stables pendant quelques heures dans des conditions ambiantes. L'amélioration de la durée de vie moyenne des jonctions pourrait être menée en contrôlant la qualité du milieu environnant. Une solution consisterait à l'encapsulation de la jonction dans un milieu protecteur et isolant tel que le verre ou l'Alumine (Al_2O_3). Atteignant déjà une stabilité suffisante pour notre étude, le choix de travailler dans

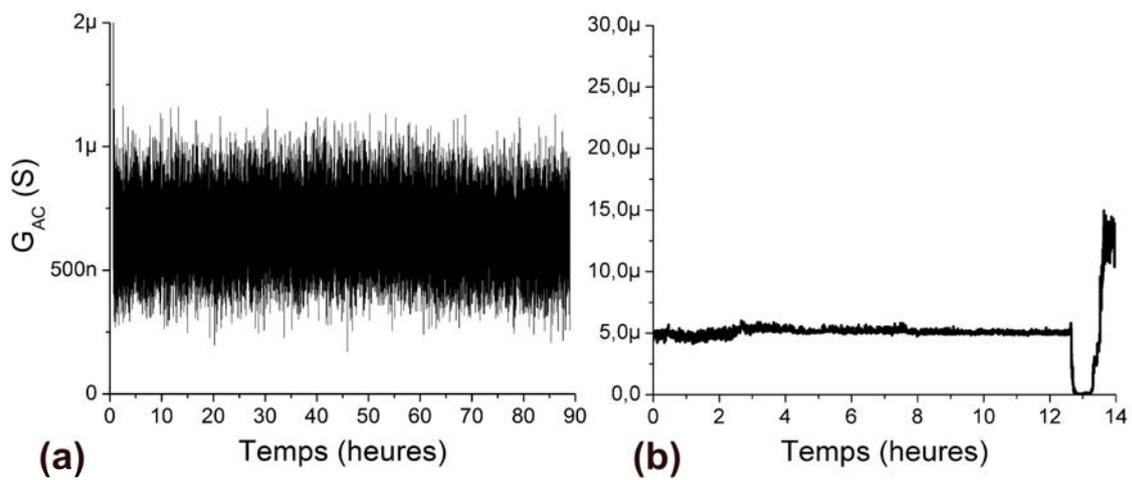


FIGURE 2.20 – Les figures (a) et (b) représentent l'évolution de la mesure de $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}$ de deux jonctions tunnels dans le temps. L'intervalle de temps entre chaque mesure est de 10 s. Le temps complet de la mesure est d'environ 4 jours pour la figure (a) et de plusieurs heures pour la figure (b)

des conditions ambiantes a été maintenu par soucis de simplicité.

2.2.9 Transports diffusif et balistique durant l'électromigration

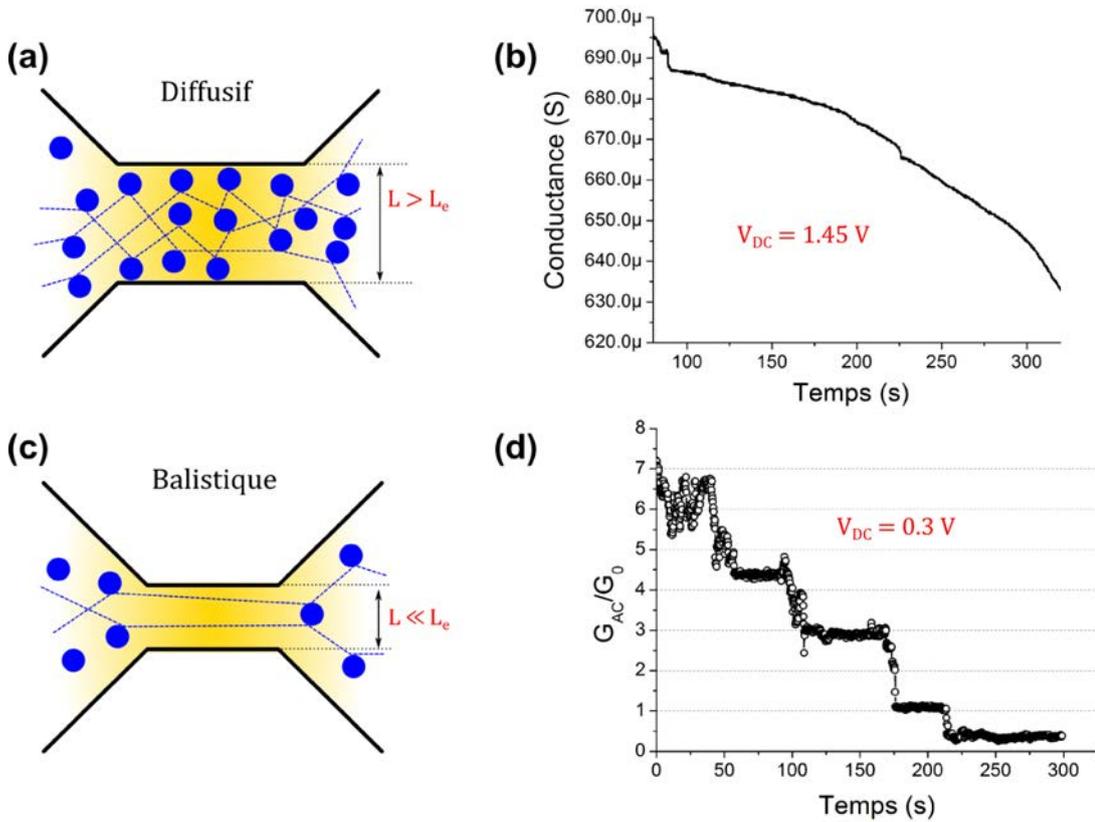


FIGURE 2.21 – Schémas et mesures illustrant les régimes de transport diffusif et balistique au cours du temps. (a) et (b) représentent respectivement un schéma et une mesure de transport diffusif. Sur les schémas (a) et (c) les trajectoires typiques des électrons sont illustrées en bleues. Les parties en jaune correspondent au métal. (c) et (d) représentent respectivement un schéma et une mesure de transport balistique. Dans la figure (b), la décroissance de la conductance est quasi-continue pendant l'électromigration. Pour la figure (d), la conductance, normalisée par G_0 , chute de façon discontinue par palier. La tension appliquée est de 0.3 V tout au long de la mesure. Les paliers qui se superposent aux lignes pointillées correspondent à un nombre entier de canaux de conductances ouverts.

L'amincissement progressif de la structure par électromigration conduit à trois différents régimes de transports : diffusif, balistique et tunnel.

Sous l'effet d'une différence de potentiel, les électrons subissent des collisions lors de leur transport (*c.f.* partie 2.2.4). Le libre parcours moyen des électrons L_e , c'est-à-dire la longueur moyenne parcourue par un électron entre deux collisions successives, dépend des propriétés cristallines du métal et de la température. À température ambiante et pour des couches minces d'Au, cette grandeur est évaluée à $L_e = 50-60$ nm [72, 73]. Pour des dimensions géométriques supérieures à L_e , le régime de transport est diffusif (voir figure 2.21 (a)). La trace temporelle de la figure 2.21 (b)

illustre le comportement de la conductance pendant que l'électromigration opère en régime de transport diffusif. La chute de conductance est quasi-continue. Elle est provoquée par le processus d'électromigration, qui correspond au rétrécissement de la section du nanofil, et par l'effet Joule. Bien que la chute de la conductance s'accélère, on observe peu de discontinuités dans son évolution.

Lorsque la dimension caractéristique du système L devient très petite devant $L_{e,r}$, le régime de conduction devient alors balistique (voir figure 2.21 (c)). Dans ce régime de transport, les collisions inélastiques entre électrons deviennent négligeables et ne contribuent plus à la résistance du conducteur. Seules les interactions élastiques avec transfert de moment perdurent et la loi d'Ohm n'est plus valable. Pour exprimer la conductance, Landauer décrit ce régime comme le passage d'électrons à travers un guide d'onde, pouvant supporter plusieurs modes appelés canaux de conduction [74]. La conductance est exprimée par la relation de Landauer-Büttiker :

$$G = \sum_{i=1}^n G_i = G_0 \sum_{i=1}^n T_i$$

Dans cette expression, $0 < T_i < 1$ correspond à la probabilité de transmission d'un électron par le $i^{\text{ème}}$ canal. Cette grandeur définit la conductance d'un système composé de deux atomes en contact, avec une probabilité de transmission idéale $T = 1$, sans réflexions. Lorsqu'il n'y a pas de réflexions, la conductance peut alors directement s'écrire $G = G_0 \times N$, avec N un nombre entier correspondant au nombre de canaux de conductance en parallèle. C'est le cas de la figure 2.21 (d). La conductance normalisée par G_0 évolue de façon discontinue et en plateau. La fin de l'électromigration est caractérisée par la destruction des derniers canaux de conduction reliant les deux parties du nanofil. Lors de cette étape, le nombre de canaux encore ouverts est quantifiable et correspond à un nombre entier, multiple du quantum de conductance G_0 . Ainsi de $t \approx 100$ à 175 s, trois canaux de conduction sont ouverts. Des déviations sont cependant observées pour des nombres de canaux > 3 . Ce même type d'observation a déjà été constaté dans d'autres travaux similaires [54, 75]. Ces déviations sont généralement attribuées à la présence de réflexions aux contacts.

2.3 Propriétés électroniques des jonctions

2.3.1 Transport par effet tunnel

À l'issue de l'électromigration, le dernier régime de conduction rencontré est le transport par effet tunnel. Ce régime ne peut être décrit que du point de vue quantique. Un électron de fonction d'onde Ψ , possède une probabilité $|\Psi|^2$ de traverser une barrière de potentiel. Cette barrière de potentiel est définie par la distance d

séparant les deux électrodes d'aire A , et par les énergies d'extraction de chaque électrode : Φ_{source} et Φ_{drain} (voir figures 2.22 (a) et (b)).

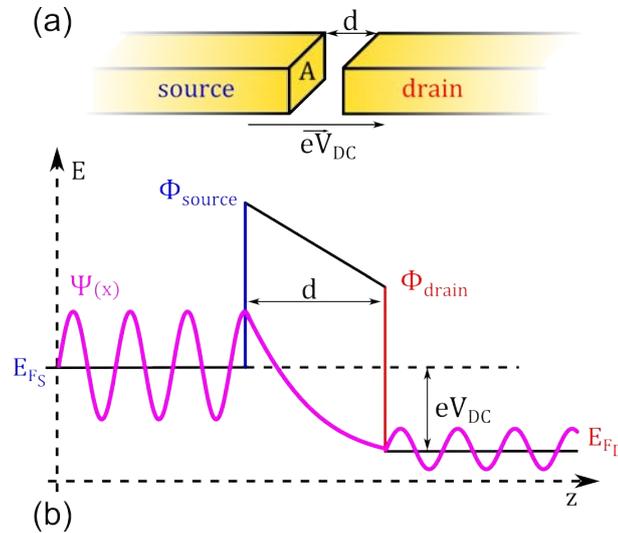


FIGURE 2.22 – La figure (a) est un schéma simplifié de la jonction tunnel. La tension, appliquée entre le drain et la source, est égale à eV_{DC} . La distance séparant les deux électrodes d'aire A vaut d . La figure (b) est une représentation énergétique de la barrière tunnel. L'électron, de fonction d'onde $\Psi(x)$, possède une probabilité $|\Psi|^2$ de traverser la barrière tunnel. Pendant la traversée, la fonction d'onde subit une décroissance exponentielle. La barrière tunnel est définie par la hauteur des énergies d'extractions Φ_{source} et Φ_{drain} ainsi que par sa largeur d . E_{FD} et E_{FS} désignent les niveaux de Fermi du drain et de la source, avec $E_{FS} - E_{FD} = eV_{DC}$.

Considérons l'énergie eV d'une barrière polarisée par une tension V_{DC} . L'énergie d'extraction moyenne Φ est définie telle que $\Phi = \frac{\Phi_{source} + \Phi_{drain}}{2}$. En s'appuyant sur les travaux de Simmons [76], lorsque $eV < \Phi$, le courant tunnel I_T peut s'exprimer sous la forme :

$$I_{T(eV < \Phi)}(V) = V_{DC} \times \frac{e^2}{h^2} \frac{A\sqrt{2m_e\Phi}}{d} \exp^{-B\sqrt{\Phi}} \quad (2.7)$$

Avec m_e la masse d'un électron et $B = \frac{4\pi d\sqrt{2m_e}}{h}$.

Dans ces conditions de faible polarisation, on remarque que I_T varie de façon linéaire avec la tension. La valeur de la conductance autour de $V_{DC} = 0$ est alors définie par le terme $\frac{e^2}{h^2} \frac{A\sqrt{2m_e\Phi}}{d} \exp^{-B\sqrt{\Phi}}$.

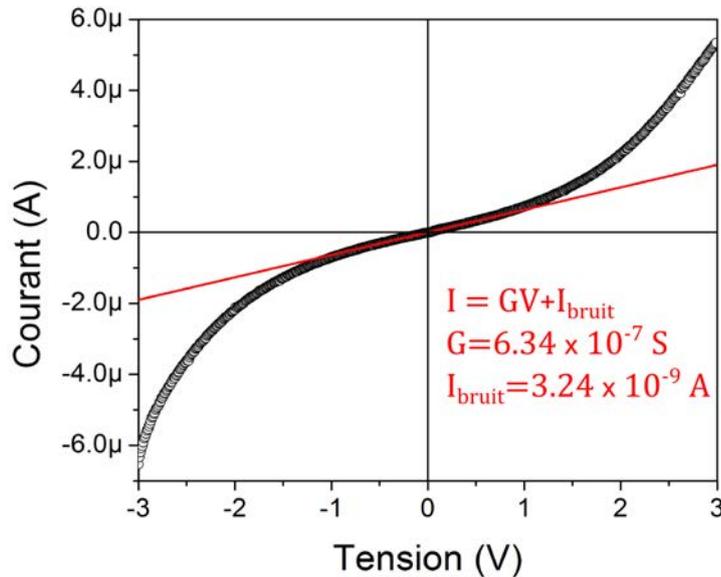


FIGURE 2.23 – La courbe noire représente l'évolution du courant tunnel en fonction de la tension appliquée. La courbe rouge est une régression linéaire effectuée pour des tensions comprises entre -800 et 800 mV où l'évolution du courant est linéaire. Au delà de ces tensions, l'évolution est non linéaire. La pente a , correspondant à la mesure de G à tension ≈ 0 , vaut $G|_{V_{DC}=0V} = 6.34 \times 10^{-7}$ S. La courbe est asymétrique dans les parties non linéaires. En effet $I_T(-3V) = -6.53 \times 10^{-6}$ A alors que $I_T(+3V) = 5.33 \times 10^{-6}$ A. Cette différence suggère que les potentiels d'extraction Φ_{source} et Φ_{drain} ne sont pas égaux.

2.3.2 Caractéristiques courant/tension et instabilités

Pour déterminer le caractère tunnel d'une jonction, une rampe de tension de $-V_{DC}$ à $+V_{DC}$ est appliquée à ses bornes. La caractéristique courant/tension $I(V)$ est ainsi mesurée. Le gain du convertisseur courant/tension est ajusté de 10^2 à 10^7 A.V $^{-1}$ suivant la grandeur du courant mesuré. La figure 2.23 représente une courbe $I(V)$ typique. On remarque que le courant évolue de façon non linéaire pour les tensions telles que $|V_{DC}| > 800$ mV. En accord avec l'équation 2.7, l'évolution de I_T est linéaire pour les tensions $|V| < 800$ mV. Une régression linéaire, en rouge sur la figure, est effectuée afin de déterminer la valeur de la conductance autour de 0 V, $G|_{V_{DC}=0V}$. Pour la jonction de la figure 2.23, le coefficient directeur $G|_{V_{DC}=0V}$ vaut 6.34×10^{-7} S. L'ordonnée à l'origine b n'est pas nulle. Cette valeur indique l'erreur de lecture du courant qui correspond à une mesure résiduelle dans le circuit. L'erreur est fonction de l'impédance du circuit. On remarque aussi sur la figure 2.23 que l'évolution du courant n'est pas symétrique en fonction de la tension. $I_T(-3V) = -6.53 \times 10^{-6}$ A alors que $I_T(+3V) = 5.33 \times 10^{-6}$ A. Cette différence suggère que les potentiels d'extraction Φ_{source} et Φ_{drain} ne sont pas égaux. Le sens pour lequel passe le moins de courant correspond à la situation où les électrons rencontrent la barrière la plus haute. Dans son manuscrit de thèse [77], Mangin démontre que cette asymétrie

peut être interprétée comme une différence de géométrie entre les deux électrodes formant la jonction. L'électrode la plus fine possède le potentiel d'extraction le plus faible des deux. Cet argument est justifié dans les travaux de Mayer [78] par le fait que plus l'électrode est étroite, plus l'effet de pointe induit par le champ électrique facilite l'extraction des électrons.

Afin de déterminer si la mesure de la caractéristique courant/tension est destructive ou non, la caractéristique $I(V)$ est réalisée en aller-retour de façon successive. Les figures 2.24 (a) et (b) illustrent la mesure pour deux jonctions différentes. Les courbes noires correspondent à la mesure du courant avec l'application d'une rampe de tension croissante (aller : $-V$ à $+V$). Les courbes rouges représentent la mesure du courant pour l'application de la rampe de tension décroissante (retour : $+V$ à $-V$). Pour la figure (a), les mesures ne se superposent pas. Ce critère indique que la première rampe de tension a modifié la jonction. La rampe réalisée en retour, en rouge, indique un courant environ deux fois inférieur dans la partie des tensions négatives. La mesure est non répétable. On remarque aussi que le bruit de mesure augmente de façon importante avec la tension. En ce qui concerne la figure (b), les deux caractéristiques $I(V)$ se superposent. La mesure de la caractéristique $I(V)$ n'a pas altéré la jonction et la mesure est répétable. Dans certains cas, la mesure de la caractéristique $I(V)$ entraîne une chute brutale du courant mesuré, correspondant à une altération dramatique de la jonction. Le courant ne devient plus mesurable avec notre configuration expérimentale.

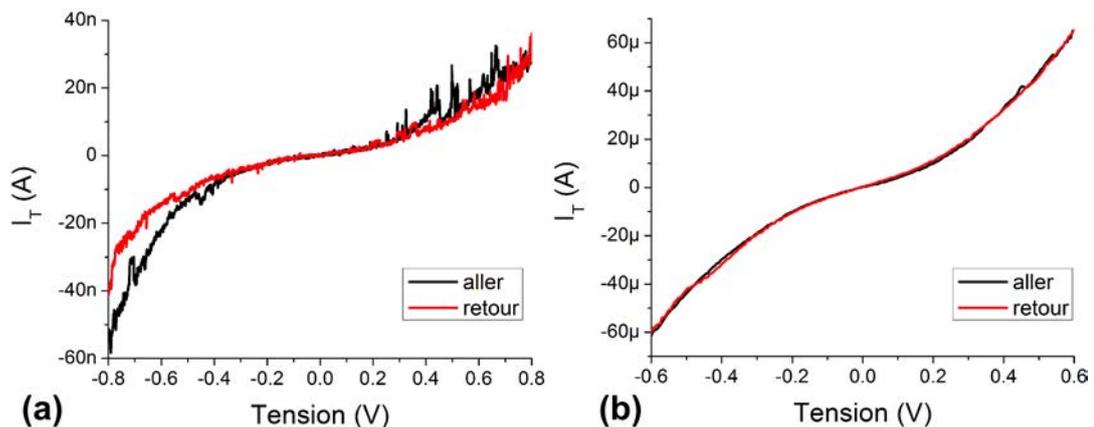


FIGURE 2.24 – Les figure (a) et (b) sont des caractéristiques courant/tension de deux jonctions différentes. Les courbes noires dites en aller représentent les mesures faites en rampe de tension croissante ($-V$ à $+V$). Les courbes rouges dites en retour représentent les mesures réalisées en rampe de tension décroissante ($+V$ à $-V$). On remarque que les mesures aller-retour de la courbe (a) ne se superposent pas. En ce qui concerne la figure (b), les mesures aller-retour se superposent.

Pour comprendre les modifications des paramètres des jonctions suite à une mesure de caractéristique $I(V)$, il est nécessaire de prendre en compte un facteur essentiel. Plus la distance inter-électrode devient faible, plus le champ électrique E dans

cette zone devient important. Si on considère une jonction constituée de deux faces parallèles, le champ s'écrit :

$$E = \frac{V_{DC}}{d} \quad (2.8)$$

Une différence de potentiel de $V_{DC} = 1$ V, appliquée aux bornes d'une jonction de taille $d = 1$ nm, mène à un champ électrique de 10^9 V.m⁻¹. Pour des jonctions à géométries complexes, la présence d'aspérités va certainement contribuer à des exaltations et augmenter la valeur du champ local. Ce champ intense a pour conséquence d'accroître la mobilité des atomes d'une électrode à l'autre, ou encore d'influencer la réorganisation des atomes au sein de la jonction.

Ce type de phénomène est démontré dans les travaux de Binnig et Rohrer à l'aide du microscope à effet tunnel [79]. Les atomes migrent de l'échantillon à la pointe en modifiant ainsi la géométrie de la jonction. Une augmentation abrupte de la conductance peut alors survenir avec un accroissement de la température locale par effet Joule. La stabilité des jonctions peut donc être mise en péril suivant l'intensité du champ électrique appliqué pendant la mesure de la caractéristique I(V).

Les instabilités sur la mesure du courant de la figure 2.24 (a) révèlent aussi la possible présence de contaminants. Ces contaminants peuvent être présents de façon intrinsèque durant le processus de fabrication, comme dans le cas de résidus de résine de lithographie. Mais ces contaminants peuvent aussi provenir de l'environnement de la jonction. La présence de molécule dans l'atmosphère ambiant durant l'expérience peut entraîner une modification de la conductance, transformant ainsi la jonction tunnel en une jonction moléculaire [80, 81].

2.3.3 Mesure de la conductance des jonctions à partir des caractéristiques courant/tension

La conductance est une caractéristique importante de la jonction. Pendant l'électromigration, la conductance dynamique G_{AC} du nanofil est mesurée à partir de la détection synchrone. Une fois la jonction formée, il convient de vérifier si la mesure de G_{AC} reste efficace au vu du changement de conductance du circuit. La mesure du courant I_{AC} extrait par détection synchrone peut dériver si le rapport signal sur bruit devient trop faible. L'augmentation du gain du convertisseur courant/tension pourrait éventuellement remédier à ce problème. Cependant, l'impédance d'entrée du convertisseur courant/tension varie de 50Ω à $10 \text{ k}\Omega$ en fonction du gain sélectionné, ce qui change la résistance du circuit. Ces modifications d'impédance entraîne ainsi une possible dérive de la lecture de G_{AC} par rapport à la mesure de la conductance du fil autour de $0 \text{ V } G|_{V_{DC}=0V}$.

Afin de mettre en évidence cette différence, une mesure comparative de la conductance est extraite de la caractéristique $I(V)$. Pour chacune des mesures réalisées, $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}$ est relevée et $G|_{V_{DC}=0V}$ est évaluée à l'aide d'une régression linéaire autour de 0 V. $G|_{V_{DC}=0V}$ et $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}$ sont ensuite comparées dans les tableaux 2.1 et 2.2. Les tableaux regroupent les données de 2 jonctions différentes, classées en fonction du gain de l'amplificateur courant/tension et de la technique de mesure de la conductance.

TABLE 2.1 – Tableau comparatif de la mesure de $G|_{V_{DC}=0V}$ et de $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}$ d'une jonction de forte conductance, pour différents gains d'amplification du courant.

Gain (A.V ⁻¹)	$G _{V_{DC}=0V}$ (S)	$G_{AC} _{V_{DC}=0V}$ (S)
10 ²	4.84×10^{-6}	5.56×10^{-6}
10 ³	4.82×10^{-6}	4.76×10^{-6}
10 ⁴	4.96×10^{-6}	4.72×10^{-6}
10 ⁵	4.47×10^{-6}	4.35×10^{-6}
10 ⁶	4.96×10^{-6}	4.76×10^{-6}

TABLE 2.2 – Tableau comparatif de la mesure de $G|_{V_{DC}=0V}$ et de $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}$ d'une jonction de faible conductance, pour différents gains d'amplification du courant.

Gain (A.V ⁻¹)	$G _{V_{DC}=0V}$ (S)	$G_{AC} _{V_{DC}=0V}$ (S)
10 ⁴	1.06×10^{-11}	6.41×10^{-8}
10 ⁵	4.90×10^{-10}	5.52×10^{-8}
10 ⁶	1.56×10^{-10}	5.46×10^{-8}
10 ⁷	1.81×10^{-10}	5.42×10^{-8}

Lorsque la conductance à $V_{DC} \approx 0$ V est proche de l'ordre de grandeur de G_0 , ici $10^{-1} G_0$ pour la jonction du tableau 2.1, on remarque qu'il y a peu de différence entre $G|_{V_{DC}=0V}$ et $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}$. Lorsque le gain du convertisseur I/V est de 10² A.V⁻¹, la mesure de la conductance par détection synchrone diffère d'environ 15% par rapport à la mesure réalisée à partir de la caractéristique $I(V)$ (voir la figure 2.23). Pour des gains plus élevés, la différence de mesure est inférieure à 5%.

Si l'on s'intéresse maintenant à la jonction du Tableau 2.2, dont la conductance est $\approx 10^{-5} G_0$, on remarque que les résultats des mesures sont très différents. Pour les gains inférieurs à 10⁶ A.V⁻¹, les courants mesurés pour calculer $G|_{V_{DC}=0V}$ sont trop faibles pour permettre d'extraire une valeur de la conductance en dehors du bruit. En effet, l'erreur associée au coefficient directeur est de l'ordre de la valeur du coefficient lui-même. Ce n'est qu'à partir du gain 10⁶ que la mesure devient possible. En ce qui concerne $G_{AC}|_{V_{DC}=0V}$, on remarque que la mesure varie peu, mais qu'elle est

environ 500 fois supérieure à celle réalisée en courant continue. Cette surestimation de la conductance est caractéristique des problèmes de mesures rencontrés. Lorsque le courant traversant la jonction tunnel (modulé à la fréquence de détection) devient trop faible par rapport au niveau de bruit, le signal I_{AC} mesuré ne correspond plus au courant tunnel mais au bruit de la mesure. Ainsi, même si aucun courant réel résultant de l'application d'un V_{AC} n'est lu, la détection synchrone fournira quand même une mesure erronée, car elle correspond à la mesure du bruit à la fréquence de détection. Le phénomène de couplage capacitif contribue entre autre au bruit de mesure. C'est pourquoi nous avons fait le choix d'écarter la mesure par détection synchrone pour caractériser la conductance des jonctions tunnels formées.

À partir du calcul de la conductance par régression linéaire, une étude statistique des jonctions fabriquées est réalisée sur l'ensemble d'un échantillon de 24 nanofils. Les différentes conductances des nanofils d'un même échantillon, électromigrés en tension continue, sont réparties dans la figure 2.25. Elles y sont triées en fonction de leur valeur par rapport à G_0 .

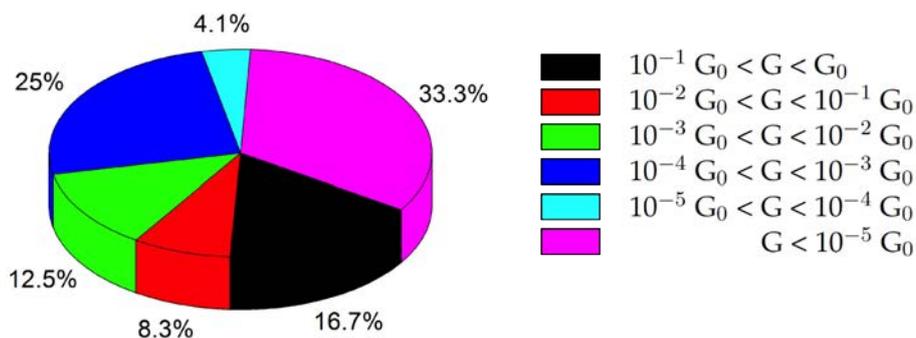


FIGURE 2.25 – Le diagramme représente la répartition des mesures de conductance tunnels obtenues sur un même échantillon.

Environ 67 % des jonctions réalisées possèdent une conductance supérieure à $10^{-5} G_0$. Les 33 % restants représentent les nanofils dont l'électromigration n'a pas été maîtrisée, ou qui étaient déjà rompus avant celle-ci. Parmi les nanofils dont l'électromigration contrôlée est un succès, on remarque qu'environ 25 % des nanofils ont permis de réaliser des jonctions tunnel de conductance à tension nulle proche du quantum de conductance. Les courants enregistrés pour une tension de 1 V correspondent à quelques dizaines de microampère. Plus de 37 % des jonctions réalisées sont comprises entre $10^{-4} G_0$ et $10^{-2} G_0$, avec des courants tunnel de l'ordre du nanoampère pour une tension de 1 V.

Ces données démontrent et confirment les possibilités qu'offre l'électromigration en tant que technique de création d'interstices tunnels. Les conductances mesurées étant dispersées sur 6 ordres de grandeurs, cette technique offre la possibilité d'étudier l'effet tunnel à des courants électriques variant du nA à quelques dizaines de

μA .

2.3.4 Modèle théorique du courant tunnel

Dans la partie précédente, l'équation 2.7 exprime le courant tunnel $I_T(V_{DC})$ valable lorsque $eV_{DC} < \Phi$ et lorsque les jonctions sont symétriques, c'est-à-dire $\Phi_{source} \approx \Phi_{drain}$. Les travaux de W. F. Brinkman dans les années 1970 [82] ont permis de développer, à partir de l'approximation de Wentzel-Kramers-Brillouin (WKB), une expression du courant tunnel pour des jonctions symétriques, asymétriques et de distance d de l'ordre de nanomètre. Le courant I_T est décrit à l'aide de l'approximation de WKB par :

$$I_T = A \frac{2e}{h} \sum_{k_i} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{2}{h} \int_0^d \sqrt{2m_e(\varphi(x, V_{DC}) - E_x)} dx\right) \times [f(E) - f(E - eV)] dE_x \quad (2.9)$$

Avec

$$\varphi(x, V) = \Phi_{source} + \left(\frac{x}{d}\right) (\Phi_{drain} - eV - \Phi_{source}) \quad (2.10)$$

E l'énergie et x la position au sein de la jonction. On remplace V_{DC} par V pour plus de simplicité dans l'écriture. À partir d'un développement en série de la formule 2.9, on en déduit une expression de $G(V)$ puis par intégration $I_T(V)$ telle que :

$$\begin{aligned} G(V) &= G|_{V \approx 0} \left(1 - \frac{A_0 \Delta \Phi}{16 \Phi^{\frac{3}{2}}} V + \frac{9A_0^2}{128 \Phi} V^2\right) \\ I_T(V) &= G|_{V \approx 0} \left(V - \frac{A_0 \Delta \Phi}{32 \Phi^{\frac{3}{2}}} V^2 + \frac{9A_0^2}{384 \Phi} V^3\right) \end{aligned} \quad (2.11)$$

où,

$$A_0 = \frac{4d\sqrt{2m_e}}{3h}, \quad \Delta \Phi = \Phi_{drain} - \Phi_{source} \quad \text{et} \quad \Phi = \frac{\Phi_{drain} + \Phi_{source}}{2}$$

et

$$G|_{V \approx 0} = \frac{I_T}{V_{\approx 0}} = A \frac{\sqrt{2m_e \Phi} e}{d} \left(\frac{e}{h}\right)^2 \times \exp\left(-\frac{4\pi d}{h} \sqrt{2m_e \Phi} e\right) \quad (2.12)$$

Le terme $G|_{V \approx 0}$ (similaire à l'équation 2.7 et extrait des articles [76, 82]) désigne la valeur de la conductance lorsque la tension $V \approx 0$. L'expression de A est en m^2 , d en m , Φ et $\Delta\Phi$ en eV. En remplaçant les constantes par leur valeurs et en exprimant d en Å et A en nm^2 , l'équation 2.12 devient :

$$G|_{V \approx 0} = 3.16 \times 10^{-4} A \frac{\sqrt{\Phi}}{d} \exp(-1.025d\sqrt{\Phi}) \quad (2.13)$$

Ainsi, les expressions 2.11 et 2.13 permettent d'exprimer I_T sous la forme :

$$I_T(V) = 3.16 \times 10^{-4} A \frac{\sqrt{\Phi}}{d} \exp(-1.025d\sqrt{\Phi}) \left(V - \frac{A_0 \Delta\Phi}{32\Phi^{\frac{3}{2}}} V^2 + \frac{9A_0^2}{384\Phi} V^3 \right)$$

$$I_T(V) = A \left(\frac{3.16 \times 10^{-4} \sqrt{\Phi}}{d} V - \frac{2.7 \times 10^{-5} \Delta\Phi}{\Phi} V^2 + \frac{5.53 \times 10^{-5} d}{\sqrt{\Phi}} V^3 \right) \exp(-1.025d\sqrt{\Phi}) \quad (2.14)$$

Les paramètres A , d , Φ et $\Delta\Phi$ des jonctions tunnels électromigrées peuvent être déterminés en procédant à un ajustement numérique des caractéristiques $I(V)$ expérimentales. La méthode des moindres carrés est utilisée à partir de l'équation 2.14 pour déterminer les paramètres Φ , $\Delta\Phi$ et d , avec une aire A imposée. La figure 2.26 illustre l'application du modèle numérique sur deux jonctions quasi-symétriques, c'est-à-dire pour lesquelles $I_T(-V) \approx I_T(+V)$. Les courbes noires indiquent les données expérimentales. Les courbes rouges représentent I_T calculé pour les paramètres indiqués sous la courbe. Les graphiques (b) et (d), correspondant respectivement aux jonctions (a) et (c), représentent les triplets $\{\Phi, \Delta\Phi \text{ et } d\}$ obtenus pour chaque aire A imposée. Les valeurs de A varient entre 10^{-1} et 10^4 nm^2 . La demi-aire sphérique d'un atome d'au correspond environ à $2\pi \times 0.135^2 \approx 10^{-1} \text{ nm}^2$. L'aire de la section d'un nanofil carré de largeur 100 nm vaut 10^4 nm^2 . Ces grandeurs encadrent ainsi l'ensemble des aires envisagées pour les jonctions tunnels étudiées. Les courbes rouges des figures (a) et (c) sont représentées pour une aire médiane de 100 nm^2 .

La mesure de la conductance de la jonction représentée par la figure 2.26 (a) donne $G|_{V_{DC}=0V} = 3.1 \times 10^{-3} G_0$. La distance d calculée est de 7.5 Å pour une aire de 100 nm^2 . Le potentiel d'extraction moyen Φ vaut 1.62 eV et l'écart $\Delta\Phi = -15.4 \text{ meV}$. Ainsi on trouve $\Phi_{source} = 1.63 \text{ eV}$ et $\Phi_{drain} = 1.61 \text{ eV}$. On remarque que Φ_{source} et Φ_{drain} ne diffèrent que d'environ 1%, ce qui permet de considérer $\Phi_{source} \approx \Phi_{drain}$. Les paramètres $\{\Phi, \Delta\Phi \text{ et } d\}$ tendent tout trois à augmenter avec A . La distance d varie de 4.1 à 9.2 Å . Ces distances sont toutes subnanométriques et en accord avec l'hypothèse de Brinkman, où d est de l'ordre du nanomètre. Φ varie de 0.49 à 2.37 eV et $\Delta\Phi$ de -0.005 à -0.023 eV . Toutes les valeurs de potentiels d'extraction calculées sont inférieures à l'énergie d'extraction de l'au massif $E_{Au} = 5.3 \pm 0.1 \text{ eV}$ [83]. Des

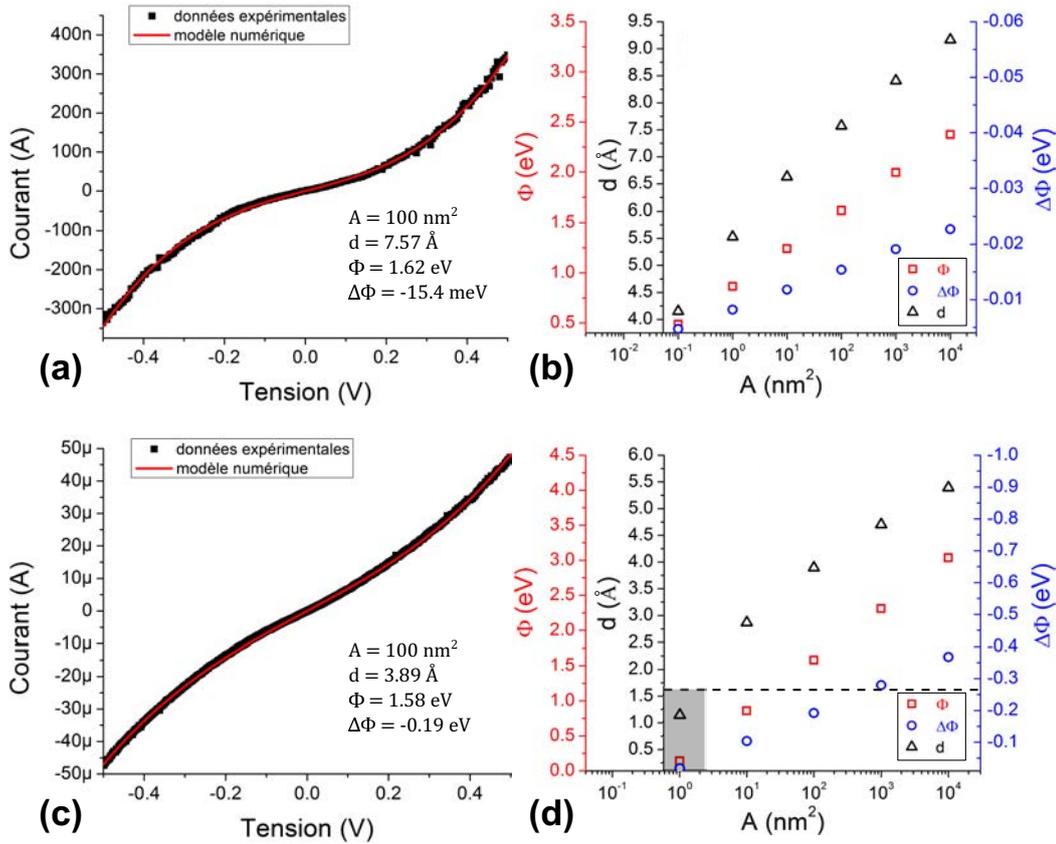


FIGURE 2.26 – Les figures (a) et (c) représentent les caractéristiques $I(V)$ de deux jonctions. Ces caractéristiques sont quasi-symétriques ($I_T(-V) \approx I_T(+V)$). La courbe noire correspond aux données expérimentales et la courbe rouge au modèle de l'équation 2.14, dont les paramètres sont inscrits sur la figure. Les graphiques (b) et (d) représentent l'évolution des différents triplets $\{\Phi, \Delta\Phi$ et $d\}$ extraits par la méthode des moindres carrés en fonction de l'aire A imposée. Ces graphiques correspondent respectivement aux ajustements numériques réalisés sur les courbes expérimentales (a) et (c). La ligne noire indique la distance inter-électrode minimale correspondant à la longueur d'une liaison entre deux atomes d' Au. La partie grisée représente la zone où les paramètres calculés ne sont pas réalistes.

observations similaires ont été réalisées dans les travaux de Mangin [77]. La réduction des énergies d'extractions comparées à celle de l' Au massif peut être attribuée à la présence d'un potentiel image, de polluants adsorbés dans la jonction, ou encore de lacunes au niveau de la structure cristalline [77, 78, 84-86].

La jonction de la figure 2.26 (c) vaut $G|_{V_{DC}=0V} = 0.81 \times G_0$. Comme pour la jonction précédente, les paramètres $\{\Phi, \Delta\Phi$ et $d\}$ augmentent avec l'aire. Toutes les énergies d'extractions calculées sont encore inférieures à l'énergie d'extraction de l' Au massif E_{Au} . La ligne noire indique la distance minimale entre deux atomes d' Au. Elle correspond à la longueur de la liaison Au-Au avec une distance moyenne de 1.7 \AA . Pour cette valeur, les deux électrodes sont en contact. Les paramètres calculés avec une distance inter-électrode inférieure à cette grandeur sont à écarter (zone

grisée). En tenant compte de ces limites physiques, la distance inter-électrodes évolue de 1.7 à 5.4 Å et $\Delta\Phi$ de -0.05 à -0.55 eV. On remarque que les distances d calculées sont quasiment 2 fois inférieures à celles de la jonction précédente. Cette observation est en accord avec le fait que le courant passant à travers la deuxième jonction pour une même tension de 0.5 V est 150 fois supérieur à celui de la première jonction.

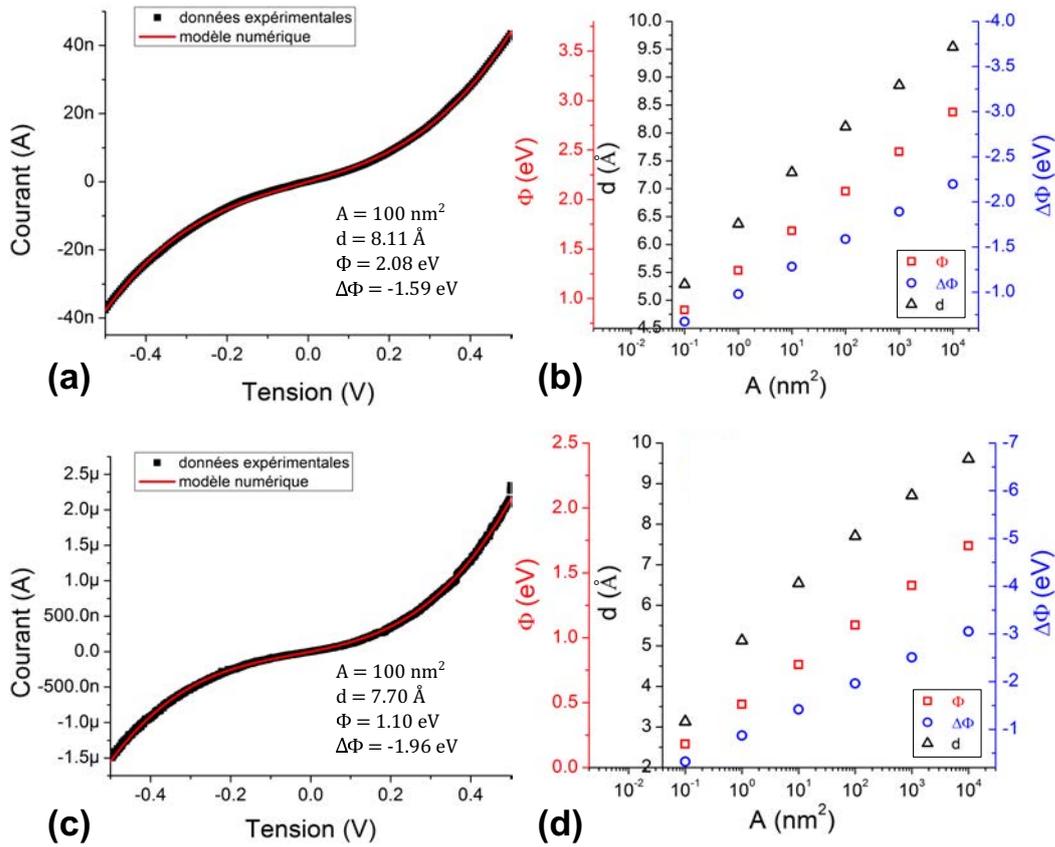


FIGURE 2.27 – Les figures (a) et (c) représentent les caractéristiques $I(V)$ de deux jonctions. Ces caractéristiques sont asymétriques ($I_{-V} \neq I_{+V}$). Les jonctions (a) et (c) possèdent une conductance respective de $G|_{V_{DC}=0V} = 4.02 \times 10^{-4} G_0$ et $G|_{V_{DC}=0V} = 1.26 \times 10^{-2} G_0$. La courbe noire correspond aux données expérimentales et la courbe rouge au modèle de l'équation 2.14, dont les paramètres sont inscrits sur la figure. Les graphiques (b) et (d) représentent l'évolution des différents triplets $\{\Phi, \Delta\Phi$ et $d\}$ extraits par la méthode des moindres carrés en fonction de l'aire A imposée. Ces graphiques correspondent respectivement aux ajustements réalisés sur les courbes expérimentales (a) et (c).

Certaines des jonctions tunnels réalisées comportent une caractéristique $I(V)$ asymétrique très marquée. C'est le cas des jonctions des figures 2.27 (a) et (c) qui se distinguent du cas des jonctions quasi-symétriques présentées précédemment. Le modèle, prenant en compte l'asymétrie énergétique des électrodes, a été appliqué sur ces jonctions. Comme pour le cas précédent, les paramètres $\{\Phi, \Delta\Phi$ et $d\}$ sont calculés à partir d'une aire A imposée. Les figures (a) et (c) représentent les caractéristiques $I(V)$ des deux jonctions, et les figures (b) et (d) indiquent respectivement

les paramètres déduits du modèle numérique pour différentes aires A envisagées.

Les valeurs obtenues pour $\Delta\Phi$ à partir de ces deux jonctions sont toutes du même ordre de grandeur que Φ . Ce point accentue le fait que ces jonctions sont fortement asymétriques. Les distances d évaluées pour (a) et (c) sont proches (respectivement 8.1 Å et 7.7 Å). Bien que ces distances soient équivalentes, on mesure pourtant un courant 37.5 fois plus important pour la jonction (c) à $V = 400$ mV. Cette différence trouve son origine dans les valeurs de l'énergie d'extraction déduites. L'énergie d'extraction moyenne étant plus faible pour la jonction (c) signifie que les électrons ont une probabilité plus grande de traverser la barrière de potentiel. Ainsi, le courant résultant devient supérieur à celui de la jonction 2.27 (a).

Les résultats numériques obtenus pour ces quatre jonctions sont en accord avec les données expérimentales, avec des courants variant du nA à la dizaine de μ A. Les distances inter-électrodes déduites sont toutes inférieures au nanomètre. Les énergies d'extraction présentent des valeurs en accord avec l'asymétrie plus ou moins prononcée des jonctions. Le modèle parvient à déterminer des paramètres physiques pour les jonctions étudiées, même si une attention particulière est à apporter aux solutions pour lesquelles soit la distance interstitielle est inférieure à une liaison Au-Au, soit l'énergie d'extraction devient supérieure à celle de l'Au massif. Une fois ces données écartées, on constate que les résultats sont cohérents avec les autres travaux réalisés sur ce type de jonctions tunnels. Le manque de précision sur l'aire réelle de la jonction ne nous permet pas de déduire de valeurs exactes des paramètres $\{\Phi, \Delta\Phi$ et $d\}$. Cependant, les résultats obtenus mettent en évidence la robustesse du modèle, qui est applicable à des courants variant sur plusieurs ordres de grandeur, ainsi qu'à des jonctions symétriques ou non.

2.3.5 Tension de transition et représentation de Fowler-Nordheim

La représentation de Fowler-Nordheim (F-N) est une autre méthode très utilisée pour caractériser les différents régimes de conduction d'une jonction. Cette méthode consiste à représenter $\ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right)$ en fonction de $\frac{1}{V}$. D'après le modèle développé par Mangin [77], lorsque $|eV| \ll \Phi$, c'est-à-dire à tension faible, le courant évolue linéairement avec la tension. Lorsque $|eV| \gg \Phi$, le courant évolue de façon non-linéaire et le régime de conduction de la jonction peut être assimilé à celui de l'émission par effet de champ. Dans les travaux de Mangin, les différentes expressions de I_T sont :

$$\begin{aligned} |eV| \ll \Phi, \quad I_T &= \frac{AVe^2\sqrt{2m_e\Phi}}{h^2d} \exp\left(-\frac{2d\sqrt{2m_e\Phi}}{\hbar}\right) \\ |eV| \gg \Phi, \quad I_T &= \frac{Ae^3V^2}{8\pi hd^2\Phi} \exp\left(-\sqrt{\frac{8m_e}{\hbar^2}} \frac{2d\Phi^{\frac{3}{2}}}{3e} \times \frac{1}{V}\right) \end{aligned} \quad (2.15)$$

La représentation de F-N de ces deux conditions donne alors les équations suivantes :

$$\begin{aligned}
 |eV| \ll \Phi, \quad \ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right) &= -\frac{2d\sqrt{2m_e\Phi}}{\hbar} + \ln\left(\frac{Ae^2\sqrt{2m_e\Phi}}{h^2d}\right) + \ln\left(\frac{1}{V}\right) \\
 |eV| \gg \Phi, \quad \ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right) &= \ln\left(\frac{Ae^3}{8\pi\hbar d^2\Phi}\right) - \sqrt{\frac{8m_e}{\hbar^2}} \frac{2d\Phi^{\frac{3}{2}}}{3e} \times \frac{1}{V}
 \end{aligned} \tag{2.16}$$

Les figures 2.28 illustrent ces deux régimes à partir de la représentation de F-N d'une jonction tunnel électromigrée. La condition $|eV| \ll \Phi$ mène à une courbe dont la dépendance peut être assimilée à l'équation $\ln\left(\frac{1}{V}\right) + \text{constante}$, en pointillés rouges sur la figure. La condition $|eV| \gg \Phi$ renvoie quant à elle à une équation affine en $\frac{1}{V}$, en pointillés bleus. La partie négative du courant est représentée en valeur absolue dans la figure 2.28 (b). Le changement d'un régime à l'autre correspond à une tension particulière, généralement nommée tension de transition V_T . V_{T1} et V_{T2} représentent alors respectivement les tensions de transitions de la partie négative et de la partie positive. V_T est une mesure de l'énergie d'extraction des électrodes puisque la nature de la transition correspond au passage d'un régime tunnel à un régime d'émission de champ. Dans les expériences de spectroscopie de tension de transition, elle a été assimilée pour la première fois par Beebe *et al.* en tant que mesure direct du niveau d'énergie des molécules caractérisées, avec $V_T = \Phi$ [76, 87]. Cette technique permet de déterminer la nature de la molécule à partir de son empreinte électronique. De nombreuses études [87-91] démontrent des dépendances diverses et parfois contradictoires des tensions de transition mesurées. Certaines études montrent une croissance de V_T en fonction du terme Φ [87]. D'autres précisent que cette dépendance n'est valable que dans le cas de jonction tunnel résonante [89] et est plutôt proportionnelle au quotient $\frac{\Phi}{d}$ dans le reste des cas. Pour Zandvliet *et al.*, V_T décroît en fonction du terme $\frac{1}{d}$ [88].

Les tensions de transitions V_{T1} et V_{T2} extraites à partir de la figure 2.28 (b) sont ici approximativement égales en valeur absolue, ce qui peut être expliqué en première approximation par un $\Delta\Phi \ll \Phi$. En revanche, l'énergie d'extraction moyenne déduite à l'aide du modèle ($\Phi = 1.11$ eV) est largement supérieure aux V_{T1} et V_{T2} extraits de la représentation de F-N, avec $V_T \approx 0.25 \Phi$. V_T est initialement interprété par Simmons et Beebe comme étant la mesure direct de Φ . L'analyse graphique de la représentation de F-N fait apparaître un écart important entre Φ et V_T . Cette déviation est aussi observée par Huisman *et al.* [90] entre autres.

Une étude analytique de la fonction $I_T(V)$ a été menée pour mieux comprendre cette différence entre Φ , V_{T1} et V_{T2} . À partir de l'équation 2.11 en représentation F-N, deux cas extrêmes peuvent être mis en évidence :

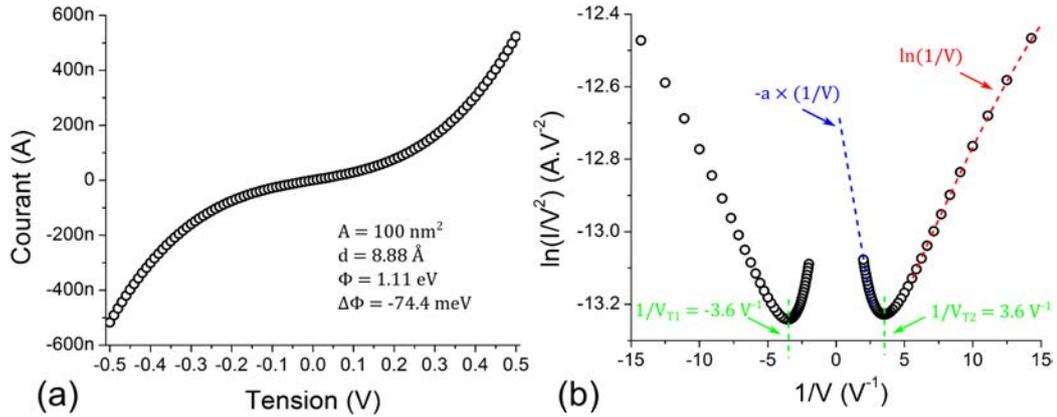


FIGURE 2.28 – La figure (a) représente la caractéristique $I(V)$ d'une jonction électromigrée. Les paramètres calculés à partir du modèle numérique sont indiqués sous la courbe. La figure (b) est la représentation de F-N de la caractéristique $I(V)$ de la figure (a). La partie négative du courant est représentée en valeur absolue. Les deux régimes déduits de l'équation 2.16 sont illustrés en pointillée. Les valeurs de l'inverse des tensions de transitions (V_{T1} et V_{T2}) en vert sont extraites graphiquement. On en déduit $|V_{T1}| = V_{T2} = 0.28$ V.

$$\begin{aligned}
 |eV| \ll \Phi, \quad \ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right) &\approx \ln\left(G|_{V \approx 0} \frac{9A_0^2}{3 \times 128\Phi}\right) + \ln(V) \\
 |eV| \gg \Phi, \quad \ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right) &\approx \ln(G|_{V \approx 0}) - \ln(V)
 \end{aligned}
 \tag{2.17}$$

La condition $|eV| \ll \Phi$ mène à une expression proche de celle énoncée dans l'équation 2.16. En revanche, l'approximation $|eV| \gg \Phi$ ne dépend pas de $-\frac{1}{V}$ comme dans l'équation 2.16, mais de $-\ln(V)$. Ce point important met en évidence que le changement de variation de la fonction $\ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right)$ ne peut être interprété comme le signe du passage du régime tunnel au régime d'émission par effet de champ. En effet, alors que le régime par émission de champ s'exprime en $-\frac{1}{V}$ dans la représentation de F-N, le courant s'exprime ici en $-\ln(V)$. Le terme $-\ln(V)$ fait en réalité référence au terme en V^3 de l'expression 2.11. Ainsi, le changement de variation de la fonction $\ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right)$ aux points d'abscisse nommés V_T correspond plutôt au passage à un régime de courant superquadratique, comme le suggère Vilan [89].

Nous avons déduit une expression analytique de V_T à partir des équations 2.11 et 2.12 :

$$I_T(V) = A \frac{\sqrt{2m_e\Phi}e}{d} \left(\frac{e}{h}\right)^2 \times \exp\left(-\frac{4\pi d}{h}\sqrt{2m_e\Phi}e\right) \left(V - \frac{A_0\Delta\Phi}{2 \times 16\Phi^{\frac{3}{2}}}V^2 + \frac{9A_0^2}{3 \times 128\Phi}V^3\right)
 \tag{2.18}$$

En appliquant une représentation de F-N à l'équation 2.18 on obtient :

$$\ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right) = \ln\left(A \frac{\sqrt{2m_e\Phi}e}{d} \left(\frac{e}{\hbar}\right)^2\right) - \frac{4\pi d}{h} \sqrt{2m_e\Phi}e + \ln\left(\frac{1}{V} - \frac{A_0\Delta\Phi}{2 \times 16\Phi^{\frac{3}{2}}} + \frac{3A_0^2}{128\Phi}V\right) \quad (2.19)$$

La tension de transition correspond à la tension pour laquelle la fonction $\ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right)$ est minimale.

Ainsi, V_T peut s'exprimer comme solution de l'équation :

$$\begin{aligned} \frac{d\left(\ln\left(\frac{I_T}{V^2}\right)\right)}{d\left(\frac{1}{V}\right)} &= 0 \\ \left(1 - \frac{3A_0^2}{128\Phi}V^2\right) \times \frac{1}{\left(\frac{1}{V} - \frac{A_0\Delta\Phi}{2 \times 16\Phi^{\frac{3}{2}}} + \frac{3A_0^2}{128\Phi}V\right)} &= 0 \\ \left(1 - \frac{3A_0^2}{128\Phi}V^2\right) &= 0 \\ V &= \sqrt{\frac{128\Phi}{3A_0^2}} \\ V &= \frac{2\hbar\sqrt{3\Phi}}{\sqrt{m_e}d} \end{aligned} \quad (2.20)$$

Huisman *et al.* [90] obtiennent une expression similaire à partir du modèle de courant tunnel développé par Stratton [92]. L'expression 2.20 diffère cependant un peu de celle de Huisman *et al.*, qui trouvent une dépendance en $\sqrt{2\Phi}$ plutôt qu'en $\sqrt{3\Phi}$ dans le cas présent.

On observe alors que la tension de transition dépend non seulement de l'inverse de la distance d , mais aussi de la racine carrée de l'énergie d'extraction moyenne des électrodes. Cette expression prévoit une croissance de V_T en fonction du terme $\frac{\sqrt{\Phi}}{d}$ [93].

La figure 2.29 (a) présente les résultats obtenus à partir de l'étude des tensions de transitions de 15 jonctions, représentés en fonction de $\frac{\sqrt{\Phi}}{d}$. Les valeurs de V_T issues de l'expression analytique sont indiquées par la droite noire. Le calcul est effectué à partir de la formule 2.20 et des paramètres Φ et d , déduits du modèle de Simmons appliqué à chacune des jonctions. Les points bleus et rouges sont extraits graphiquement à partir de la représentation de F-N des caractéristiques I(V) des jonctions. Les points bleus correspondent à V_{T1} et les points rouges à V_{T2} . Ils sont extraits de la même manière que dans la figure 2.28 (b). Le paramètre d varie de 5.7 à 9.6Å, Φ de 0.9 à 2.1eV et $\Delta\Phi$ de -2.2 à 2.5eV. Les incertitudes de mesures sont représentées par

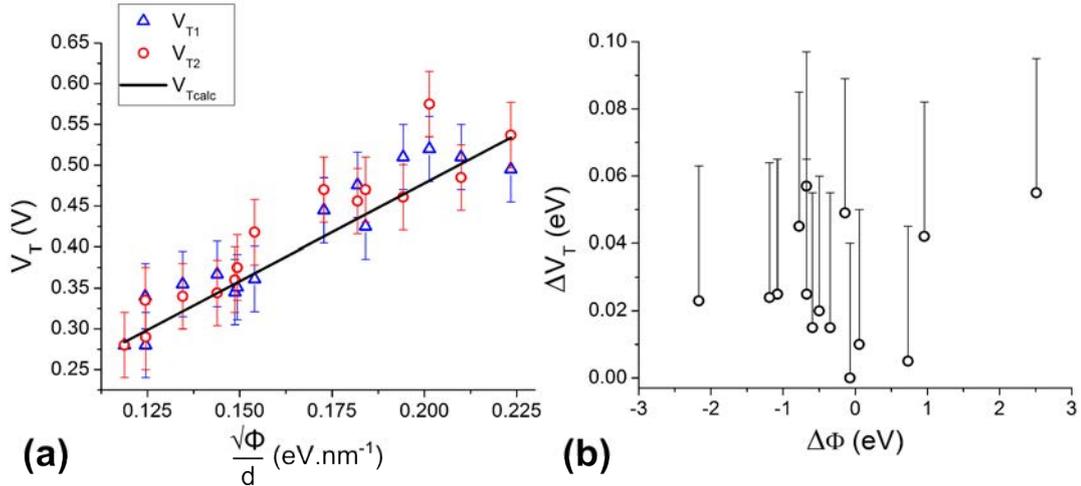


FIGURE 2.29 – La figure (a) représente les différentes tensions de transitions mesurées en fonction du terme $\frac{\sqrt{\Phi}}{d}$. Les points en bleus sur la figure (a) représentent les mesures extraites graphiquement sur la partie négative des courbes en F-N de 15 jonctions électromigrées. Les points rouges correspondent quant à eux aux mesures extraites sur la partie positive de ces courbes. La droite noire indique les valeurs de V_T calculées à partir de l'expression 2.20 et des paramètres Φ et d . Les paramètres $\{\Phi, \Delta\Phi$ et $d\}$ sont calculés à partir du modèle de Simmons appliqué à chaque jonction. Les barres d'erreur de chaque mesure apparaissent dans la couleur correspondante. La figure (b) illustre l'absence apparente de dépendance entre $\Delta V_T = |V_{T1} - V_{T2}|$ et $\Delta\Phi$. Les barres d'erreur au dessus de chaque point sont issues de l'incertitude relative à V_{T1} et V_{T2} pour chaque calcul de ΔV_T .

les barres verticales. Le modèle illustré par la courbe noire est en bonne concordance avec les données extraites graphiquement, pour des énergies d'extraction variant de 0.25 à 0.60 eV. La croissance du terme V_T en fonction de $\frac{\sqrt{\Phi}}{d}$, prédite par le modèle, est ici observée. Ce résultat confirme bien que l'interprétation de V_T en tant qu'énergie d'extraction des électrodes n'est pas adaptée. La prise en compte du facteur total $\frac{\sqrt{\Phi}}{d}$ et non juste $\frac{1}{d}$ est elle aussi importante. Ces mesures démontrent ainsi que l'expression 2.20 est valide en tant que modèle de calcul de la tension de transition des jonctions tunnels d'Au subnanométriques. La figure (b) représente quant à elle l'évolution du terme $\Delta V_T = |V_{T1} - V_{T2}|$ en fonction de $\Delta\Phi$. La représentation ne semble démontrer aucune dépendance particulière entre ΔV_T et $\Delta\Phi$. L'écart entre V_{T1} et V_{T2} ne semblent donc pas dépendre de l'asymétrie de la jonction. L'expression analytique 2.20 de V_T ne laisse pas non plus apparaître une dépendance quelconque avec le paramètre $\Delta\Phi$. Ces résultats confirment que la tension à partir de laquelle la jonction entre en régime superquadratique ne dépend pas de l'asymétrie de la barrière tunnel.

La figure 2.29 (b) met aussi en évidence que $\Delta\Phi$ est négatif pour plus de 11 jonctions sur 15. L'asymétrie de la barrière tunnel tend donc statistiquement à une différence $\Delta\Phi = \Phi_{source} - \Phi_{drain}$ négative, c'est-à-dire $\Phi_{drain} > \Phi_{source}$. L'énergie d'extraction de l'électrode source est donc statistiquement plus faible que celle du drain. Les électrodes étant toute deux composées du même matériaux, on peut en déduire que l'asymétrie de la jonction provient de la différence de géométrie des électrodes. La création des jonctions tunnels par électromigration s'opère par le déplacement des atomes dans le sens du flux d'électrons (de la source vers le drain). La géométrie de l'électrode représentant la source tend donc à devenir une pointe en raison du sens de déplacement des atomes durant l'électromigration, alors que celle du drain peut être assimilée à un plan. L'effet de pointe induit par la dissymétrie des électrodes favorise ainsi le passage des électrons dans le sens pointe \rightarrow plan, c'est-à-dire source \rightarrow drain.

Ce chapitre a permis de décrire le mode de fabrication des antennes optiques tunnels planaires. Grâce à un protocole de fabrication divisé en plusieurs étapes, nous avons pu démontrer que l'électromigration contrôlée de nanofil d'Or permet de réaliser des jonctions tunnels de conductance s'étendant de G_0 à $10^5 \times G_0$. Une analyse des différents phénomènes accompagnant l'électromigration (désorption et recuit des joints de grains par effet Joule) a permis de comprendre la topologie des nanofils électromigrés et le lieu de formation de la jonction. Les propriétés physiques de ces jonctions ont été évaluées à l'aide d'un modèle du courant tunnel adapté du modèle de Simmons. Les différents paramètres déduits de ce modèle ont montré que des jonctions symétriques et asymétriques pouvaient être réalisées, avec des distances évaluées inférieures au nanomètre. Une étude de la représentation de Fowler-Nordheim a été menée conjointement à ce travail. Cette étude a démontré que la tension de transition V_T , caractérisant le passage du régime tunnel au régime d'émission de champ ne dépendait pas essentiellement des potentiels d'extraction. Elle dépend aussi de la longueur d de la barrière de potentiel, de telle sorte que $V_T \propto \sqrt{\Phi}/d$.

Chapitre 3

Émission lumineuse générée par des antennes optiques tunnels

Ce chapitre est consacré à l'étude des propriétés émettrices des jonctions tunnels. Les différents processus d'émission observés par le biais de jonctions tunnels métalliques ont été présentés en introduction. La désexcitation radiative d'électrons traversant la barrière par effet tunnel inélastique est une des théories qui suscitent le plus d'intérêt depuis la publication de l'article comparatif de Persson et Baratoff [36]. Dans cet article, les auteurs montrent que l'émission de photons par effet inélastique au sein de la jonction tunnel est cent fois plus probable que la désexcitation radiative d'électrons chauds présents sur l'électrode d'arrivée (électrons ayant traversés la barrière de façon élastique). La théorie de l'émission par effet tunnel inélastique a donc été la première hypothèse envisagée dans notre étude.

La structure étudiée est assimilable à une antenne optique. La jonction tunnel, qui opère en tant que source lumineuse, joue le rôle de point d'alimentation de cette antenne. Le couplage existant entre la source et l'antenne a de plus une influence sur les propriétés émettrices des jonctions tunnels (spectre et directivité de l'émission, polarisation des photons, etc). L'analyse des résultats obtenus permet ainsi de discuter des différents processus d'émission envisagés.

3.1 Partie optique du dispositif expérimental

La première partie de ce chapitre présente le dispositif expérimental utilisé pour réaliser les mesures optiques. Le dispositif expérimental est subdivisé en deux sections : une partie électrique et une partie optique. La section électrique est similaire à celle décrite dans le chapitre précédent. Cette partie a permis l'utilisation et le contrôle du processus d'électromigration, dans l'objectif de réaliser des jonctions tunnels. L'étude des propriétés conductrices de ces jonctions ainsi que leurs caractéristiques $I(V)$ a été menée grâce à ce dispositif expérimental.

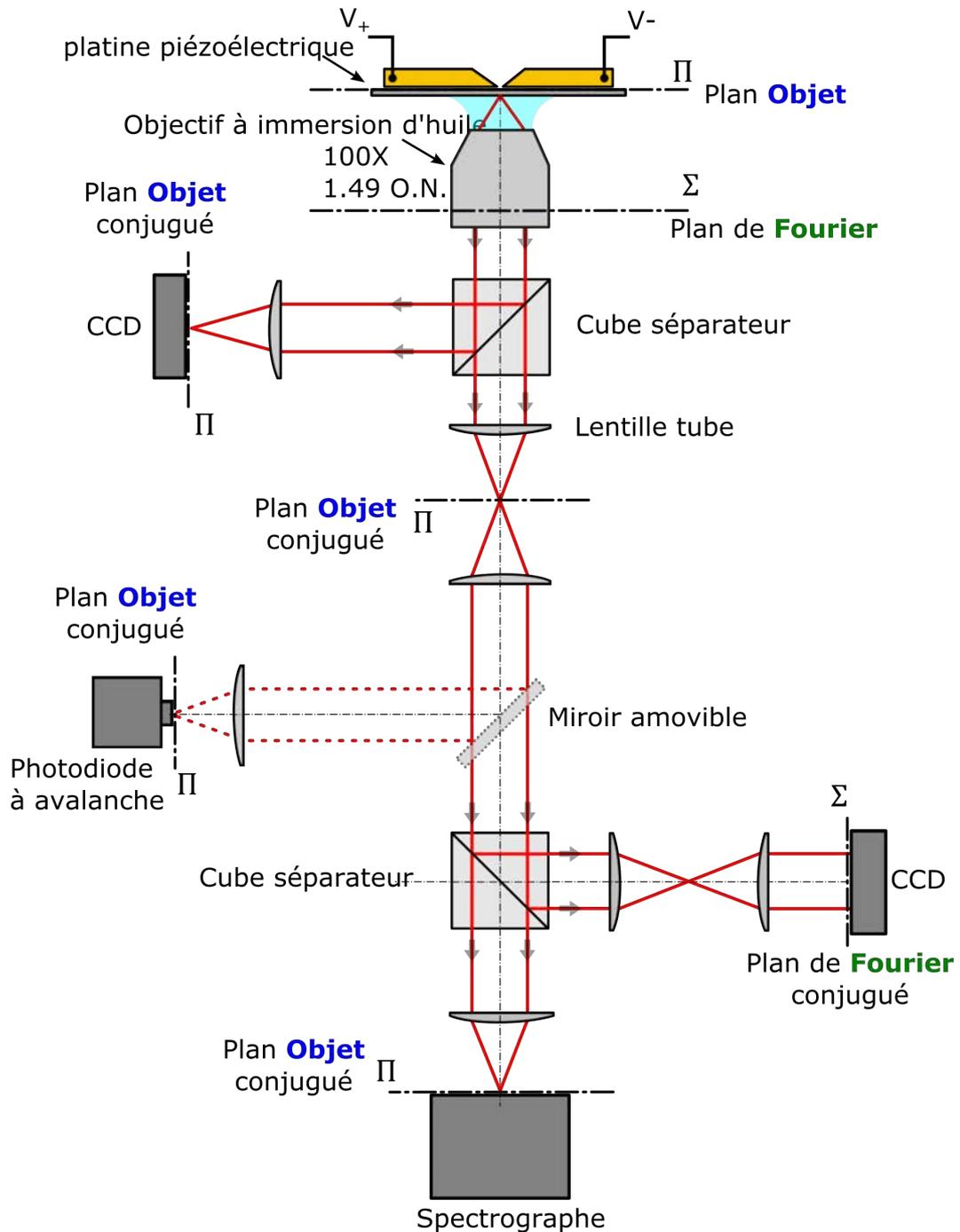


FIGURE 3.1 – Représentation schématique de la partie optique du dispositif expérimental. L'échantillon, faisant partie du plan objet, est déposé sur la platine piézoélectrique. L'objectif utilisé est à immersion d'huile. L'ouverture numérique est de 1.49, et le grandissement X 100. Les capteurs placés sur les plans objets conjugués (Π) sont la caméra CCD, la photodiode à avalanche et le spectrographe. Le capteur placé sur le plan de Fourier conjugué (Σ) est une caméra CCD. La lumière émise depuis la source est acheminée vers les détecteurs. Des cubes séparateurs (50/50) et un miroir amovible permettent d'orienter le signal vers les capteurs désirés.

3.1. Partie optique du dispositif expérimental

La section optique s'oriente sur la détection de l'activité lumineuse. Le dispositif est principalement composé d'un microscope confocal, depuis lequel les signaux optiques sont dirigés sur différents détecteurs. L'objectif, placé en dessous de l'échantillon, collecte la lumière émise à travers le substrat en verre. La lumière émise dans le superstrat n'est pas recueillie.

La figure 3.1 est une représentation schématique du dispositif expérimental optique. L'échantillon est positionné sur le plan objet du microscope et le nanofil est aligné sur l'axe de détection formé par un objectif à immersion d'huile avec une large ouverture numérique (1.49). La lumière collimatée par l'objectif est en partie renvoyée sur un dispositif à transfert de charge par multiplication d'électrons (EMCCD), par le biais d'un cube séparateur. Cette caméra EMCCD, modèle LUCA S de la marque ANDOR, est située sur le plan objet conjugué de la source lumineuse. Un miroir amovible, positionné sur le chemin optique, permet de dévier le faisceau lumineux pour venir le focaliser sur une photodiode à avalanche. Ce senseur optique SPCM-AQRH, de la marque EXCELITAS, possède un niveau de bruit très faible, et offre la possibilité de réaliser du comptage de photons. Sans la présence du miroir amovible, la lumière est à nouveau divisée en deux parties. La première est dirigée vers un spectrographe (ANDOR SHAMROCK + EMCCD NEWTON), sur le plan objet conjugué. Le reste du signal est envoyé sur une autre EMCCD IKON ANDOR, cette fois-ci utilisée pour imager le plan de Fourier conjugué.

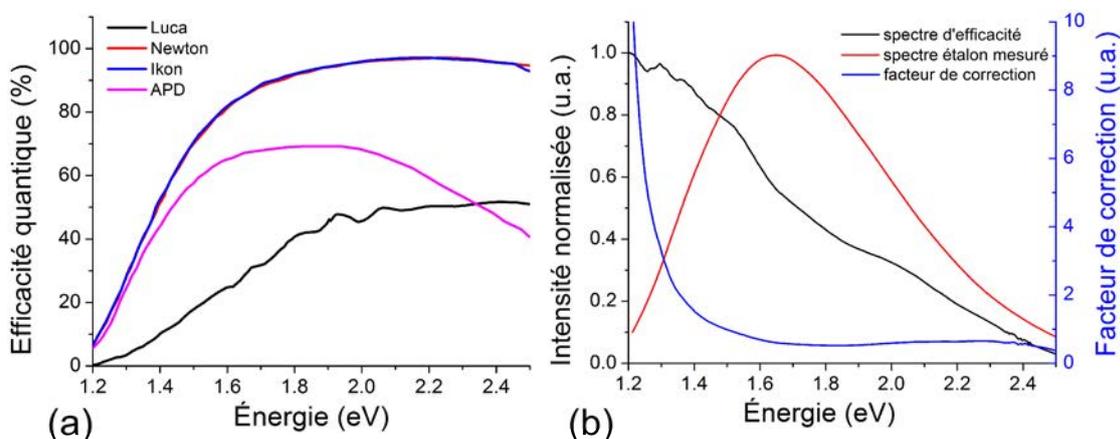


FIGURE 3.2 – La figure (a) représente les différentes efficacités quantiques des caméras utilisées. La courbe noire correspond à la caméra LUCA, la courbe rouge à la caméra NEWTON, la courbe bleue à la caméra IKON et la courbe rose aux APDs SPCM-AQRH. Le graphique (b) représente la courbe de calibration appliquée aux spectres lumineux des jonctions tunnels. La courbe est réalisée à partir de la mesure d'un spectre étalon (Osram Halostar 64425 2800 °K, en rouge), comparée au spectre d'efficacité fournis par le constructeur (en noir). Ces deux spectres sont normalisés et représentés par l'axe des ordonnées de gauche. Le facteur de correction (en bleu), correspond à l'axe des ordonnées de droite. Il est calculé à partir du rapport du spectre d'efficacité et du spectre étalon mesuré.

La lumière émise par la source n'est pas parfaitement transmise jusqu'aux détecteurs. Chaque élément optique traversé absorbe une partie du signal lumineux, dont la transmittance est fonction de la longueur d'onde. De plus, les caméras et détecteurs utilisés ne possèdent pas tous les mêmes efficacités quantiques. La figure 3.2 (a) présente l'efficacité quantique des différents détecteurs en fonction de l'énergie des photons incidents. On remarque sur cette figure que les capteurs utilisés, basés sur une technologie silicium, possèdent une faible efficacité quantique dans le proche infrarouge. Afin de corriger les mesures effectuées et en tenant compte des pertes du système, nous avons réalisé un étalonnage. Un spectre de la lumière émise par une source étalon large bande (Lampe halogène de la marque Osram, modèle Halostar 64425 avec température d'émission à 2800 °K pour une tension de 12 V) est enregistré à l'aide du spectrographe. Le spectre recueilli est ensuite comparé au spectre étalon de cette source, correspondant à la lumière émise par un corps noir de 2800 °K. La courbe de calibration déduite est visible dans la figure 3.2 (b). Elle permet ainsi d'apporter une correction aux spectres mesurés.

La partie électrique du montage, utilisée pour électromigrer le nanofil, est la même que celle du chapitre précédent. Une tension alternative à 12.1 kHz est superposée à la tension continue V_{DC} permettant l'électromigration. Ce signal alternatif d'une amplitude de $V_{AC} = 20$ mV permet de mesurer la conductance dynamique, G_{AC} , sans influencer le processus d'électromigration.

3.2 Premières observations d'émissions lumineuses

En raison de la sensibilité des échantillons aux décharges électrostatiques, les échantillons une fois connectés doivent être manipulés le moins possible. C'est pourquoi l'électromigration est directement effectuée sur le microscope confocal. Une fois la jonction tunnel formée, le dispositif est opérationnel pour caractériser optiquement la jonction. Le caractère tunnel de la jonction est identifié par la mesure de sa caractéristique $I(V)$. Les différents détecteurs du dispositif expérimental sont alors utilisés simultanément pour analyser les propriétés émettrices des jonctions tunnels, alors qu'une tension constante est appliquée à ses bornes. Les premières observations d'émissions lumineuses ont été établies à l'aide d'images intégrées pendant plusieurs dizaines de secondes par l'EMCCD LUCA. Par la suite, le contrôle du processus de fabrication a permis de réaliser des jonctions dont l'émission lumineuse est visible à l'œil nu.

Les figures 3.3 représentent l'émission lumineuse enregistrée pour deux jonctions de conductances différentes. Ces résultats ont tout d'abord permis de confirmer une activité lumineuse dans la gamme spectrale de détection des antennes optiques

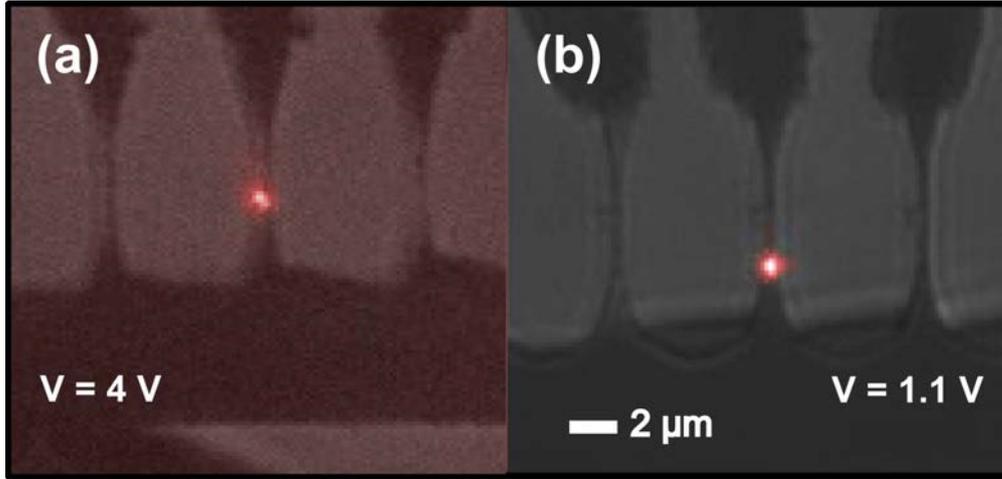


FIGURE 3.3 – Images optiques d'émission lumineuse provenant de nanofils d'Au électromigrés. Les images (a) et (b) sont respectivement recolorées. Elles sont constituées de la superposition d'une image colorisée de la lumière émise par la jonction, avec une image résiduelle en lumière blanche, pour mieux distinguer les électrodes et la position de la jonction tunnel sur les fils d'Au électromigrés. L'image (a) est obtenue pour une tension $V = 4$ V appliquée à une jonction de $G|_{V_{DC}=0V} = 5.0 \times 10^{-4} G_0$ pendant 20 s. L'image (b) est quant à elle obtenue pour une tension $V = 1.1$ V appliquée pendant 60 s sur une autre jonction tunnel de conductance $G|_{V_{DC}=0V} = 0.89 G_0$.

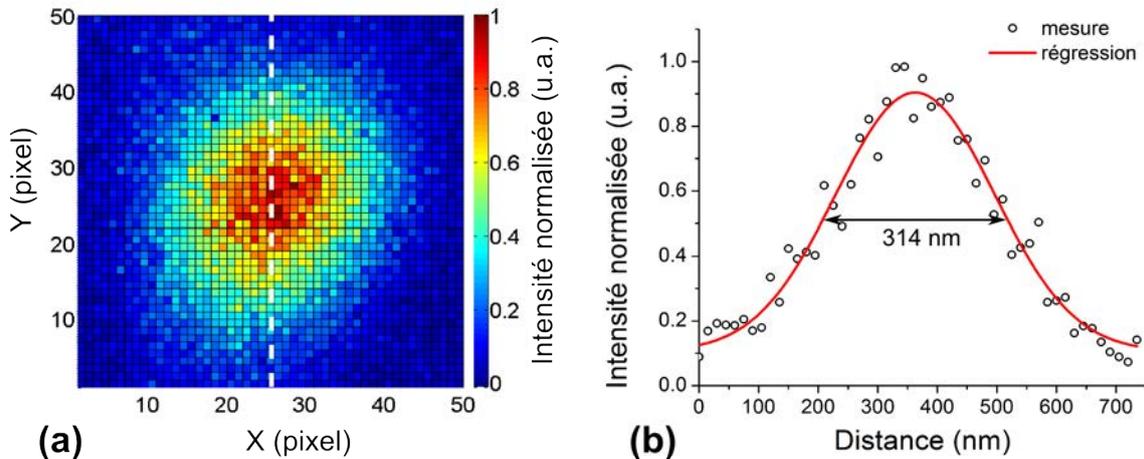


FIGURE 3.4 – L'image (a), correspondant à un agrandissement de l'image optique 3.3 (b), représente la cartographie d'un profil d'émission suivant les directions X et Y. L'échelle de couleur représente l'intensité lumineuse normalisée de chaque pixel. Les points de la figure (b) représente l'évolution de l'intensité lumineuse selon une ligne de coupe indiquée en pointillés blancs sur l'image (a). L'abscisse est calculée à partir de la longueur d'un pixel (15 nm). La courbe rouge de la figure (b) est le résultat de l'application du modèle de fonction gaussienne suivant $y = B + A \exp\left(-\frac{(x-x_c)^2}{2\sigma^2}\right)$. σ représente la largeur à mi-hauteur, x_c la position du maximum, A l'amplitude maximale et B le niveau de bruit. La largeur à mi-hauteur déduite est d'environ 314 nm.

tunnels réalisées. Les figures 3.3 mettent aussi en évidence plusieurs points intéressants. La tache lumineuse est homogène et localisée sur le nanofil. Sur ces images, les nanofils ont une section de $100 \text{ nm} \times 50 \text{ nm}$ sur environ $3 \mu\text{m}$ de long. L'emplacement de la source lumineuse est proche du côté de l'électrode source utilisée pendant l'électromigration. Cette observation est en accord avec les lieux d'électromigration rencontrés dans le chapitre 2. De plus, les tensions appliquées aux jonctions (a) et (b) ainsi que leur conductance $G|_{V_{DC}=0V}$ sont très différentes. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement. Les figures 3.4 présentent l'analyse détaillée d'un spot lumineux obtenu pour une tension de 1 V. L'image 3.4 (a) est un agrandissement de cette tache lumineuse. La figure 3.4 (b) met en évidence l'évolution de l'intensité lumineuse selon une direction donnée par la ligne en pointillés blancs de l'image (a). Cette évolution peut être modélisée par une fonction gaussienne dont la largeur à mi-hauteur est évaluée à 314 nm. Avec une longueur d'onde dominante à 800 nm et une ouverture numérique O.N.= 1.49, la résolution théorique du microscope est de $R = \frac{0.6\lambda}{O.N.} \approx 322 \text{ nm}$. Cette grandeur est proche de la largeur à mi-hauteur déduite et indique que nous sommes limités par le pouvoir de résolution du microscope. La source lumineuse peut donc être considérée comme ponctuelle. Le profil d'émission mesuré pour les jonctions réalisées est similaire à celui observé un peu plus tard par Kern *et al.* dans le cadre d'antennes optiques tunnels [94] ($\approx 350 \text{ nm}$). En revanche, le caractère localisé de la source présentée dans notre étude se distingue des résultats obtenus par le biais de structures à empilements verticaux (métal-isolant-métal), pour lesquels le profil d'émission est spatialement plus étendu [41].

Ces différentes mesures permettent de confirmer que les jonctions tunnels réalisées émettent de la lumière. Les mesures démontrent aussi que cette source lumineuse peut-être assimilée à une source ponctuelle, dans la limite de diffraction. Cependant, ces images ne permettent pas de déterminer avec quelle intensité et avec quelle énergie les photons sont émis. Ces informations sont extraites à partir des mesures du spectographe.

3.3 Spectres lumineux : anomalie aux hautes énergies

Pour pouvoir enregistrer et déterminer la composition spectrale de la lumière émise, le signal est dispersé par un réseau, puis projeté sur le plan focal de la caméra CCD NEWTON de 1600 pixels de largeur. La résolution et la largeur spectrale de la fenêtre d'acquisition sont fonction du nombre de pixels disponibles sur la caméra et de la dispersion angulaire du réseau optique. Le réseau utilisé comporte $150 \text{ traits.mm}^{-1}$, ce qui donne dans notre configuration une fenêtre spectrale allant de 1.32 eV jusqu'à 2.5 eV. La résolution est de $8.25 \times 10^{-4} \text{ eV}$ avec 1600 pixels. Le choix de travailler avec un réseau à faible pouvoir de dispersion est justifié par la nécessité

de caractériser le spectre sur une large gamme d'énergie.

Pour chaque spectre enregistré, une tension continue d'amplitude constante est appliquée. Ce point est important car il permet d'étudier les relations liant la tension électrique à l'énergie des photons émis.

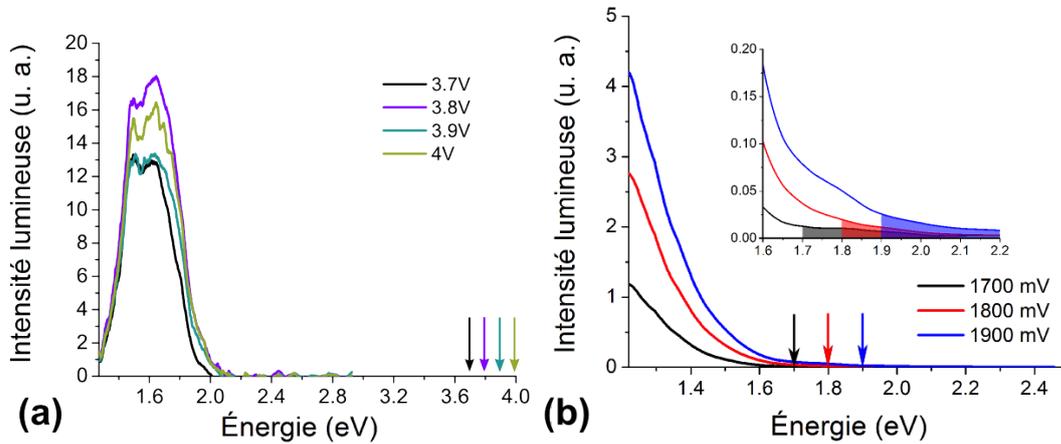


FIGURE 3.5 – Graphiques représentant différents spectres d'émission, en fonction de la tension appliquée. La figure (a) concerne une jonction tunnel émettrice à partir de 3.7 V, pour laquelle la jonction est dénaturée après la mesure à 3.8 V. Chaque flèche sur l'abscisse indique l'énergie correspondant à la tension appliquée. La figure (b) représente 3 spectres enregistrés successivement, sans modification des caractéristiques de la jonction, de conductance $G|_{V_{DC}=0V} = 0.015 G_0$. La zone centrale inclue un agrandissement d'une partie du graphique, mettant en évidence les photons enregistrés avec une énergie supérieure à la tension appliquée.

La figure 3.5 (a) représente quelques spectres enregistrés à partir des premières jonctions émettrices formées. Les mesures sont effectuées dans le sens des tensions croissantes. La deuxième mesure (3.8 V), montre un nombre moyen de photons supérieur à la première mesure (3.7 V). Lorsque la tension appliquée augmente, le courant traversant la jonction augmente lui aussi, et de façon non-linéaire comme nous l'avons montré dans le chapitre précédent (jonction fortement polarisée avec $eV \approx \Phi$). Le nombre d'électrons traversant la jonction est ainsi croissant, ce qui augmente la probabilité que la jonction émette un photon par un processus inélastique [36]. Cet argument explique le fait que le spectre de la mesure à 3.8 V soit supérieur à celui de la première mesure à 3.7 V. En revanche, lorsque la tension est incrémentée à 3.9 V pour la troisième mesure, le nombre de photons recueillis chute. Cette incohérence est expliquée par le fait que la jonction s'est détériorée entre ces deux mesures, et que le courant moyen traversant la jonction a probablement chuté. Malgré une tension appliquée plus grande, la baisse du nombre d'électrons traversant la barrière de potentiel réduit la probabilité d'émettre des photons. Le nombre de photons est à nouveau croissant pour la mesure à 4.0 V, pour laquelle la jonction n'a pas changé entre la troisième et quatrième mesure. Tous les spectres de la figure 3.5 (a) montrent que les photons recueillis possèdent une énergie inférieure

à l'énergie cinétique des électrons, donnée par la tension appliquée aux bornes de la jonction (voir les flèches de la figure 3.5 (a)). La théorie de l'effet tunnel inélastique prévoit que l'énergie maximale qu'un électron peut perdre lors du processus de désexcitation radiative ne peut excéder l'énergie correspondant à la tension électrique appliquée, c'est-à-dire la différence d'énergie entre les niveaux de Fermi de l'électrode drain et de l'électrode source [19]. Cette limite en énergie est appelée limite quantique, définie par $eV \geq h\nu_{max}$. On retrouve par l'intermédiaire de la figure 3.6 (a) cette explication sous la forme d'un schéma. Puisque les photons des mesures de la figure 3.5 (a) sont tous inférieures à eV , les résultats sont compatibles avec la théorie de l'effet tunnel inélastique.

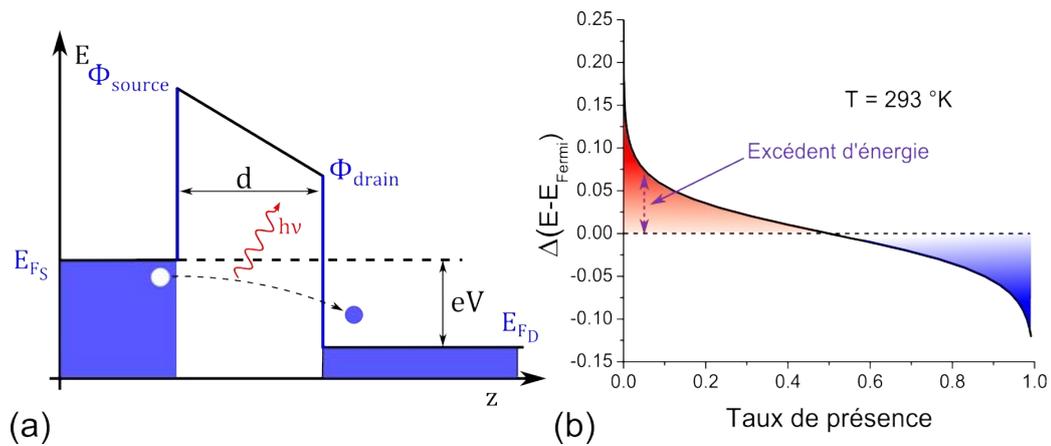


FIGURE 3.6 – La figure (a) est une représentation énergétique de la barrière tunnel et du processus inélastique d'émission d'un photon. L'électron, représenté par une sphère bleue, traverse la barrière tunnel et libère une partie de son énergie sous forme d'un photon. La barrière tunnel est définie par la hauteur des énergies d'extractions Φ_{source} et Φ_{drain} ainsi que par sa largeur d . E_{FD} et E_{FS} désignent les niveaux de Fermi du drain et de la source, avec $E_{FS} - E_{FD} = eV$. eV correspond à la perte maximale d'énergie pour un électron. Cette grandeur définit la limite quantique de l'effet tunnel inélastique. La figure (b) est une représentation de la statistique de Fermi-Dirac à température ambiante (293 K). La couleur rouge illustre la présence de charges "chaudes", c'est à dire avec un excédent d'énergie par rapport au niveau de Fermi. La partie bleue désigne une zone de déplétion (trous), correspondant aux énergies inférieures au niveau de Fermi.

Les spectres de la figure 3.5 (b) ont été recueillis par le biais d'une autre jonction. Les mesures sont réalisées dans le sens des tensions croissantes. La jonction reste stable pendant les mesures. Les photons sont émis avec une énergie inférieure à la différence de potentiel, exceptée une petite portion, mise en évidence par l'inclusion au centre de la figure 3.5 (b). On y remarque alors qu'une partie du spectre mesuré (surfaces colorées) viole la limite quantique.

Des observations similaires ont été réalisées par P. K. Hansma *et al* [95], R. Pechou *et al* [96], et plus récemment par V. Kalathingal *et al* [97] et T. Malinowski *et*

al [98]. Dans ces travaux [95-97], le franchissement de la limite quantique fixée par la tension appliquée est expliqué par la contribution de la distribution de Fermi-Dirac. L'augmentation locale de la température entraîne alors un élargissement des niveaux d'énergies accessibles. La distribution de probabilité de Fermi-Dirac est illustrée par la figure 3.6. En faisant l'hypothèse que le potentiel chimique peut être assimilé au niveau de Fermi, le taux de présence Λ s'écrit alors sous la forme $\Lambda = \frac{1}{e^{\frac{E-E_F}{k_B T}} + 1}$. Avec la prise en compte de l'élargissement des états d'énergies accessibles, les électrons d'énergies supérieures au niveau de Fermi, présents en faible proportion à 293 °K (partie rouge de la figure 3.6), ont alors la possibilité de conduire à une émission d'énergie légèrement supérieure à eV , de l'ordre de $eV + 0.15 eV$ à 293 °K. La présence d'un courant électrique contribue à l'élévation locale de la température. L'excédent d'énergie permet de repousser encore d'avantage la limite des états d'énergies accessibles.

Selon R. Pechou *et al* ce phénomène pourrait aussi être expliqué par un processus de diffusion Raman de surface exaltée [96]. Les irrégularités présentes en surface pourraient alors conduire à l'exaltation de phénomène de surface, comme la diffusion Raman et l'augmentation locale de la température. L'élargissement des niveaux d'énergies accessibles à température ambiante et le processus de diffusion Raman de surface exaltée offrent alors des explications au franchissement modéré de la limite quantique par certains photons, comme dans le cas de la figure 3.5 (b).

3.3.1 Violation de la limite quantique

Durant cette thèse, l'amélioration du contrôle de l'électromigration a permis de réaliser des jonctions stables et de conductance $G|_{V_{DC}=0V}$ mesurant quelques dixièmes de G_0 . Ces jonctions permettent le passage de courant de plusieurs dizaines de μA avec des tensions appliquées inférieures au Volt. Les spectres d'une jonction de ce type sont présentés par la figure 3.7 (a).

La série de spectres de la figure 3.7 (a) est réalisée dans l'ordre des tensions croissantes. La jonction reste stable durant les mesures et l'intensité lumineuse moyenne enregistrée augmente fortement avec la tension. Les spectres dont la tension est faible sont très peu visibles sur la figure en raison de la variation importante d'intensité lumineuse lorsque la tension est incrémentée. L'énergie correspondant à la plus haute tension appliquée dans cette série de mesure, soit 1.1 V, se situe dans l'infrarouge en dehors de la fenêtre d'acquisition. Ce point implique que tous les photons recueillis dans la gamme spectrale de détection durant ces mesures possèdent une énergie supérieure à eV . On peut donc en conclure que l'intégralité de la mesure viole la limite quantique fixée par eV . La figure 3.7 (b) permet de quantifier le dépassement de cette limite. Elle est construite à partir de la figure (a). Pour chaque

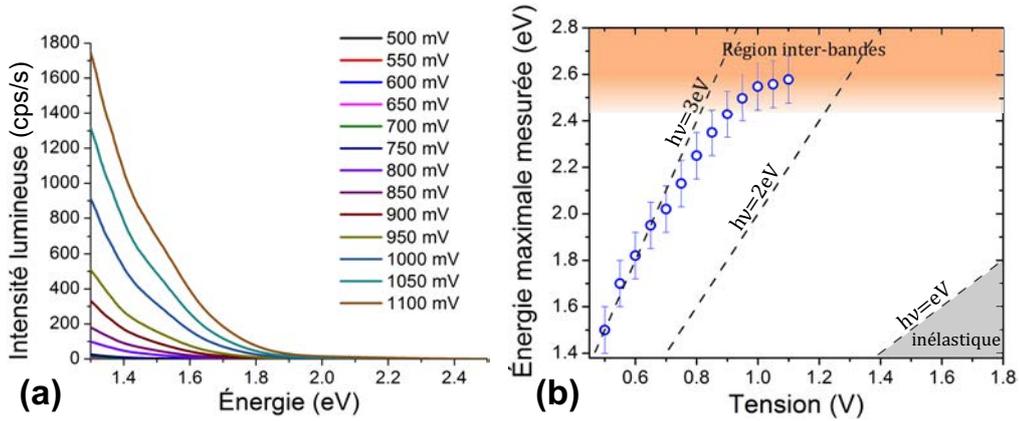


FIGURE 3.7 – La figure (a) représente les spectres d’émission mesurés pour une jonction tunnel de conductance $G|_{V_{DC}=0V} \approx 0.8 G_0$. Chaque spectre correspond à une tension continue différente. La jonction reste stable durant toutes les mesures présentées. Le nombre moyen de photons croît avec la tension. Les énergies liées aux tensions appliquées sont dans l’infrarouge et ne sont donc pas représentées sur le graphique. La totalité des photons recueillis est donc au-dessus de la limite quantique fixée par eV . La figure (b) est construite à partir de l’extraction pour chaque spectre de la figure (a) du photon de plus haute énergie. Chaque point correspond à l’énergie maximale enregistrée sortant du bruit de mesure, représentée en fonction de la tension. Les droites eV , $2eV$ et $3eV$ figurent sur ce graphique. La partie grisée, au-dessous de la droite eV indique la zone où l’émission peut être attribuée à l’effet tunnel inélastique. L’énergie maximale recueillie atteint jusqu’à 3 fois la tension appliquée avant de saturer aux environs de 2.6 eV. La bande orangée indique la zone énergétique à partir de laquelle les transitions inter-bandes de l’Au augmentent fortement le taux d’absorption.

spectre, la plus haute énergie enregistrée pendant la mesure est extraite. Ces points sont alors représentés en fonction de la tension appliquée correspondante. Les deux droites $h\nu = 3eV$ et $h\nu = 2eV$ sont indiquées sur ce graphique. Elles représentent l’énergie maximale cédée à un photon par la désexcitation combinée de respectivement trois électrons et deux électrons. La droite $h\nu = eV$ représente la limite quantique, correspondant à la désexcitation maximale d’un seul électron. La partie grisée en bas à droite met en évidence la zone dans laquelle le processus d’émission suit la règle de l’effet tunnel inélastique. Les mesures réalisées sont loin de cette limite quantique. Les premiers spectres comportent une énergie maximale environ trois fois supérieure à la limite quantique. L’énergie maximale diminue ensuite progressivement jusqu’à saturer vers les 2.6 eV. La partie colorée supérieure illustre le domaine énergétique dans lequel les transitions inter-bandes de l’Au dominant, ce qui représente le début de la bande d . Ces transitions correspondent aux énergies pour lesquelles la partie imaginaire de la permittivité augmente brutalement. C’est-à-dire aux alentours de 2.5 eV pour l’Au [99]. Cette propriété optique explique pourquoi les mesures d’émission saturent à l’énergie maximale de 2.6 eV. Les photons émis à ces énergies sont ainsi directement réabsorbés par la matière par des transitions

interbandes. Des mesures similaires ont été réalisées pour des jonctions de conductance comprises entre $0.05 G_0$ et G_0 . La limite quantique est franchie sur plusieurs eV. Cependant, l'élargissement du niveau de Fermi à température ambiante où les processus de diffusion Raman de surface exaltée ne permettent pas d'expliquer le franchissement de la quantique sur plusieurs eV.

D'autres observations du franchissement de la limite quantique ont été réalisées à partir de microscopes à effet tunnel [72, 96, 100-102]. Dans ces travaux, le mécanisme de radiation des photons est d'abord attribué à la relaxation spontanée d'électrons chauds [72, 96]. Plus tard, suite à l'observation de la signature de résonance plasmonique dans les spectres mesurés, cette hypothèse est délaissée au profit d'un processus en cascade proche de l'effet Auger. Dans ces travaux [100, 101], le peuplement des niveaux énergétiques supérieurs à celui de Fermi est expliqué à l'aide d'un processus de cascade électronique. L'énergie maximale est alors repoussée à $2e$ multipliée par la tension V appliquée, c'est à dire le nombre d'électrons impliqués dans le processus de cascade Auger envisagé. D'autres résultats similaires ont été obtenus en appliquant la théorie du blocage de Coulomb dynamique à l'interaction cohérente de deux électrons [102]. Ces différents travaux repoussent la limite énergétique atteinte par les photons à $h\nu_{max} = 2 eV$, avec une efficacité proche de 10^{-7} selon les calculs de G. Schull [100]. Récemment, P.-J. Peters *et. al* [103] démontre expérimentalement dans leurs spectres d'émission la présence de processus allant jusqu'à 3 électrons. À basse température, ces phénomènes se manifestent dans le spectre par la présence d'épaulements aux énergies correspondant respectivement à $1 eV$, $2 eV$ et $3 eV$. Bien que les spectres mesurés (figure 3.7 (a)) présentent des énergies allant jusqu'à $3 eV$, ils ne mettent pas clairement en évidence d'épaulements marquant le passage à des processus d'émission à 1, 2 ou 3 électrons [100]. Les résultats présentés mettent ainsi en évidence la nécessité d'introduire d'autres contributions au processus d'émission de photons.

La relaxation spontanée d'électrons chauds proposée par A. Downes [72] est un modèle compatible avec les mesures réalisées. Afin de mieux comprendre les mécanismes du phénomène observé, intéressons-nous à la dynamique du système.

3.4 Modèle à deux températures de la désexcitation radiative des électrons

Lorsqu'une tension V est appliquée à la jonction, les niveaux de Fermi des électrodes se désalignent. L'écart énergétique est alors égale à eV . Une portion des électrons de l'électrode source traverse alors la barrière de potentiel suivant la probabilité introduite par la fonction de transfert de la jonction. Ces électrons, arrivant sur l'électrode drain, n'interagissent pas entre eux avant un temps environ égal à

100 fs. C'est le temps nécessaire pour que les premières interactions se produisent. C'est ce qu'illustre la figure 3.8 (a).

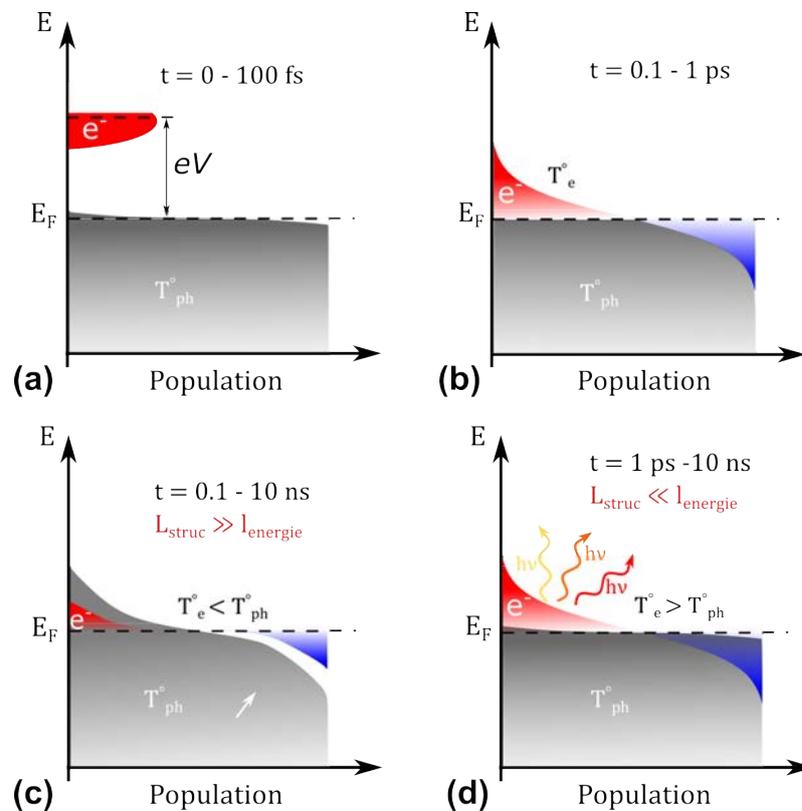


FIGURE 3.8 – Les figures (a)-(d) sont des diagrammes d'énergie représentant le système électrons + phonons à des échelles temporelles différentes [104]. La partie grise représente les états électroniques peuplés à l'équilibre. La figure (a) indique l'état d'énergie des électrons chauds (en rouge), venant de traverser la barrière tunnel. La figure (b) illustre l'évolution de la distribution de ces électrons chauds vers une distribution de Fermi-Dirac, correspondant à une température électronique T_e . La figure (c) indique l'évolution du système lorsque $L_{struc} \gg l_{energie}$. La désexcitation des électrons est non radiative et se fait principalement par transfert d'énergie aux phonons. La température du réseau augmente en proportion de l'énergie absorbée. La figure (d) représente quant à elle le mode de désexcitation privilégié des électrons lorsque $L_{struc} \ll l_{energie}$. Le surplus d'énergie des électrons est libéré sous forme radiative. Ce phénomène est illustré par les flèches colorées.

Les électrons interagissent ensemble localement pour former au bout d'une centaine de femtosecondes [104] une distribution de Fermi-Dirac (figure 3.8 (b)), signature d'une température électronique notée T_e . Cette distribution locale de porteurs chauds hors équilibre va alors chercher au bout de 0.1 à 1 ps à se relaxer via divers processus de désexcitation. Dans des conditions ordinaires, le mécanisme de relaxation prédominant est l'interaction électrons-phonons. Ce type de désexcitation, non-radiatif, correspond au transfert d'énergie des électrons vers les phonons,

qui entraîne ainsi une élévation de la température du réseau [105]. L'énergie est ensuite dissipée après quelques nanosecondes par dissipation thermique dans l'environnement (figure 3.8 (c)). Ces différents processus sont illustrés dans la figure 3.8. Dans le cas présent, toutes ces étapes se produisent de façon simultanée puisqu'un courant continu traverse la jonction. Le système évolue alors dans un état de quasi-équilibre.

Lorsque la taille caractéristique L_{struc} de la structure est plus faible que la longueur caractéristique d'échange électrons-phonons $l_{energie}$ ($l_{energie} = v_F \times \tau_{energie} \approx 1100$ nm avec $v_F = 1.4 \times 10^6$ m.s⁻¹ et $\tau_{energie} \approx 800$ fs [106]), le mécanisme de relaxation électrons-phonons ne demeure plus le mécanisme prédominant [107, 108]; c'est-à-dire lorsque $L_{struc} < l_{energie} \approx v_{Fermi} \times \tau_{energie}$, avec v_{Fermi} représentant la vitesse de Fermi, et $\tau_{energie}$ le temps caractéristique d'échange énergétique entre les électrons et les phonons. Les collisions des électrons avec les parois de la structure deviennent alors un mécanisme de refroidissement non négligeable. La figure 3.9 est image MEB d'une jonction tunnel émettrice. La zone indiquée en rouge et dont les dimensions sont évaluées à 30 nm grâce à l'agrandissement à droite de l'image montrent que nous nous situons dans le cas $L_{struc} < l_{energie}$. Une partie de l'énergie transportée par les électrons chauds peut alors être relaxée de façon radiative, par émission spontanée de photons (figure 3.8 (d)). Dans les travaux de Tomchuk et Federovich [107-109], ce type de luminescence est observé grâce au bombardement par faisceau d'électrons d'un film mince et nanoporeux d'Au. Les îlots d'Au formant le film et ayant des dimensions inférieures à $l_{energie}$ permettent la relaxation des électrons chauds selon un mode radiatif. Cette émission est assimilée au rayonnement d'un corps noir [110], non pas définie à partir de la température des phonons, mais à partir de la température électronique locale.

Dans un tel système, il devient nécessaire de définir un modèle prenant en compte deux températures distinctes : celle des électrons, et celle du réseau, c'est-à-dire celle des phonons. Les premiers modèles à deux températures apparurent dans les années 1970 [111, 112]. Leur fonction consistait à décrire les différentes dynamiques de photoémission des électrons, éjectés par des impulsions laser subnanosecondes.

À partir des différents travaux menés sur les interactions laser-matière, Alexander Uskov et Igor Smetanin ont développé un modèle à deux températures permettant de décrire l'évolution du système suite à l'injection continue d'une puissance électrique. La figure 3.10 en est une représentation schématique. Une puissance électrique P , dépendante de la quantité d'électrons et de leur énergie cinétique, est injectée dans l'aire A_{eff} représentée en rouge sur la figure. Le problème se modélise alors par l'équation suivante :

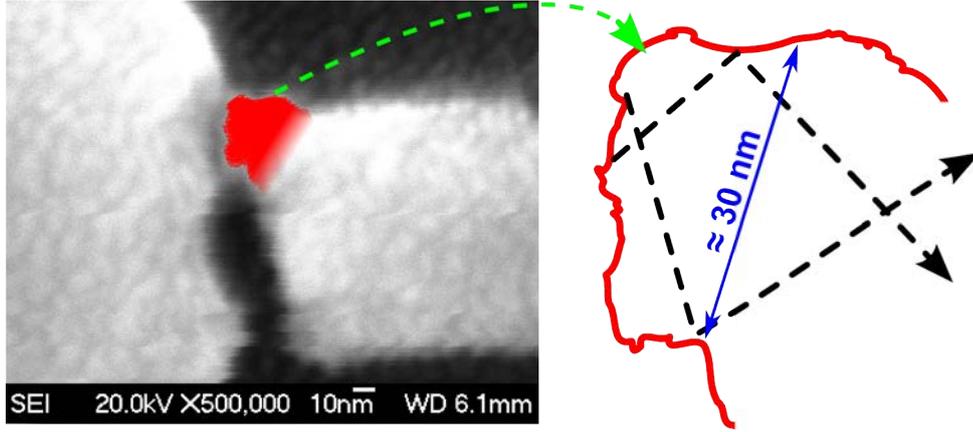


FIGURE 3.9 – Image MEB d’une jonction tunnel émettrice. Cette image est un exemple de géométrie compatible avec le phénomène de désexcitation radiative des électrons par collisions avec les parois de la structure. La partie rouge représente la zone au sein de laquelle les électrons peuvent entrer en collision avec les parois avant d’avoir parcouru l_{energie} . La flèche verte renvoie à un agrandissement de la zone dont les parois sont représentées en rouge. Ici, L_{struc} est d’environ 30 nm, ce qui est très inférieur à $l_{\text{energie}} = v_F \times \tau_{\text{energie}} \approx 1100$ nm avec $v_F = 1.4 \times 10^6$ m.s⁻¹ et $\tau_{\text{energie}} \approx 800$ fs [106].

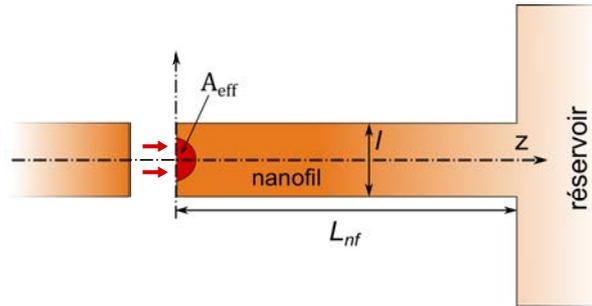


FIGURE 3.10 – Représentation schématique du problème de la dissipation d’une puissance électrique injectée au voisinage de la jonction tunnel. Les électrons ayant traversé la barrière tunnel sont injectés dans l’aire A_{eff} représentée en rouge. Le nanofil, de longueur L_{nf} et de largeur et hauteur l , est relié à un réservoir à partir de $z = L_{\text{nf}}$. Ce réservoir est assimilé à un dissipateur thermique parfait.

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(C_e(T_e) \times T_e(z, t) \right) = \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_e(T_e) \times \frac{\partial T_e(z, t)}{\partial z} \right) + \rho(z) - W_{e-ph}(T_e, T_{ph}) \quad (3.1)$$

Dans cette équation, la température électronique correspond à T_e et la température des phonons à T_{ph} . Le terme source de cette équation est $\rho(z)$. Il représente la distribution linéique de la puissance $P = V \times I$ injectée. L’aire effective d’injection de la puissance électrique est caractérisée par A_{eff} . Les pertes sont modélisées par W_{e-ph} , représentant le flux de chaleur des électrons vers les phonons. κ_e correspond à la conductivité thermique électronique en W.m⁻¹.K⁻¹.

3.4. Modèle à deux températures de la désexcitation radiative des électrons

Pour des éléments massifs, $\kappa_e = C_e \nu_{Fermi} \frac{L_e}{3} = \gamma T_e \nu_{Fermi} \frac{L_e}{3} = b T_e$ avec C_e la capacité thermique électronique, $\gamma = \frac{\pi^2 N_e k_B^2}{2 E_F}$ la constante de Sommerfield, N_e le nombre d'électrons, L_e le libre parcourt moyen d'un électron et $b = \gamma \nu_{Fermi} \frac{L_e}{3}$ appelé coefficient de conductivité thermique électronique. Lorsque L_{struc} devient de l'ordre de L_e , il a été démontré que les interactions des électrons avec la surface influent sur κ_e . Dans le cas de nanofils, le coefficient de conductivité thermique électronique b est alors réduit de façon significative [113].

En prenant $L_{nf} \gg l$ et en se plaçant à l'équilibre, l'équation 3.1 devient sous sa forme stationnaire :

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) + \rho(z) - W_{e-ph}(T_e, T_{ph}) = 0 \quad (3.2)$$

Supposons maintenant que toute la puissance est injectée à la position $z=0$, c'est-à-dire que $\rho(z=0) \approx \delta(z=0)$, que $T_{ph} = T_{ambient}$, et que $T_e(z=L_{nf}) = T_{ambient}$. Ce qui revient à résoudre :

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - W_{e-ph}(T_e, T_{ph}) = 0 \quad (3.3)$$

avec

$$-b T_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \Big|_{z=0} = \frac{V \times I}{A_{eff}}$$

Dans des conditions classiques de relaxation électrons-phonons, c'est-à-dire lorsque $L_{struc} \gg l_{energie}$, le terme dissipatif W_{e-ph} s'écrit $W_{e-ph} = H(T_e - T_{ph})$. H représente ici une constante de couplage. En raison de l'électromigration, la largeur l du nanofil à proximité de la jonction est réduite. L'exemple donné par la figure 3.9 révèle en effet que $L_{struc} \ll l_{energie}$. Dans le cas présent, la dépendance électron-phonon n'est plus la même. Il faut alors redéfinir une nouvelle constante de couplage H' telle que :

$$W_{e-ph} = H'(T_e^2 - T_{ph}^2) \quad (3.4)$$

avec

$$H' = \frac{\pi^2 k_B^2 m_e^2}{4 M \hbar^3} E_F \frac{1}{L_{eff}} \quad (3.5)$$

M désigne la masse atomique, m_e la masse de l'électron et $L_{eff} \approx \sqrt{A_{eff}}$ la largeur effective de l'aire d'injection. L'équation 3.3 se résume ainsi à :

$$\frac{\partial}{\partial z}(\kappa_e(T_e)\frac{\partial T_e}{\partial z}) - H'(T_e^2 - T_{ph}^2) = 0 \quad (3.6)$$

À partir des conditions initiales, une solution de l'équation 3.6 peut s'écrire sous la forme :

$$T_e = T_{ph} \sqrt{1 + \frac{2P}{A_{eff}} \sqrt{\frac{1}{2bH'T_{ph}^4}} \times \frac{e^{-\frac{z}{z_0}} - e^{-\frac{-2L_{nf}}{z_0}} e^{-\frac{z}{z_0}}}{1 + e^{-\frac{-2L_{nf}}{z_0}}}} \quad (3.7)$$

avec

$$z_0 = \sqrt{\frac{b}{2H'}} \quad (3.8)$$

En fixant la température électronique maximale à $z=0$, ie $Max(T_e(z)) = T_e(z = 0)$, et avec l'approximation $L_{nf} \gg z_0$:

$$\begin{aligned} T_e &= T_{ph} \sqrt{1 + \frac{2P}{A_{eff}} \sqrt{\frac{1}{2bH'T_{ph}^4}} \times \frac{e^{-\frac{z}{z_0}} (1 - e^{-\frac{-2L_{nf}}{z_0}})}{1 + e^{-\frac{-2L_{nf}}{z_0}}}} \\ &= T_{ph} \sqrt{1 + \frac{2P}{A_{eff}} \sqrt{\frac{1}{2bH'T_{ph}^4}}} \\ &= T_{ph} \sqrt{1 + \frac{\alpha}{(k_B T_{ph})^2} IV} \end{aligned} \quad (3.9)$$

avec

$$\alpha = \frac{2k_B^2}{A_{eff}\sqrt{2bH'}} = \frac{4k_B}{L_{eff}^{\frac{3}{2}} m_e \pi \sqrt{2b \frac{E_F}{M\hbar^3}}} \quad (3.10)$$

Ce qui mène à :

$$k_B T_e = \sqrt{(k_B T_{ph})^2 + \alpha IV} \quad (3.11)$$

puisque $T_e \gg T_{ph}$, on peut donc réécrire l'équation 3.11 de telle sorte que :

$$\begin{aligned} k_B T_e &= \sqrt{\alpha IV} \\ &= \sqrt{\alpha P} \end{aligned} \quad (3.12)$$

L'équation 3.12 permet ainsi d'obtenir la température électronique du système. Cette température est fonction de la racine carré de la puissance électrique injectée dans la jonction, multipliée par une constante dépendant des caractéristiques physiques du volume d'injection. Dans les travaux de Tomchuk et Federovich [107-109], l'expression du coefficient α , que l'on appellera α' dans leurs cas, diffère :

$$\alpha' = \left(\frac{\pi^2}{4} \frac{(mL_{eff})^2}{M\hbar^3} E_F \right)^{-1} \quad (3.13)$$

Ce paramètre est issu d'un modèle ne prenant pas en compte le transfert de chaleur par conduction thermique électronique. La géométrie du problème étant différente de celle de Tomchuk et Federovich (îlots isolés d'Au contre nanofils d'Au), nous pensons que la conduction électronique de chaleur le long du nanofil ne peut être négligée dans le cas présent. C'est pourquoi α diffère de celui proposé par le modèle de Tomchuk et Federovich.

L'expression de la grandeur α nous permet ainsi de mettre en relation la puissance électrique injectée avec la température électronique. Dans la figure 3.7, chaque spectre est enregistré avec une tension appliquée croissante. Cette augmentation de tension entraîne nécessairement une croissance de la puissance électrique injectée dans la jonction. L'expression 3.12 montre alors que cette augmentation de la puissance électrique injectée amène à une élévation de la température électronique. Ces variations de température électronique ont alors un impact sur les spectres mesurés. Plus la température électronique est élevée, plus la quantité de lumière émise dans le visible est importante.

3.4.1 Relation entre spectre et puissance dissipée : Loi de Planck

Le spectre électromagnétique d'un corps noir, à l'équilibre thermique, est défini par la loi de Planck. À partir de la densité d'états vibratoires $g(\nu) = \frac{8\pi\nu^2}{c^3}$, et de la quantité moyenne d'énergie d'un état définie par la distribution de Bose-Einstein $\langle E \rangle = \frac{h\nu}{e^{\frac{h\nu}{k_B T}} - 1}$, on obtient la densité d'énergie de Planck B_ν :

$$\begin{aligned} B_\nu(\nu, T) &= g(\nu) \times \langle E \rangle \\ &= \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \frac{1}{e^{\frac{h\nu}{k_B T}} - 1} \end{aligned} \quad (3.14)$$

Cette équation permet ainsi de prédire la répartition spectrale de l'émission lumineuse d'un corps chaud, parfaitement absorbant, en fonction de sa température. Quelques exemples numériques de spectres de rayonnement thermique sont illustrés par la figure 3.11 (a). La densité spectrale y est représentée en échelle logarithmique. Les droites pointillées représentent les énergies pour lesquelles la figure (b) est représentée. La figure 3.11 (b) met en évidence l'évolution de la quantité de photons émis en fonction de l'élévation de la température. Les fortes variations impliquent l'utilisation d'une échelle logarithmique. Sur ces graphiques, on remarque que l'évolution de l'intensité lumineuse est dépendante de l'énergie observée. Pour les températures comprises entre 500 et 2000 °K, la densité spectrale augmente brutalement d'une dizaine d'ordres de grandeur. L'évolution se stabilise ensuite progressivement pour les températures supérieures à 2000 °K, avec l'observation d'un phénomène de saturation. Cette remarque est mise en évidence par l'allure de la courbe de la figure 3.11 (a) pour les hautes températures, qui correspond au domaine de validité de la loi de Rayleigh-Jeans.

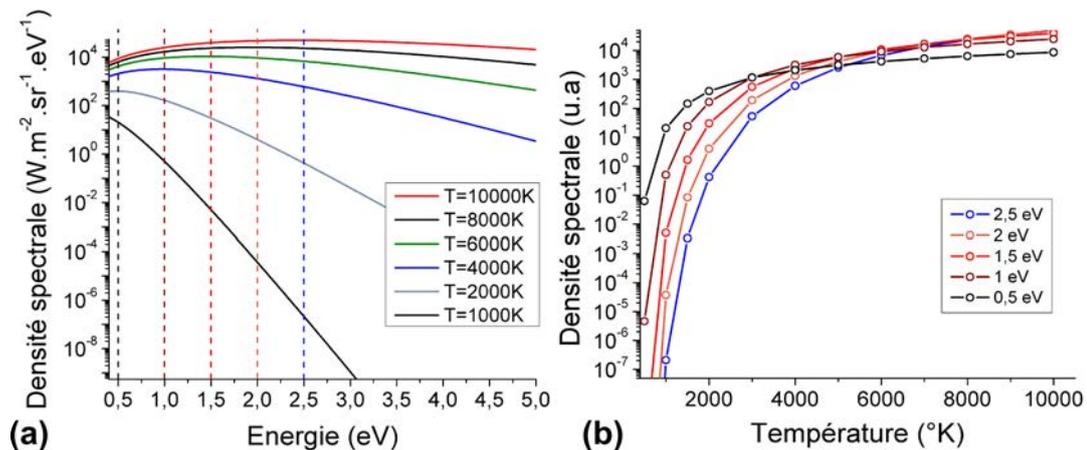


FIGURE 3.11 – Le graphique (a), en échelle semi-logarithmique, représente la densité spectrale émise par un corps noir en fonction de l'énergie d'émission observée. Les différentes couleurs correspondent aux températures d'émission considérées. Les lignes en pointillés indiquent les énergies représentées sur la figure (b). La figure (b) illustre l'évolution de la densité spectrale en fonction de la température pour les énergies 0.5, 1, 1.5, 2 et 2.5 eV. Après une augmentation brutale de plusieurs ordres de grandeurs jusqu'à environ 2000 °K, la densité spectrale se stabilisent jusqu'à saturation.

À partir des descriptions précédentes, les électrons traversant la barrière tunnel peuvent être considérés comme un gaz de porteurs chauds lorsqu'ils sont collectés par le drain. La loi de Planck, fonction de la température T_{ph} du réseau, peut alors être réexprimée en fonction de la température T_e de ces porteurs chauds. L'approximation 3.12 ($k_B T_e = \sqrt{\alpha P}$) permet alors de décrire l'équation 3.14 en fonction de P . Ainsi, $B_\nu(\nu, T)$ est exprimée en fonction de la puissance P de la façon suivante :

$$B_\nu(\nu, P) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \times \frac{1}{e^{\frac{h\nu}{\sqrt{\alpha P}}} - 1} \quad (3.15)$$

La fonction logarithme népérien permet de linéariser $B_\nu(\nu, P)$ [72] pour trouver :

$$\begin{aligned} \ln(B_\nu(\nu, P)) &= \ln\left(\frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \times \frac{1}{e^{\frac{h\nu}{\sqrt{\alpha P}}} - 1}\right) \\ &= \ln\left(\frac{8\pi h\nu^3}{c^3}\right) - \frac{h\nu}{\sqrt{\alpha P}} \end{aligned} \quad (3.16)$$

Pour une fréquence ν choisie, $\ln(B_\nu(\nu, P))$ varie linéairement en fonction de $\frac{1}{\sqrt{P}}$.

Afin d'analyser les spectres mesurés à partir de ce modèle, il est nécessaire d'évaluer la puissance électrique moyenne injectée dans la jonction. Cette puissance est calculée à partir de la mesure du courant et de la tension électrique. Pour chaque spectre présenté par la figure 3.7, le courant électrique traversant la jonction est enregistré durant le temps d'acquisition. La figure 3.12 (a) illustre le type de mesure obtenu. Chaque créneau représente l'évolution du courant en fonction de la tension continue appliquée. On remarque quelques variations durant le temps de mesure. Seules les mesures comportant un signal stable sont utilisées. Cette stabilité est aussi le signe que la jonction n'a pas subi de modifications significatives durant la mesure. La valeur moyenne du courant pour chaque tension appliquée est ainsi calculée. La figure 3.12 (b) illustre les courants moyens mesurés en fonction de la tension appliquée aux bornes de la jonction. La continuité des mesures indique une nouvelle fois que la jonction n'a pas été altérée. Toute modification de la structure atomique ayant un impact significatif sur les propriétés de conduction. On remarque aussi que la non-linéarité de la jonction permet de passer au dessus du régime de courant $I = G_0 \times V$ à partir d'environ 700 mV. Le flux de courant est tel qu'il est alors supérieur au courant obtenu par contact monoatomique. Les puissances électriques moyennes sont calculées pour chaque spectre.

La mesure de la puissance électrique appliquée durant chaque spectre permet de mettre en évidence l'évolution de l'intensité lumineuse à une énergie donnée. La figure 3.13 (a) représente une série de spectres pour lesquels la puissance électrique moyenne est connue. La jonction n'est pas altérée durant ces mesures. La figure 3.13 (b) est construite à partir des intensités lumineuses recueillies à une énergie de 1.6 eV sur les différents spectres. La ligne en pointillé rouge de la figure (a) indique l'énergie à laquelle les mesures sont extraites. L'intensité lumineuse, représentée en échelle logarithmique, évolue de façon linéaire en fonction de l'inverse de la racine carrée de la puissance. Une régression linéaire, indiquée en pointillés noirs,

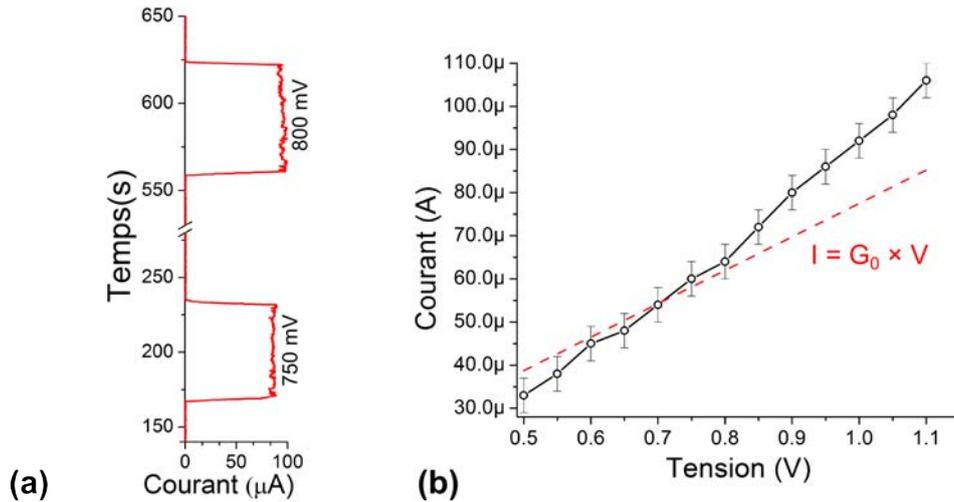


FIGURE 3.12 – La figure (a) représente une trace temporelle de courant mesuré pendant l’application successive des tensions 750 mV et 800 mV. On remarque quelques fluctuations autour d’une valeur moyenne. Les courants moyens mesurés sont représentés en fonction des tensions appliquées dans la figure (b). La droite rouge en pointillée correspond à la droite d’équation $I = G_0 \times V$. À partir d’environ 700 mV, le courant passe au dessus de cette droite en raison de la non-linéarité de la caractéristique I/V.

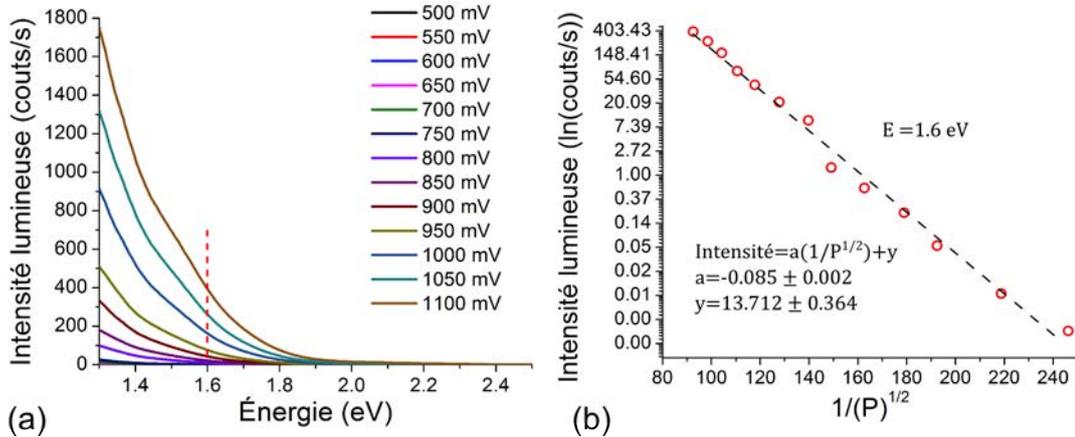


FIGURE 3.13 – La figure (a) est une représentation des spectres mesurés pour différentes tensions appliquées. La conductance de la jonction tunnel observée est $G|_{V_{DC}=0V} \approx 0.8 G_0$. La ligne en pointillé rouge indique l’énergie correspondant à la fréquence à laquelle l’évolution de $\ln(B_\nu(\nu, P))$ est représentée par la figure (b). La figure (b) illustre l’évolution de l’intensité lumineuse à 1.6 eV en échelle logarithmique, en fonction de l’inverse de la racine carrée de la puissance électrique. La droite correspond à une régression linéaire effectuée à partir du modèle de Planck introduit précédemment.

permet de mettre en évidence cette linéarité. Ce premier point permet de constater que le modèle de Planck développé précédemment semble en accord avec les observations réalisées. Le coefficient directeur a de cette droite est directement relié au coefficient α tel que $\alpha = (-E/a)^2$. α est ici évalué à $356.5 \text{ eV} \cdot \text{W}^{-\frac{1}{2}}$ pour une énergie de 1.6 eV. On remarquera que la forme logarithmique de l’expression 3.16 permet

de s'affranchir d'un éventuel facteur de correction expérimental non évalué, sous réserve que ce facteur soit linéaire en fonction de l'intensité lumineuse reçue. Cette hypothèse assure donc que la mesure du coefficient α ne changerait pas si seulement une portion de la lumière était collectée par le système. Pour vérifier la robustesse du modèle, le même protocole est appliqué à toutes les énergies de la fenêtre spectral de mesure. Pour chaque énergie, une régression linéaire est effectuée pour calculer $\alpha(E)$. À partir des différentes valeurs de $\alpha(E)$ et par l'intermédiaire de la relation (3.12), on retrouve ainsi :

$$T_e(E) = \frac{\sqrt{\alpha(E)P}}{k_B} \quad (3.17)$$

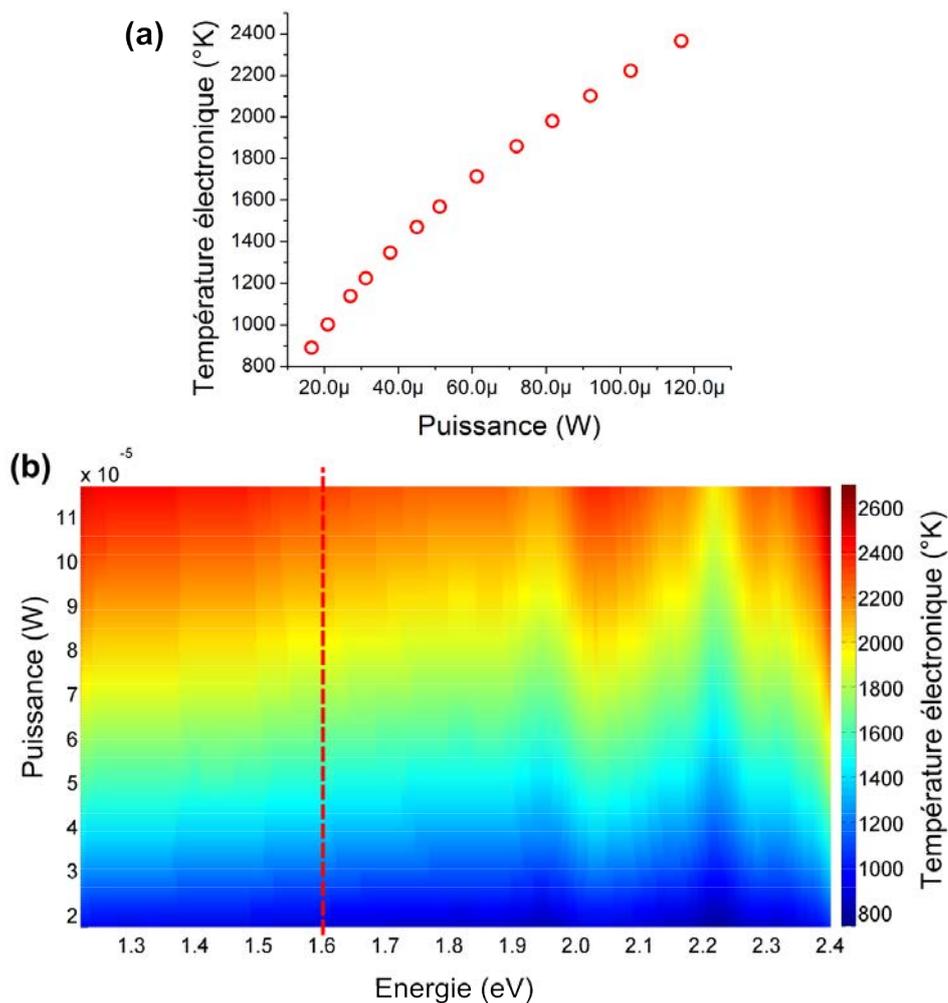


FIGURE 3.14 – La figure (a) représente l'évolution de la température électronique calculée en fonction de la puissance électrique. Ce calcul est réalisé à partir de la valeur du coefficient $\alpha(1.6 \text{ eV})$. La figure (b) présente les résultats obtenus pour toutes les énergies enregistrées sur les spectres. La ligne rouge en pointillés représente l'énergie pour laquelle la figure (a) est représentée.

L'évolution de la température électronique pour $\alpha(1.6 \text{ eV})$ est représentée par la figure 3.14 (a), à l'aide de l'équation 3.17. La température électronique maximale

atteinte à cette énergie est d'environ 2400 °K, ce qui est bien au dessus de la température de fusion, c'est-à-dire 1337 °K pour l'Au massif [114]. Pour des structures de dimensions réduites comme dans le cas présent, la température de fusion est encore plus basse [115]. Ces informations concordent avec le choix de considérer la température électronique locale et non pas la température du matériau. La figure 3.14 (b) représente quant à elle l'évolution de la température électronique à toutes les énergies mesurées. La valeur moyenne des coefficients α calculés sur cette plage spectrale est de $348.3 \text{ eV}\cdot\text{W}^{-\frac{1}{2}}$, avec $\max(\alpha(E)) = 462.9 \text{ eV}\cdot\text{W}^{-\frac{1}{2}}$ et $\min(\alpha(E)) = 249.5 \text{ eV}\cdot\text{W}^{-\frac{1}{2}}$. Les énergies supérieures à 2.4 eV ne sont pas représentées en raison d'un signal trop faible pour effectuer une régression linéaire. La température évolue d'environ 800 à 2600 °K de façon quasi-homogène en énergie, hormis quelques irrégularités (1.95 eV et 2.25 eV). Cette homogénéité des températures traduit la fiabilité de l'interprétation. En effet, les intensités lumineuses semblent croître en accord avec le modèle de Planck, et ce pour des énergies allant de 1.2 à 2.4 eV. Le fait de déduire une température électronique quasi-constante pour une puissance électrique donnée indique aussi que l'approximation effectuée précédemment est adéquate. Les variations observées à 1.95 eV et à 2.25 eV pourraient être attribuées au fait que l'Au ne peut être considéré comme un corps parfaitement absorbant dans ce domaine optique. Elles peuvent aussi provenir de résonances plasmoniques qui induiraient une distribution des états différente de la densité d'états optiques dans le vide.

Dans le cadre de cette étude, il est aussi intéressant de discuter la validité de l'utilisation du modèle de Planck avec le système étudié. Traditionnellement, une telle dispersion énergétique dans un spectre peut principalement être expliquée par deux phénomènes : la loi de Planck et le bremsstrahlung (rayonnement continu de freinage). Dans le cas d'un système assimilé à un plasma d'électrons de température T_e , le bremsstrahlung décrit la perte d'énergie subit par les électrons dont la trajectoire est déviée par la présence de porteurs de charges positives [116]. La perte d'énergie cinétique caractérisée par le freinage de ces électrons est alors associée à l'émission de photons, dont l'énergie maximale est limitée par l'énergie cinétique des électrons (cas extrême d'un électron arrêté par le freinage). À proximité de cette limite, la variation d'intensité lumineuse suit, tout comme la loi de Planck, une décroissance exponentielle proportionnelle à $\exp(-h\nu/k_B T_e)$. La queue des spectres présentés dans les mesures précédentes pourrait donc aussi avoir pour origine le bremsstrahlung des électrons chauds du système en interaction avec les parois. Lorsque la profondeur de peau est supérieure à la longueur caractéristique du système et que la densité d'électrons est grande, le spectre émis par le bremsstrahlung devient alors identique à celui émis par la loi de Planck. Lorsque la profondeur de peau devient fine devant la taille caractéristique du système et que la densité d'électrons est faible (milieu très dilué), le bremsstrahlung diffère du modèle du corps noir en présentant au niveau du spectre un plat aux énergies d'émissions moyennes. Dans notre situation, la densité d'électrons est importante (métal), mais la profondeur de peau

n'est pas négligeable vis à vis de la longueur caractéristique du système (quelques nanomètres). Ce point nous place donc a priori entre les deux cas envisagés précédemment. La fenêtre spectrale d'observation ne nous permet pas de distinguer les origines possibles de l'émission. Des mesures de photons à plus basses énergies (infrarouge) permettraient de répondre à la question, suivant la présence ou non d'un plateau dans le spectre. Cependant, il est important de noter que les similitudes des deux modèles dans la gamme d'énergie étudiée ne remettent pas fondamentalement en cause l'interprétation de l'émission en tant que désexcitation radiative d'un bain d'électrons chauds. Dans le cadre d'un équilibre local, c'est-à-dire une thermalisation des électrons, la loi de Kirchhoff reste valide. Le spectre d'émission attendu pour ce type d'émetteurs en équilibre local est la loi de Planck multipliée par l'absorptivité du milieu [117, 118].

Des expériences similaires à celles présentées précédemment ont été menées par Downes [72] au microscope à effet tunnel (STM), et par Malinowski [98, 119] à l'aide de jonctions brisées mécaniquement (JBM). Dans ces travaux, les coefficients α sont évalués à partir de l'intégration de la lumière émise sur une fenêtre spectrale plus ou moins large. La quantité de lumière intégrée sur cette fenêtre spectrale est comparée au modèle de Planck avec l'approximation $k_B T_e = \sqrt{\alpha P}$. Les résultats démontrent là aussi une dépendance linéaire de $\ln(B_\nu(\nu, P))$ en fonction de $\frac{1}{\sqrt{P}}$. Pour comparer les résultats obtenus par les différentes équipes, Malinowski emploie un formalisme différent en introduisant la grandeur $\beta = \sqrt{\alpha G}$, avec G la conductance du nanofil. Ce formalisme présente l'avantage d'utiliser un coefficient adimensionnel de telle sorte que $k_B T_e = \beta eV$.

TABLE 3.1 – Tableau comparatif des différents paramètres β présents dans la littérature. Ce tableau est repris de Malinowski [119] et est complété. Les techniques cités en rouge sont utilisées conjointement avec la détection de la lumière émise par les jonctions. Le paramètre β est issu de l'analyse de la lumière émise en fonction de la puissance électrique injectée dans la jonction. La technique en bleue utilise l'analyse spectrale du bruit électronique radio-fréquence et la technique en vert étudie les fluctuations locales de conductance enregistrées par une sonde tunnel. Les développements analytiques effectués pour évaluer α et β à partir de Chen *et al.* [120] sont présentés en détail dans la section 3.5

Publication	Technique expérimentale	$T_{ambient}$ (°K)	β
De Jong <i>et al.</i> [121]	Fils mésoscopiques (Théorie)	0	0.28
Pierre <i>et al.</i> [122]	Fils mésoscopiques (Exp.)	0.04	0.275
Downes <i>et al.</i> [72]	MET	300	0.19 , 0.17
Malinowski <i>et al.</i> [119]	JBM	300	0.18
Buret <i>et al.</i>	Électromigration	300	0.147
Chen <i>et al.</i> [120]	MET	300	0.07, 0.175

Le tableau 3.1 regroupe les différentes valeurs de β trouvées et calculées à partir

de la littérature. Les données sont extraites des publications associées. Ces résultats sont en partie repris de Malinowski [119]. On remarque dans ce tableau que les valeurs du coefficient β sont assez similaires, pour des températures ambiantes du même ordre. La similitude des résultats obtenus malgré la diversité des techniques et modèles employés justifie l'interprétation de la désexcitation radiative d'un gaz d'électrons chauds.

Les résultats présentés permettent d'évaluer le volume du gaz d'électrons chauds impliqué dans le processus d'émission lumineuse. Une estimation du paramètre L_{eff} peut être obtenue à partir de l'expression 3.10 de α , de telle sorte que :

$$L_{eff} = \left(\frac{4k_B}{\alpha m_e \pi \sqrt{2b \frac{E_F}{M\hbar^3}}} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (3.18)$$

Le coefficient de conductivité thermique électronique b est lui-même dépendant de la taille caractéristique du système. Deux valeurs extrêmes peuvent néanmoins être envisagées : $b= 0.03$ (nanofil de 1 nm de diamètre [113]) et $b= 1$ pour l'Au massif [113]. La valeur moyenne de α déduite précédemment permet d'encadrer respectivement L_{eff} entre 32 et 10 nm. En assimilant L_{eff} à L_{struc} , on remarque que ces valeurs sont en accord avec l'hypothèse $L_{struc} < (l_{energie}, L_e)$, nécessaire en tant que condition d'utilisation du modèle. L'encadrement effectué sur L_{eff} est aussi parfaitement compatible avec l'image de la figure 3.9. L'aire envisagée en rouge pourrait alors très bien illustrer l'étendue du gaz d'électrons chauds.

La section suivante décrit les développements analytiques effectués afin d'obtenir les valeurs de α et β à partir des résultats de Chen *et al.* [120].

3.5 Détermination de α à partir de Chen *et al.*

La méthode de détermination de la température électronique et le formalisme utilisés par Chen *et al* sont différents de ceux employées durant cette thèse. Leur technique consiste à mesurer le bruit électronique radio-fréquence, provoqué par le passage du courant à travers une constriction de dimension nanométrique. Cette étude leur permet d'en extraire une dépendance de la température électronique locale du système par rapport au bruit électronique. Malgré la divergence des techniques employées, il est néanmoins possible d'établir un parallèle avec les résultats de l'article [120].

Dans cet article, la conductance thermal électronique est exprimée par :

$$C_e = \kappa \frac{A}{l} \quad (3.19)$$

On retrouve κ la conductivité thermique, A l'aire de la constriction et l la longueur de celle-ci. À partir de la loi de Wiedmann-Franz $\kappa = L_{Lorenz} T_e \sigma$, C_e peut se réécrire de telle sorte que :

$$C_e = L_{Lorenz} T_e \sigma \frac{A}{l} = L_{Lorenz} T_e G \quad (3.20)$$

avec $L_{Lorenz} = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e^2}$ la constante de Lorenz, σ la conductivité électrique, G la conductance de la constriction et T_e la température électronique du système. En correspondance avec l'équation 3.20, la puissance thermique P_{out}^{th} délivrée par l'élévation en température de la constriction est :

$$\begin{aligned} P_{out}^{th} &= C_e \times (T_e - T_0) = (L_{Lorenz} T_e G) \times (T_e - T_0) = \frac{T_e + T_0}{2} L_{Lorenz} G \times (T_e - T_0) \\ &= \frac{1}{2} L_{Lorenz} G \times (T_e^2 - T_0^2) \end{aligned} \quad (3.21)$$

La partie de la puissance électrique contribuant à l'élévation en température de la jonction par effet Joule, nommée P_{in}^{el} , s'exprime sous la forme $P_{in}^{el} = \alpha_{fraction} G V^2$, avec $\alpha_{fraction}$ la proportion de la puissance électrique dissipée par effet Joule au sein de la constriction. Puisque la longueur d'interaction électron-phonon est plus grande que la taille de la jonction, la puissance absorbée P_{in}^{el} est intégralement transportée par les électrons, puis dissipée sous la forme de la puissance thermique nommée P_{out}^{th} ($P_{in}^{el} = P_{out}^{th}$). En introduisant P_{in}^{el} au sein de l'équation 3.21, on trouve l'expression de la température T_e telle que :

$$T_e = \sqrt{T_0^2 + \frac{2\alpha_{fraction} V^2}{L_{Lorenz}}} = T_0 \sqrt{1 + \frac{2\alpha_{fraction} P_{in}^{el}}{T_0^2 G L_{Lorenz}}} \quad (3.22)$$

Lorsque le facteur $\frac{2\alpha_{fraction} P_{in}^{el}}{T_0^2 G L_{Lorenz}} \gg 1$, la température du système électronique se simplifie sous la forme :

$$T_e = \sqrt{\frac{2\alpha_{fraction} P_{in}^{el}}{GL_{Lorenz}}} = \sqrt{\frac{2\alpha_{fraction} P_{in}^{el} k_B^2}{GL_{Lorenz} k_B^2}} = \sqrt{\frac{\alpha'' P_{in}^{el}}{k_B^2}} \quad (3.23)$$

qui est alors équivalent à :

$$k_B T_e = \sqrt{\alpha'' P_{in}^{el}} \quad (3.24)$$

avec $\alpha'' = \frac{2\alpha_{fraction} k_B^2}{GL_{Lorenz}}$. L'expression 3.24 permet de faire remarquer que là encore la température électronique est proportionnelle à la racine carrée de la puissance électrique injectée dans ce système. En prenant arbitrairement une conductance égale au quantum de conductance $G_0 = \frac{2e^2}{h}$ et $L_{Lorenz} = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e^2}$ on trouve :

$$\alpha'' = \frac{6}{\pi} \alpha_{fraction} \hbar \quad (3.25)$$

Dans leur article, Chen *et al.* utilisent deux valeurs de $\alpha_{fraction}$: $\alpha_{fraction} = 0.02$ à partir de leurs mesures, et $\alpha_{fraction} = 0.05$ à partir des informations de l'article de D'Agosta [123]. Ces deux valeurs permettent de déduire respectivement $\alpha'' = 0.04 \hbar$ et $\alpha'' = 0.1 \hbar$. Afin de comparer ces valeurs avec notre modèle, reprenons l'expression de α de l'équation 3.10 :

$$\alpha = \frac{4k_B}{L_{eff}^{\frac{3}{2}} m_e \pi \sqrt{2b \frac{E_F}{M\hbar^3}}} = \frac{4k_B}{L_{eff}^{\frac{3}{2}} m_e \pi \sqrt{2b \frac{E_F}{M\hbar}}} \hbar \quad (3.26)$$

En utilisant les grandeurs $b = 0.03$ et $L_{eff} = 32$ nm, déduites précédemment, on obtient $\alpha = 0.078 \hbar$. La concordance des valeurs de α et de α'' calculées confirment la fiabilité du modèle considéré. Bien que chaque jonction comporte une géométrie différente, les valeurs déduites restent assez proches d'une méthode de détection à l'autre. À partir de $\alpha = 0.078 \hbar$ et de l'équation 3.25, on peut approximer $\alpha_{fraction}$ dans notre situation à $\alpha_{fraction} \approx 0.04$. Cette approximation nous permet d'évaluer que seulement 4% de la puissance électrique traversant la jonction est absorbée pour alimenter le bain d'électrons chauds, dont l'énergie est ensuite en partie relaxée sous forme lumineuse. La diminution du paramètre L_{eff} permettrait d'augmenter α et donc $\alpha_{fraction}$. Ce point est expérimentalement envisageable à condition de réduire

localement les dimensions de l'électrode d'arrivée. Les électrons interagiront de façon plus significative avec les parois et le transfert d'énergie des électrons aux phonons diminuera lui aussi. En accord avec la loi de Planck, l'élévation des températures électroniques atteintes permettrait d'augmenter l'intensité lumineuse émise.

3.6 Résonances plasmoniques

Les mesures réalisées durant cette thèse ont parfois montré quelques divergences par rapport au modèle de Planck utilisé. Ces divergences sont caractérisées par la présence d'une ou plusieurs bosses sur le spectre mesuré. La figure 3.15 (a) présente un spectre caractéristique de ces observations. La courbe rouge représente la mesure réalisée alors que la courbe noire indique le spectre attendu pour un corps noir rayonnant à une température de 1938 °K. La déviation est observée par l'écart apparent entre ces deux courbes.

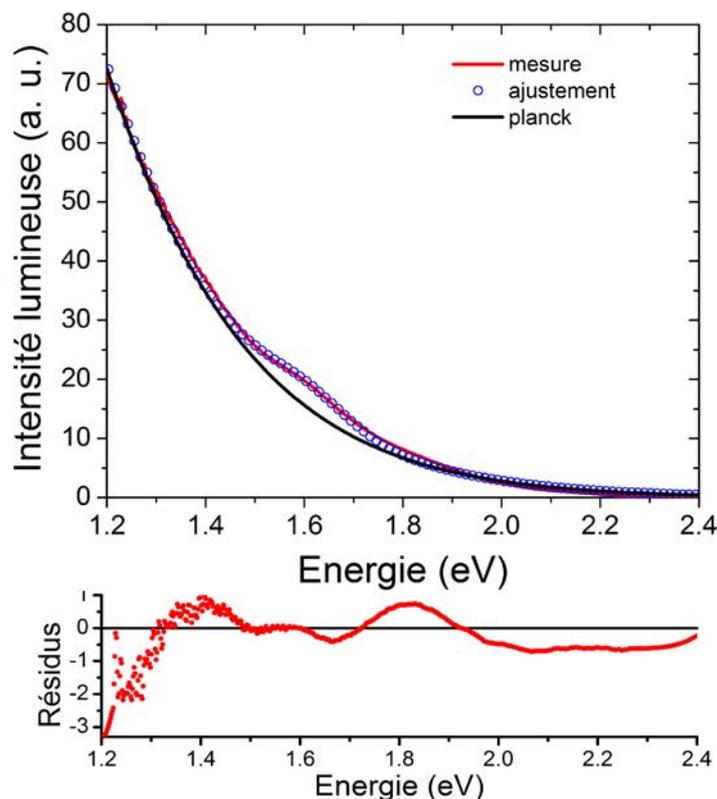


FIGURE 3.15 – La courbe rouge de la figure (a) représente un spectre mesuré pour une tension de 850 mV. La conductance de la jonction étudiée est de $0.8 G_0$. La courbe noir représente la lumière émise par un corps noir à la température de 1938 °K. Les cercles bleus représentent le résultat obtenu à partir de l'ajout d'une résonance plasmonique au modèle du corps noir présenté précédemment. La figure (b) présente les résidus obtenus à partir de cet ajustement.

Le modèle de Planck précédemment utilisé ne prend pas en compte les variations locales de la densité d'états optiques du milieu. La densité d'états utilisée correspond à celle du vide, c'est-à-dire à $g(\nu) = \frac{8\pi\nu^2}{c^3}$ ou encore $g(E) = \frac{8\pi E^2}{(hc)^3}$, avec E l'énergie considérée. Pour mieux représenter les spectres obtenus, une résonance plasmonique a été ajoutée au modèle développé précédemment. Cette résonance plasmonique est modélisée par l'ajout d'une fonction Gaussienne à la densité d'état tel que $g(E)_{total} = \frac{8\pi E^2}{(hc)^3} \times \left(1 + \rho_0 e^{-\frac{E_{plasmon}-E}{\sigma^2}}\right)$. Dans cette expression, ρ_0 désigne l'amplitude de la résonance plasmon, σ sa largeur spectrale et $E_{plasmon}$ son énergie. Les cercles bleus de la figure 3.15 (a) représentent l'ajustement obtenu à partir du modèle corrigé par la densité d'états $g(E)_{total}$. Les paramètres libres sont ρ_0 , $E_{plasmon}$, σ et T_e . La température électronique déduite est de 1938 °K. La position de la résonance plasmonique $E_{plasmon}$ est calculée à 1.63 eV avec $\sigma = 0.12$ eV et une amplitude $\rho_0 = 0.12$. Les données concordent remarquablement avec le modèle. Tout d'abord, la température électronique déduite est de l'ordre de celle calculée dans l'étude précédente (voir figure 3.14). Ensuite, la contribution du plasmon est quant à elle assez faible (l'amplitude $\rho_0 \ll 1$), ce qui est cohérent avec les résonances plasmoniques attendues pour ce type de jonction tunnel. En effet, plusieurs études impliquant un correctif quantique ont démontré que les transferts de charges par effet tunnel limitaient l'amplitude du champ électromagnétique au sein des jonctions [124, 125]. Ce phénomène est d'autant plus présent lorsque les jonctions tunnels sont subnanométriques. Les résidus correspondant à cet ajustement sont représentés par la figure 3.15 (b). Les variations des résidus suggèrent que l'ajustement pourrait être encore amélioré par l'ajout de deux autres contributions plasmoniques mineures, centrées à 1.4 et 1.8 eV. Ces variations pourraient aussi provenir des transitions interbandes qui commencent à modifier la densité d'états de façon significative à partir de 1.5 eV.

Les résonances plasmoniques ont ici un faible impact sur la forme du spectre d'émission, dont les propriétés sont majoritairement dictées par la loi de Planck. D'autres publications [94, 126] présentent cependant des résultats pour lesquels les résonances optiques jouent un rôle significatif. Les mesures effectuées sur les propriétés d'émission thermique de microstructures périodiques démontrent des résultats dans ce sens. Le rendement est augmenté de quatre ordres [127, 128] de grandeurs par rapport à une source thermique classique et le spectre émis devient dépendant de l'angle d'observation, caractéristique de l'effet Wolf [129]. Les travaux de Hecht *et al.* [94] démontrent aussi que la structure optique environnant la jonction tunnel est particulièrement importante dans le cadre de photons émis par effet tunnel inélastique. Leurs mesures permettent de démontrer que les résonances plasmoniques apportées par le couplage de la source à une antenne optique changent

significativement la forme du spectre. Dans un même temps, le rendement quantique d'émission est augmenté de deux ordres de grandeur par rapport à une structure non-résonante. Leurs travaux démontrent aussi que la lumière émise est principalement polarisée le long de l'axe de l'antenne optique. Le degré de polarisation moyen déduit des mesures leur permet d'obtenir un rapport d'intensité (axe le long de l'antenne) : (axe transverse à l'antenne) de respectivement 10 : 1. Les résonances plasmoniques résultantes du couplage de la source (une jonction tunnel) et de l'antenne optique sont à l'origine de cette polarisation. Dans le cadre de notre étude, le phénomène d'émission est attribué à la désexcitation des électrons chauds présents sur l'électrode drain, alors que les travaux de Hecht *et al.* démontrent une émission par effet tunnel inélastique, au sein de la jonction tunnel [36]. À l'image de la polarisation induite par les antennes électriques aux radiofréquences, il convient alors de s'interroger si la présence des deux électrodes massives, assimilable à une structure d'antenne optique, ont un impact sur la polarisation de la lumière émise.

3.7 Polarisation de l'émission

Les parties précédentes ont démontré que la jonction tunnel pouvait être considérée comme une source thermique de dimensions sub-longueur d'onde. Klein *et al.* ont constaté dans leur étude [130] que la lumière d'origine thermique, émise par des bâtonnets métalliques nanométriques, pouvait passer d'une polarisation longitudinale à transverse en fonction de leurs dimensions. Plusieurs bâtonnets, de dimensions différentes mais de rapport d'aspect égal à 10, ont été chauffés par effet Joule. En fonction des dimensions obtenus, des modes de résonances plasmoniques transverses sont apparus. Le changement de polarisation a alors été expliqué par l'apparition de ces modes transverses. Cependant, les résultats obtenus à partir de structures similaires aux nôtres par Ward *et al.* diffèrent des travaux de Klein *et al.* [131]. Dans leur étude, la source lumineuse thermique est un nanofil de Pt chauffé par effet Joule. Les extrémités de ce nanofil de Pt sont connectées par deux électrodes massives, formant ainsi une structure papillon. En raison de la distribution fortement non-homogène de la température (localisation au centre du nanofil), l'émission est assimilée à un point source. Les auteurs n'observent pas de polarisation significative de l'émission, et en déduisent que la lumière émise par des sources thermiques localisées n'est pas polarisée [131]. La différence des résultats obtenus par Klein *et al.* [130] et Ward *et al.* [131] trouve son origine dans le rapport d'aspect des nanofils utilisés. Les dimensions des structures étudiées par Ward *et al.* ne permettent pas l'apparition de résonances plasmoniques thermiquement excitées, contrairement aux structures utilisées par Klein *et al.* La présence de résonances plasmoniques modérées dans certains de nos spectres devrait nous rapprocher du cas étudié par Ward *et al.* Bien que dans notre situation la lumière émise soit assimilée à une source thermique, il est possible que les jonctions tunnels entourées d'une

structure optique se comportent différemment [94], ou que celles-ci possèdent une polarisation intrinsèque au phénomène d'émission.

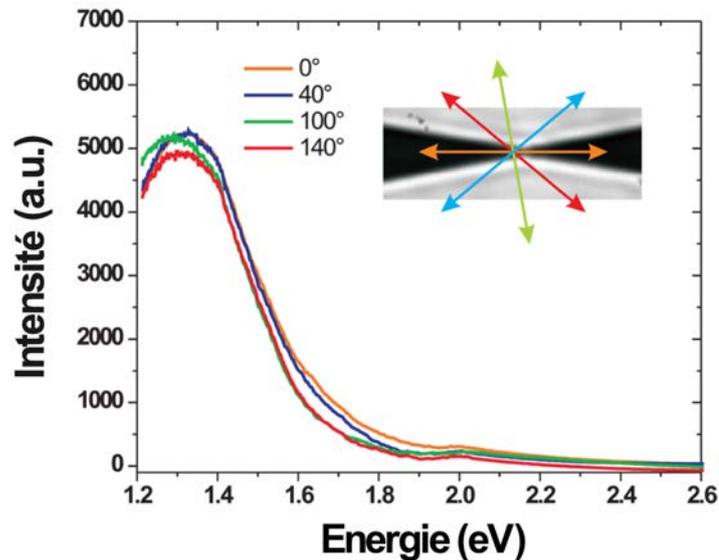


FIGURE 3.16 – La figure représente les différents spectres mesurés en fonction du polariseur placé en entrée du spectrographe. Les positions du polariseur sont illustrées par les flèches sur l'image incluse en haut à droite de la figure. Aucune variation significative n'est observée en fonction de la polarisation choisie. La lumière émise par la jonction n'est donc pas polarisée.

Pour pouvoir répondre plus précisément à la question de la polarisation, des jonctions tunnels ont été réalisées à partir de nanofil de géométrie papillon (voir figure 2.2). Ce choix est justifié par le fait que les résonances plasmoniques observées pour ce type de géométrie sont moins significatives. Un polariseur est ajouté en entrée du spectrographe. Cet élément permet ainsi de mesurer le spectre d'émission en fonction de l'angle sélectionné par le polariseur. Les résultats sont présentés par la figure 3.16. Les différentes positions étudiées sont indiquées sur l'image incluse en haut à droite de la figure. Sur chacun de ces spectres, on remarque l'apparition d'une légère bosse centrée à 2.0 eV. Les spectres ne comportent cependant aucune variation significative en fonction de la polarisation choisie. La forme de ces spectres est la même que ceux mesurés sans polariseur. Le degré de polarisation linéaire à 1.3 eV est évalué à 0.11, ce qui confirme que la polarisation de lumière émise est quasi-circulaire. En l'absence de structure optique résonante, la lumière émise par une source thermique localisée, comme nos jonctions, n'est pas polarisée de façon significative.

3.8 Directivité

Bien que la structure environnant la jonction ne semble pas apporter de résonances plasmoniques notables, il est possible qu'elle influe sur la directivité de l'émission. Le contrôle de la directivité de l'émission est un objectif important de notre étude. Ce paramètre conditionne en effet dans quelles directions est émise la lumière, et représente donc une propriété clé dans la réalisation d'une source optique pilotée électriquement et intégrable à l'échelle nanométrique. Traditionnellement, les sources thermiques se comportent comme des sources quasi-lambertienne, c'est-à-dire qu'elles émettent de la lumière dans toutes les directions de façon isotrope. Il a cependant été démontré que l'apport d'une structure pouvait nettement altérer cette propriété, en orientant spatialement une émission d'origine thermique [126-128]. L'environnement électromagnétique de la jonction tunnel a-t-il aussi un impact sur la directivité de l'émission? C'est par la mesure du plan de Fourier que nous avons choisi de répondre à cette problématique.

Une caméra CCD est positionnée le long du trajet optique sur le plan de Fourier conjugué (voir figure 3.1). L'objectif utilisé comporte une ouverture numérique de 1.49. Il permet de recueillir la lumière émise sur un cône de révolution dont limite extérieure forme un demi-angle au sommet d'environ 80° . Les figures 3.17 et 3.19 représentent les 2 types de résultats obtenus pour des jonctions tunnels réalisées à partir de nanofils électromigrés. Les diagrammes d'émission diffèrent en fonction de la position de la jonction tunnel par rapport au centre du nanofil. La figure 3.17 illustre les résultats obtenus lorsque la jonction est localisée aux environs du centre du nanofil. La figure 3.17 (a) représente une superposition de la lumière émise par la jonction avec l'image retroéclairée de l'échantillon. La jonction tunnel est indiquée par une flèche jaune et un agrandissement est inclus dans la partie inférieure de l'image. De chaque côté du spot d'émission, coloré en rouge, se situent le drain et la source. Ces deux électrodes sont approximativement symétriques car de même dimension. Le plan de Fourier correspondant est représenté par la figure 3.17 (b). L'échelle de couleur du bleu vers le rouge correspond à l'intensité croissante du signal. La lumière est principalement émise selon deux lobes, concentrés sur la périphérie de la couronne de collection, limitée par l'O.N. maximale et l'angle critique (O.N.=1).

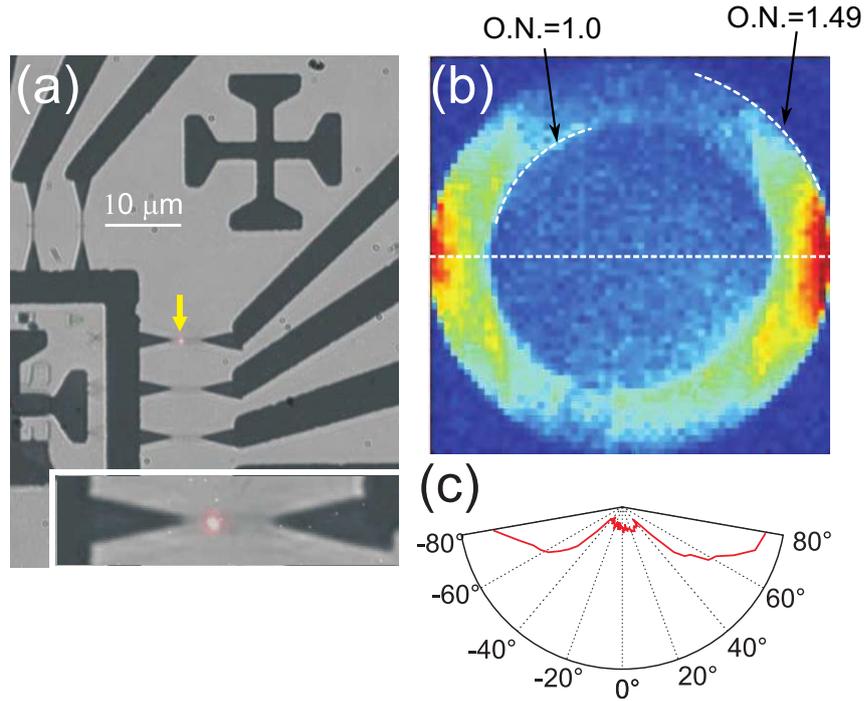


FIGURE 3.17 – La figure (a) est une superposition de l'échantillon retroéclairé avec le spot d'émission, indiqué par la flèche jaune. La partie inférieure de l'image comprend un agrandissement de l'image autour du point source, décentré sur la partie gauche du nanofil électromigré. La figure (b) représente le plan de Fourier correspondant. Le cercle externe est lié à l'ouverture numérique de l'objectif et le cercle interne à l'angle critique de réflexion totale interne. La lumière est émise majoritairement selon deux lobes parallèles à la direction du nanofil. La figure (c) est une vue en coupe du diagramme d'émission, correspondant à l'intersection d'un plan perpendiculaire au plan de Fourier et passant par la ligne en blanc pointillé de l'image (b). Les deux lobes sont quasi-symétriques en terme d'intensité et de répartition angulaire. La directivité cumulée sur les intensités maximales des deux lobes d'émission est évaluée à 22.1 dB.

La configuration optique utilisée permet seulement de recueillir la lumière pour des ouvertures numériques allant de 0 à 1.49. Le bord interne de cet anneau périphérique, délimitant la zone super-critique ($O.N. > 1$), correspond à la réflexion totale interne (avec un angle critique $\Theta_c = \arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\right)$). La frustration des vecteurs d'ondes évanescents dans l'air concentre l'émission dans le milieu le plus réfringent. La limite extérieure est fixée par le rapport entre l'indice optique de l'huile d'immersion (1.515) et l'ouverture numérique de l'objectif (1.49) avec $\Theta_{max} = \arcsin(1.49/1.515) \approx 80^\circ$. Le profil attendu pour une source thermique devrait être Lambertien, alors que la lumière est ici émise selon deux directions privilégiées. De plus, contrairement à une antenne dipolaire, les lobes sont orientés dans la direction du nanofil, c'est-à-dire dans la même direction que l'axe des pôles électriques positifs et négatifs. Ces propriétés indiquent que la géométrie des électrodes semblent jouer un rôle décisif dans la directivité de l'émission [132, 133], et que la source ne peut ni être associée à une source dipolaire, ni à une source thermique classique (Lambertienne).

La figure 3.17 (c) correspond à une vue en coupe de la lumière émise, selon un plan perpendiculaire à l'image (b) et passant par la ligne en pointillés blancs. On retrouve les deux lobes d'émission pour lesquels l'intensité maximale se trouvent aux environs des 80° par rapport à la normale de l'échantillon. Ces deux lobes sont quasi-symétriques en terme d'intensité et de répartition angulaire. Il est possible de définir sur chacun de ces lobes, une zone où laquelle l'intensité lumineuse maximale est quasi-constante, c'est-à-dire au bord du disque. La directivité de cette antenne est ici définie par le rapport de la somme des intensités lumineuses cumulées sur ces deux zones, divisée par l'intensité moyenne mesurée. On trouve une directivité d'environ 22.1 dB.

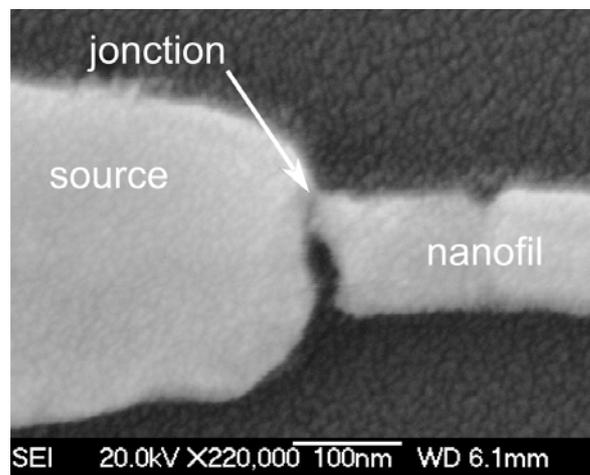


FIGURE 3.18 – Cette figure représente une jonction tunnel obtenue à partir de l'électromigration d'un nanofil. La jonction est située au bord de l'électrode source.

En raison du processus de l'électromigration, la jonction a tendance à se former du côté de l'électrode source. Lorsque la jonction apparaît à l'extrémité du nanofil, elle devient alors asymétrique au niveau de sa géométrie. Ce cas est illustré par l'image MEB de la figure 3.18. Les figures 3.19 (a) et (b) représentent les images retréclairées de l'émission de deux jonctions électromigrées avec des polarités opposées. Le centre du nanofil, de $1.5 \mu\text{m}$, est indiqué par un segment en blanc pointillé. On remarque alors que les jonctions se trouvent décentrées, à proximité de l'électrode source triangulaire. Les images 3.19 (c) et (d) montrent les plans de Fourier respectifs de ces jonctions. Dans chacun des cas, l'émission comporte un lobe principal, orienté vers l'électrode drain, c'est-à-dire du côté du nanofil (voir figure 3.18). Les figures 3.19 (e) et (f) correspondent à une vue en coupe du cône d'émission. L'émission est fortement concentrée autour d'une direction de l'espace formant un angle de 60° avec la normale à la surface de l'échantillon.

La jonction est entourée de part et d'autre par l'électrode triangulaire source et

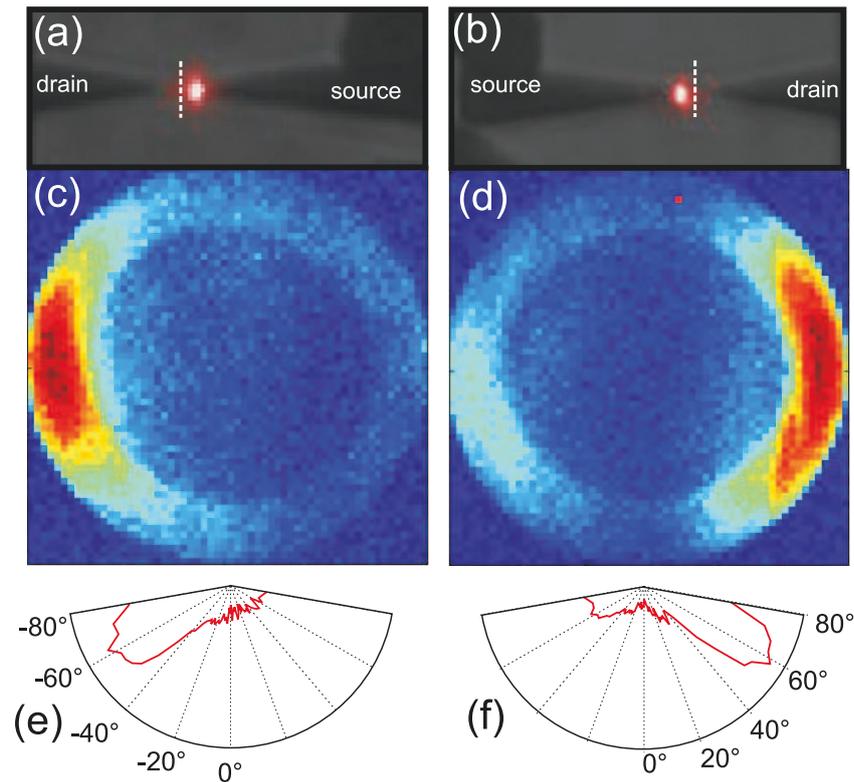


FIGURE 3.19 – Les figures (a) et (b) sont des images superposées de deux jonctions tunnels émettrices. Ces jonctions sont situées du côté de l'électrode source, en raison du sens d'électromigration. Les figures (c) et (d) représentent respectivement les images du plan de Fourier obtenues pour les jonctions (a) et (b). Les couleurs indiquent l'intensité du signal selon une échelle croissante du bleu vers le rouge. Les figures (e) et (f) correspondent à la vue en coupe du profil d'émission selon les mêmes axes que la figure 3.17. Le maximum d'émission se situe aux alentours de 60° par rapport à la normale de la surface de l'échantillon.

le nanofil. Tout se passe comme si la lumière émise par la jonction tunnel était dirigée du côté du nanofil. Le rapport d'aspect de la structure du côté du nanofil est en effet plus important que du côté de l'électrode triangulaire. Cette différence a pour effet d'orienter la directivité de l'émission dans le sens où le rapport d'aspect est prépondérant. Le rapport entre le maximum d'intensité divisé par l'intensité diamétralement opposée $\frac{Max(I(\Theta_{max}))}{I(-\Theta_{max})}$ est utilisé pour caractériser la directivité d'une émissivité monolobe, avec Θ_{max} l'angle auquel est enregistré le maximum d'intensité. Pour les diagrammes 3.19 (c) et (d), ces rapports sont respectivement évalués à 5.8 et 4.3 dB. Ces grandeurs sont comparables aux résultats obtenus à partir d'antennes optiques de type Yagi-Uda [14] ou de structures log-périodiques [133]. La directivité cumulée sur un seul lobe est respectivement mesurée à 25.5 et 24.2 dB. Dans le chapitre précédent, nous avons montré que le caractère stochastique de l'électromigration ne nous a pas permis de prévoir avec précision le lieu de formation de la jonction. Ce manque de précision n'a pas rendu possible l'ajout d'une structure supplémentaire de type Yagi-Uda pendant l'étape de fabrication initiale des nanofils.

Cette difficulté a donc naturellement été surmontée grâce à la directivité intrinsèque de la nano-source réalisée, qui s'avère tout aussi efficace que d'autres structures directives plus complexes. L'ensemble constitué de la jonction tunnel et de ses deux électrodes peut alors être considéré à la fois comme une source et une antenne optique. La distribution angulaire des photons est la même en fonction des différentes puissances appliquées. La puissance électrique ne semblent donc pas jouer un rôle dans la distribution angulaire des photons émis, hormis dans la modulation de l'intensité lumineuse de la source.

3.9 Rendement quantique d'émission

Le rendement quantique d'émission η d'une jonction tunnel est habituellement défini par le rapport du nombre de photons mesurés sur le nombre d'électrons ayant traversés la barrière tunnel [41, 94]. Ce taux de conversion extrinsèque électron-photon s'écrit :

$$\eta = \frac{N_{ph}}{N_{e^-}} = \frac{N_{ph}}{\frac{I}{e}} \quad (3.27)$$

avec N_{ph} le nombres de photons mesurés, N_{e^-} le nombre d'électrons mesurés à l'aide du courant, I l'intensité du courant et e la charge élémentaire. Il est important de noter que ce rendement est extrinsèque car seul les photons mesurés dans l'angle solide de détection et dans la gamme spectrale de détection sont pris en compte. La figure 3.20 représente en échelle logarithmique l'évolution de η en fonction du nombre d'électrons estimés depuis la mesure du courant. Suivant le courant et donc la température électronique de la source, le rendement passe de 10^{-13} à 10^{-10} . L'évolution en échelle logarithmique démontre une loi de puissance sur cette plage de puissance considérée. L'ordre de non-linéarité est évaluée autour de 8. Cette grandeur correspond à la pente de la droite représentée en pointillé dans la figure 3.20. La figure 3.21 (b), présentée précédemment, démontre l'évolution de l'intensité lumineuse théorique de la loi de Planck représentée en fonction de la température électronique. La plage de température considérée dans la figure 3.20 s'étend de 1000 à 2500 °K. On remarque alors par la figure 3.21 (b) qu'un tel ordre de non-linéarité est attendu pour la plage de température électronique étudiée.

Malgré une non-linéarité importante, les rendements mesurés reste assez faibles comparés à ceux répertoriés dans d'autres travaux [72, 94, 100, 101]. Plusieurs points restent cependant à prendre compte. Tout d'abord, une faible proportion de la puissance électrique injectée dans la jonction contribue à l'élévation de la température

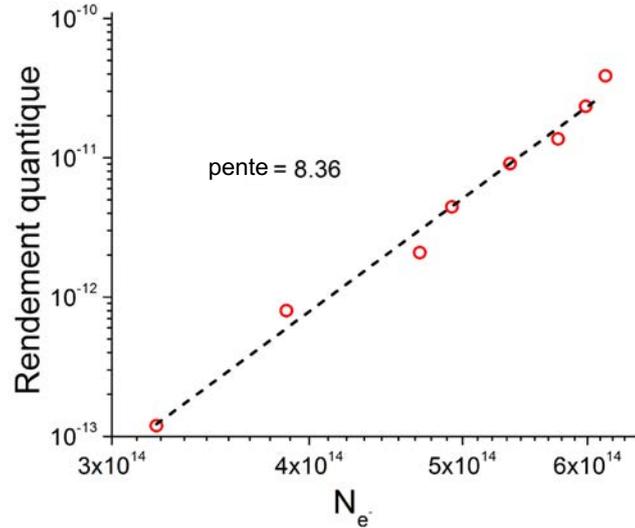


FIGURE 3.20 – Représentation de l'évolution du rendement quantique η en fonction du nombre d'électrons évalué par la mesure du courant. Les échelles sont logarithmiques. Le rendement semble suivre une évolution non linéaire en loi de puissance. L'ordre de non linéarité, représentée par la pente de la droite pointillée, est évalué aux alentours de 8.

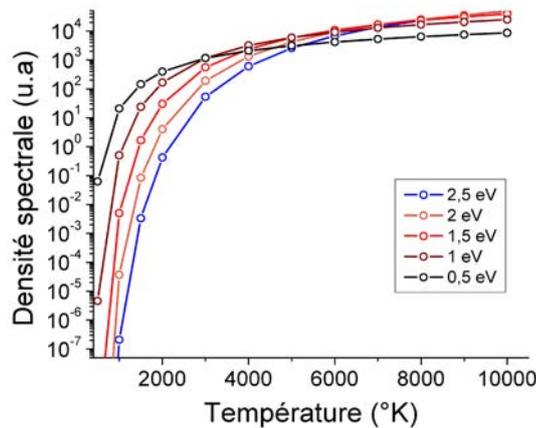


FIGURE 3.21 – La figure illustre l'évolution de la densité spectrale en fonction de la température pour les énergies 0.5, 1, 1.5, 2 et 2.5 eV.

électronique de la source ($\alpha_{fraction}$ de 2 à 5%). La prise en compte du nombre total d'électrons dans le calcul du rendement quantique est peut-être alors à remettre en question. Ensuite, seuls les photons comptabilisés dans la fenêtre spectrale de la caméra CCD sont utilisés pour le calcul de η . La contribution des photons présents dans l'infrarouge à cette échelle de température n'est pas prise en compte. À ce point s'ajoute les pertes dues au rendement de collection du train optique. Enfin, malgré un rendement faible, il est important de noter qu'un nombre non négligeable de photons est généré. Dans le cas des jonctions tunnels les plus efficaces opérant en régime d'émission thermique, de conductances proches de G_0 ($10^{-1} G_0 < G < G_0$), un rendement maximal d'environ 10^{-9} a été mesuré. Ce rendement correspond à 10^6 photon. s^{-1} pour une puissance électrique d'alimentation d'environ $100 \mu W$. Ce

résultat est du même ordre de grandeur que l'électroluminescence obtenue à partir de l'excitation de boîtes quantiques uniques [134], ou l'excitation laser intense (kW.cm^{-2}) de molécule unique [135].

Dans la situation présente, la source optique peut être approximée à une demi-sphère de rayon r , contenue dans le substrat. La surface S de cette demi-sphère s'écrit alors $S = 2\pi r^2$. La puissance optique P_{opt} mesurée est de 2.0×10^{-13} W (jonction de conductance telle que $10^{-1} G_0 < G < G_0$ et $P_{in}^{el} \approx 100 \mu\text{W}$). En prenant pour rayon la longueur effective $L_{eff} = 32$ nm déduite précédemment, on obtient une surface émissive $S = 6.4 \times 10^{-11} \text{cm}^2$. L'existance E_x de la source, définie par $E_x = P_{opt}/S$, est alors évaluée à $E_x = 3.1 \times 10^{-3} \text{W.cm}^{-2}$. Dans le cas d'une lampe à incandescence de puissance électrique 25 W, le rendement d'émission est d'environ 10%. Avec un rayon de 3 cm pour la sphère assimilée à la surface de l'ampoule, on obtient $E_x = 2.2 \times 10^{-2} \text{W.cm}^{-2}$. Bien que les existances calculées soient différentes d'un ordre de grandeur, elles démontrent cependant que la puissance lumineuse par unité de surface irradiée par notre source optique est comparable à une source thermique classique à l'échelle macroscopique.

Chapitre 4

Émission lumineuse en régime balistique

Dans le chapitre 2, nous avons démontré que la méthode d'électromigration employée permettait de mettre en évidence le passage par un régime de transport balistique. Durant les derniers instants de l'électromigration, la structure du nanofil s'apparente ainsi à deux électrodes métalliques macroscopiques reliées par un contact atomique. Ce même type de structure est employé pour étudier le comportement des électrons hors équilibre et les phénomènes de dissipation thermique aux échelles mésoscopiques [136, 137]. Les études théoriques sur le transport quantique à travers des conducteurs unidimensionnels révèlent que les dissipations d'énergie ne se font pas là où le transport est balistique [138, 139]. Ces échanges opèrent à une distance égale au libre parcours inélastique moyen des électrons. En effet, les principes de bases de la mécanique quantique garantissent que pour des structures à géométrie ouverte comme celle-ci, les charges sont conservées à l'interface de couplage inélastique [140, 141]. Dans cet état hors équilibre, la relaxation de l'excédent d'énergie des électrons est principalement attribuée aux dissipations thermiques dans les électrodes de contact. Le couplage γ est réalisé à travers les degrés de liberté du réseau [142], par l'excitation de phonons. Des mesures expérimentales de la distribution des phonons dans le système (par spectroscopie de conductance dépendante en tension [143, 144], et par analyse des fluctuations de courant en champ faible [145, 146]) ont permis de valider ce mécanisme comme principal source de dissipation.

Les fluctuations de charges produites par ce transport balistique entraînent nécessairement l'apparition d'un champ électromagnétique. Dans le cas de faibles tensions électriques, des photons sont émis aux radio-fréquences. La statistique de ces photons, non classique, est alors dépendante de la tension appliquée [147, 148], et de la température du système [149]. Des mesures expérimentales de ce phénomène ont été réalisées à température cryogénique sur des jonctions supraconductrices. Ces jonctions émettent dans la gamme du GHz [150, 151]. Dans le cas de tension électrique plus importante, il n'est plus possible de négliger les interactions électrons-électrons, qui contribuent à l'élévation en température de la distribution de Fermi-Dirac. L'utilisation de la théorie de fluctuation-dissipation [27] ne permet plus de

décrire l'évolution du système car l'évolution devient non-linéaire. Les populations électroniques et vibrationnelles ne se couplent plus dans les mêmes conditions que précédemment [108, 120, 152, 153]. Une étude récente [154] suggère que les interactions multiples des électrons avec les parois d'un système en régime balistique pourrait conduire à nettement améliorer le processus de relaxation par émission lumineuse. En effet les tensions électriques appliquées en régime balistique, c'est-à-dire durant les derniers instants de l'électromigration, nous placent dans cette situation. Motivés par ces prédictions, nous avons recherché la présence d'une activité lumineuse durant le passage en régime balistique. Ce chapitre présente les résultats obtenus. La partie électrique du montage est la même que celle utilisée pour électromigrer les nanofils.

4.1 Mesure de l'émission lumineuse en fonction de la conductance

Le dispositif expérimental est composé d'un microscope confocal et de détecteurs. Il est décrit par la figure 3.1 du chapitre précédent. Les éléments de la figure 4.1 sont placés à la place de la photodiode à avalanche de la figure 3.1. Le signal lumineux est divisé en deux à l'aide d'un cube séparateur 50/50 polarisé. Les signaux en polarisation croisée sont mesurés par deux photodiodes à avalanche SPCM-AQRH, dont la fenêtre spectrale s'étend de 1.2 eV à 3.1 eV. L'utilisation d'un montage en polarisation croisée permet de discriminer les photons émis avec un champ électrique aligné le long de l'axe du nanofil, des photons émis avec un champ électrique perpendiculaire à cet axe. Une différence d'intensité lumineuse entre les deux composantes de la polarisation du signal serait la signature de l'excitation de plasmons de surface [154].

Comme expliqué dans le chapitre 2, c'est la composante continue V_{DC} de la tension appliquée qui permet d'électromigrer la nanofil. V_{DC} est alors progressivement diminuée jusqu'à l'apparition de plateaux dans la chute de conductance. L'apparition de ces plateaux, multiples du quantum de conductance G_0 , garantit le passage à un régime de transport balistique [54, 155]. La figure 4.2 présente deux mesures typiques obtenues à partir de ce protocole. Durant ces mesures, la composante continue de la tension est maintenue constante avec $V_{DC} = 800$ mV pour la figure 4.2 (a) et $V_{DC} = 700$ mV pour la figure 4.2 (b). Sur ces graphiques, la conductance est normalisée en fonction de G_0 . Les paliers observés lors de la décroissance de la conductance normalisée indiquent que les mesures sont réalisées en régime de transport balistique. La rupture du nanofil, et le passage à un régime de transport tunnel, sont caractérisés par une conductance normalisée inférieure à 1. Cette rupture est visible à $t = 27.8$ s pour la figure 4.2 (a) et à $t = 64.2$ s pour la figure 4.2 (b).

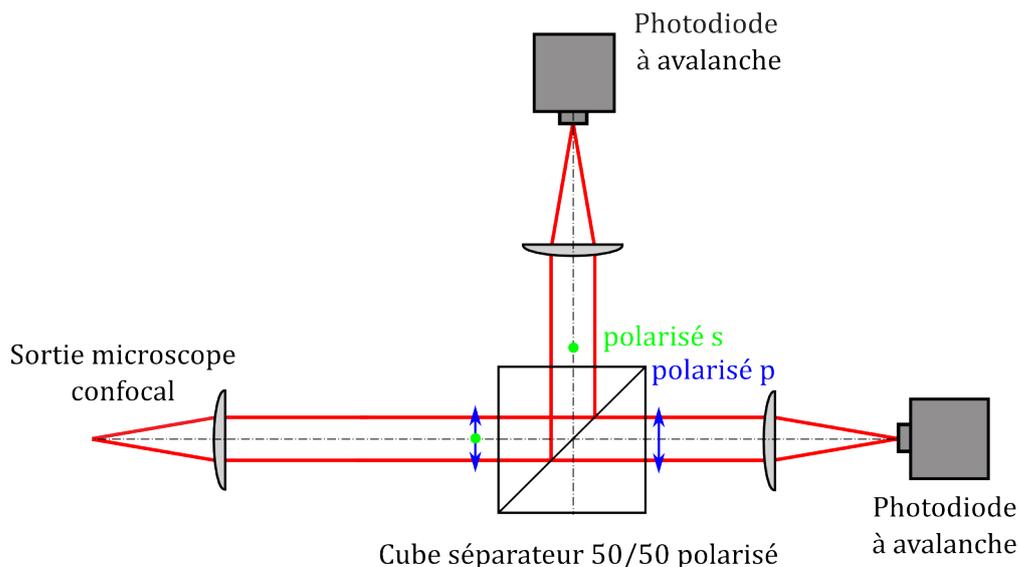


FIGURE 4.1 – Le schéma représente le dispositif optique utilisé pour les mesures de l'émission lumineuse en régime balistique. Le signal en sortie du microscope confocal est acheminé vers un cube séparateur 50/50 polarisé. Deux photodiodes à avalanche sont alors placées en polarisation croisée pour recueillir la lumière émise.

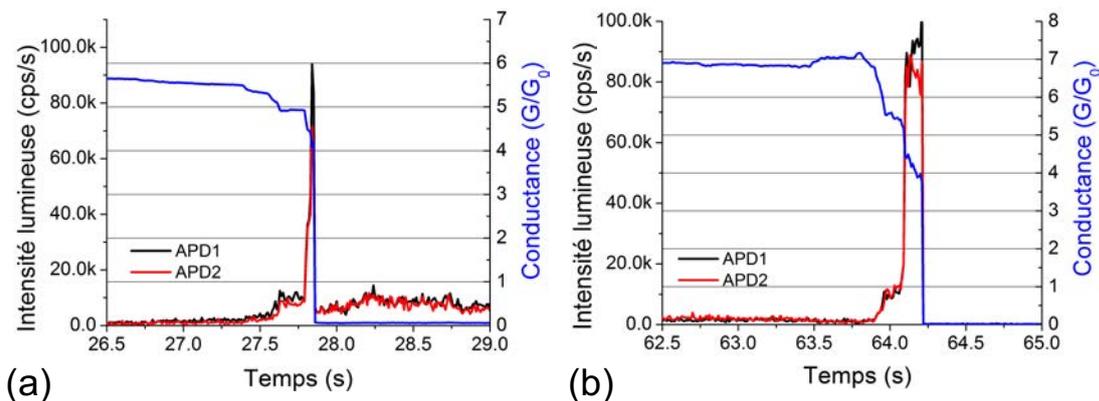


FIGURE 4.2 – Les figures (a) et (b) représentent les intensités lumineuses mesurées en fonction du temps. Ces mesures sont réalisées durant les derniers instants de l'électromigration de deux nanofils différents. APD1 en noir et APD2 en rouge indiquent les deux photodiodes à avalanches configurées en polarisation croisée. La rupture du nanofil survient à $t = 27.8$ s pour la figure (a) et à $t = 64.2$ s pour la figure (b). Les courbes en bleues correspondent à la conductance normalisée par le quantum de conductance G_0 . On remarque que les chutes de conductances (plateaux sur les courbes bleues) sont corrélées avec les augmentations de l'activité lumineuse. L'évolution est similaire selon les deux axes de polarisation.

Durant les mesures, l'amplitude de la tension continue appliquée précipite la rupture, et empêche aussi l'apparition de créneaux de conductance inférieure à $N = 4$, avec $N = \frac{G}{G_0}$ [156].

La figure 4.2 présente aussi l'activité lumineuse recueillie durant le régime de transport balistique. Les graphiques (a) et (b) permettent ainsi de représenter simultanément la conductance et l'intensité lumineuse des deux détecteurs en polarisation croisée (APD1 et APD2). Ces figures mettent clairement en évidence les liens existants entre la quantification de la conductance et l'émission lumineuse. On remarque en effet que la chute de conductance est corrélée à une augmentation de l'activité lumineuse de la constriction. Cette évolution semble simultanée sur les deux axes de polarisation, et apparaît nettement à partir de $G \approx 5 G_0$. L'activité lumineuse augmente brutalement au moment de la rupture, pour ensuite chuter en régime tunnel avec des conductances mesurées respectivement à $G = 6 \times 10^{-3} G_0$ et $G = 1.4 \times 10^{-3} G_0$. On remarque que la figure (a) montre encore une activité lumineuse en régime tunnel, contrairement à la figure (b) où plus aucun signal n'a été mesuré. Une émission lumineuse devrait être présente avec une tension appliquée plus élevée.

Un autre point important réside dans l'énergie des photons mesurés. La limite quantique, définie par $h\nu \geq eV_{DC}$ avec ν la fréquence optique et V_{DC} la différence de potentiel aux bornes de la constriction, est dépassée dans les deux cas présentés. Ce point permet d'écarter l'hypothèse selon laquelle ce type d'émission pourrait être attribué à une interaction inélastique [157]. De plus, les similitudes au niveaux des intensités lumineuses recueillies en polarisation croisée confirme que cette hypothèse peut être écartée [41, 154]. L'activité lumineuse mesurée pour $t \geq 27.8$ s (régime tunnel) dans la figure 4.2 (a) peut soit être expliquée par des interactions électrons-plasmons d'ordre élevé [100, 102, 103, 158] ou soit par la relaxation radiative d'un bain d'électrons chauds suivant le même mécanisme que celui décrit dans le chapitre précédent [98, 159]. La rapidité avec laquelle les paliers de conductances chutent durant les derniers instants avant la rupture nous empêchent d'enregistrer les spectres correspondant à la lumière émise. Ces spectres permettraient de distinguer sans ambiguïté lequel des deux phénomènes précédents est responsable de l'émission. Toutefois, les spectres des jonctions tunnels discutés dans le chapitre 3 n'ont pas mis en évidence les signatures d'effets cohérents, et le mécanisme d'émission dans le régime de transport tunnel à $t > 27.8$ s est probablement issu de l'émission spontanée des électrons chauds. De plus, notre expérience est proche de la gamme de conductance étudiée par Malinowski *et al.* [98]. Dans cet article, les auteurs enregistrent la lumière émise à partir de constriction créée par rupture mécaniquement contrôlée. Les spectres infrarouges mesurés permettent de décrire le processus d'émission à partir de la relaxation d'un gaz d'électrons chauds hors équilibre suivant les mêmes principes avancés dans le chapitre précédent.

Les différentes mesures réalisées avant rupture sont décrites par la figure 4.3. On y retrouve 9 séries de mesures effectuées sur des nanofils différents. L'intensité lumineuse est ici représentée en fonction de la conductance normalisée. Les mesures des figures 4.2 (a) et (b) y sont respectivement illustrées par des cercles rouges et

des diamants bleus clairs. Même si le graphique ne présente pas assez de mesures pour réaliser une analyse statistique, une tendance peut néanmoins être mise en évidence : une activité lumineuse est détectée à partir de la gamme de conductance comprise entre $8 G_0$ et $5 G_0$. L'intensité lumineuse ne fait alors qu'augmenter lorsque la conductance continue de chuter jusqu'à la rupture. Cette croissance est stoppée après rupture ($G < G_0$) de la constriction. Le peu de points de mesures pour des conductances comprises entre $4 G_0$ et G_0 suggère que l'augmentation de l'intensité lumineuse se stabilise. Les données sont cependant trop peu nombreuses pour pouvoir affirmer cette tendance. Les points dont la conductance est inférieure à G_0 sont des mesures effectuées en régime tunnel, tout comme l'activité lumineuse enregistrée après rupture pour la figure 4.2 (a).

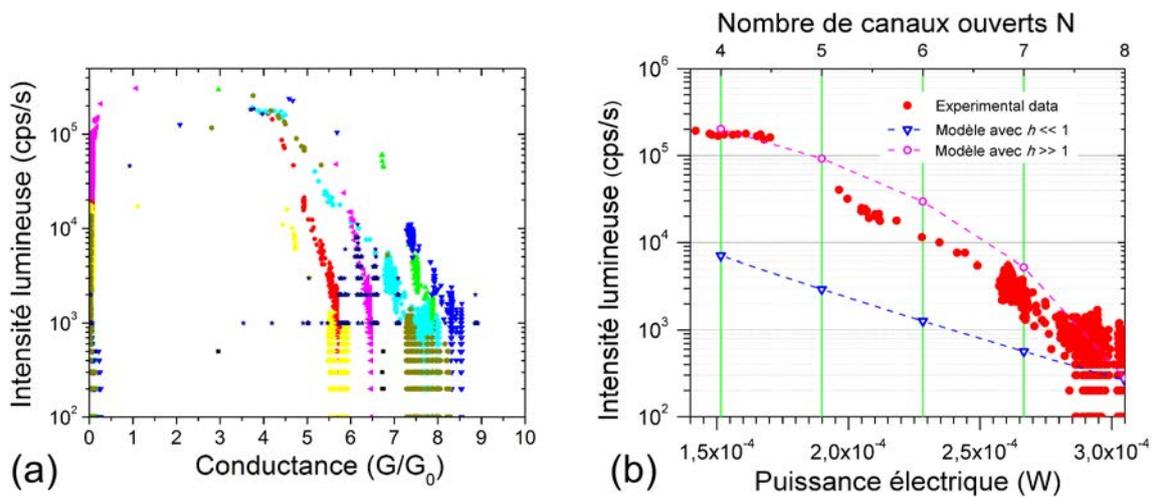


FIGURE 4.3 – La figure (a) est une concaténation des résultats obtenus à partir de l'électromigration de neuf nanofils. L'intensité lumineuse, en échelle logarithmique, y est représentée en fonction de la conductance normalisée par G_0 . Le bruit de fond des photodiodes est d'environ 300 coups/s. La figure (b) représente l'intensité lumineuse (échelle logarithmique) en fonction de la puissance dissipée par effet Joule $P_J = I^2 \times G^{-1}$ au niveau de la constriction (avec une tension appliquée $V_{DC} = 700$ mV). Les données sont représentés par des diamants bleus clairs dans la figure 4.3 (a). Les triangles bleus inversés représentent les points calculés à partir du modèle développé dans ce chapitre, en considérant une absence d'échanges avec les parois de la zone d'interconnexion ($h \ll 1$). Les cercles en magenta illustrent les points obtenus à partir du modèle en considérant une thermalisation efficace au niveau des parois de la zone d'interconnexion ($h \gg 1$).

Les différents travaux publiés dans le même sujet montrent qu'il existe une relation entre la lumière émise au delà de la limite quantique, et les puissances électriques injectées et dissipées dans le système. Cette relation s'exprime généralement sous la forme d'une loi de puissance. Pour une conductance donnée, une élévation de la tension appliquée entraîne une augmentation du courant électrique traversant la constriction. Cet accroissement a pour conséquence d'augmenter radicalement

l'intensité lumineuse mesurée [98, 100]. Dans le cadre de notre étude, la tension V_{DC} appliquée est gardée constante durant les derniers instants de l'électromigration. Le maintien de ce paramètre en régime balistique nous permet d'étudier les corrélations existantes entre la quantité de lumière émise et la conductance de la constriction, sans changer les conditions de mise en mouvement des charges. La fermeture progressive des canaux de conduction durant l'électromigration en régime balistique entraînent une baisse de la conductance. Cette baisse entraîne elle aussi indubitablement une chute de la puissance électrique traversant la constriction. Dans ce contexte, le comportement de l'activité lumineuse est illustré par la figure 4.3 (b). L'intensité lumineuse est représentée en échelle logarithmique en fonction de la puissance électrique P_J dissipée par effet Joule dans la constriction, de telle sorte que $P_J = I^2 \times G^{-1}$. I représente le courant électrique et G la conductance de la constriction. Ce graphique démontre sans ambiguïté que l'intensité lumineuse est maximale aux basses puissances électriques, et que le nombre de photons mesurés par seconde décroît exponentiellement en fonction de la puissance. Ces résultats contre-intuitifs sont opposés aux mesures réalisées dans la littérature à conductance constante [98, 100]. Elle est aussi clairement différente des mesures d'électroluminescence standards, où une augmentation de la puissance électrique entraîne une élévation de l'activité lumineuse.

La suite de ce chapitre se concentre sur le développement d'une théorie permettant d'expliquer les liens existants entre le nombre de canaux de conductance ouverts et la lumière émise par une constriction. Cette théorie, ainsi que la formulation du problème, ont été développées par Igor Smetanin et Alexander Uskov du Lebedev Physical Institute de Moscou.

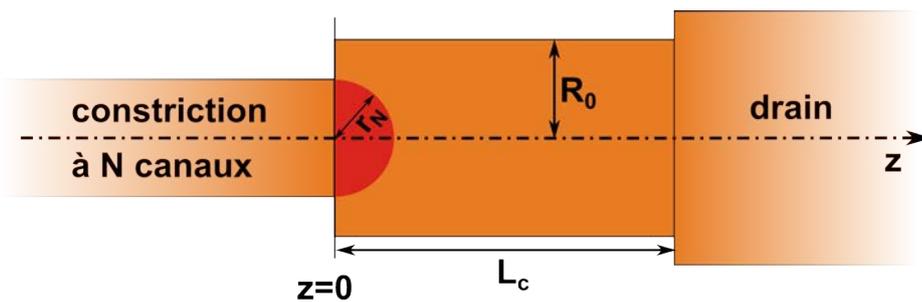


FIGURE 4.4 – Représentation schématique du problème de dissipation de la puissance électrique ayant traversée une constriction à N canaux de conduction. Le cylindre de rayon R_0 et de longueur L_c modélise la connexion entre la constriction et l'électrode drain. La puissance électrique P_N est injectée dans le cylindre dans une demi-sphère de volume r_N , en rouge.

La puissance électrique P_N appliquée à une constriction de N canaux ouverts peut s'écrire $P_N = V^2 G_0 N$. Le rayon caractéristique r_N du $N^{\text{ème}}$ canal est estimé par $r_N \approx N r_1$. Dans cette expression, $r_1 \approx \lambda_F / 4$ représente le rayon caractéristique du

premier quantum de conductance [138]. λ_F est la longueur d'onde de Fermi pour les électrons en régime balistique. En conséquence d'une fermeture de N canaux, la densité de courant et la densité de puissance électrique sont toutes les deux augmentées dans la proportion de $1/N$. Cette augmentation de la puissance électrique entraîne à son tour une augmentation soudaine de la température électronique dans une zone située en périphérie de la constriction (longueur caractéristique $L \ll l_{\text{energie}}$). L'accroissement de la température électronique est alors la cause de l'augmentation de l'activité optique lorsque la conductance chute durant les derniers instants de l'électromigration. Le modèle utilisé pour décrire ce phénomène est simplement constitué d'un cylindre d'axe de révolution Oz , de rayon R_0 et de longueur finie L_c (voir figure 4.4). Ce cylindre modélise la zone d'interconnexion existant entre, d'un côté le canal de conduction parcouru par le courant électrique, et de l'autre, l'électrode drain. En raison des multiples collisions occasionnées entre les électrons en régime quasi-balistique, cette région chauffe rapidement. Le système électronique la caractérisant est alors dans un état hors équilibre [120]. On définit alors statistiquement deux températures distinctes : la température électronique T_e et la température du réseau T_{ph} . La température T_e est considérée nettement supérieure à la température T_{ph} . L'évolution de la température dans cette région est ainsi traitée à partir d'un modèle à deux températures. À partir des conditions précédentes, la distribution de température à l'état de quasi-équilibre est déterminée par les solutions de l'équation suivante, similaire à l'équation 3.1 :

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} (\kappa_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial z}) - H(T_e - T_{ph}) = 0 \quad (4.1)$$

avec H la constante de couplage électrons-phonons introduite dans le chapitre 3, C_e la capacité thermique électronique et κ_e la conductivité thermique électronique. Dans le domaine des températures électroniques inférieures à la température du niveau de Fermi ($T_e \leq T_F$), κ_e est défini par la relation $\kappa_e = C_e \nu_F^2 \tau / 3$. Dans cette expression, ν_F désigne la vitesse des électrons au niveau de Fermi et τ le temps caractéristique de parcours d'un électron. Dans le volume de matière d'un métal, τ est fonction du taux de collisions électron-électron et électron-phonon, de telle sorte que $1/\tau = 1/\tau_{e-ph} + 1/\tau_{e-e}$ [160, 161]. Lorsque la température du réseau excède la température de Debye, le taux de collision électron-phonon τ_{e-ph} peut être approximé par $1/\tau_{e-ph} \approx k_B T_{ph} / \hbar$. On trouve ainsi $\tau_{e-ph} \approx 30$ fs à température ambiante. Les collisions électron-électron dominent lorsque la température électronique devient supérieure à $T_* \approx \sqrt{E_F T_{ph} / k_B}$, c'est-à-dire lorsque $T_e \geq 4 \times 10^3$ K pour l'Au. Dans le cadre de la structure étudiée, la zone d'interconnexion a une taille plus petite que le libre parcours moyen des électrons dans l'Au massif. Dans ce cas, le temps caractéristique τ est davantage déterminé par les collisions avec les parois de la structures, avec $\tau \approx 2 R_0 / \nu_F$. De ce fait, κ_e dans la région d'interconnexion est plus faible que dans l'Au massif, et la température électronique des électrons en régime quasi-balistique devient alors nettement différente de la température du réseau T_{ph} . Dans

la suite de ce chapitre, nous allons expliquer qualitativement les résultats expérimentaux contre-intuitifs impliquant une hausse de l'activité lumineuse lorsque la puissance électrique traversant la constriction diminue.

À partir des considérations précédentes, on peut ainsi exprimer κ_e en fonction de T_e par $\kappa_e(T_e) = bT_e$, avec $b = \pi^2 \nu_F^2 \tau N_e k_B^2 / 6E_F$ et N_e le nombre d'électrons. La constante de couplage H peut être estimée à partir de la capacité thermique électronique $C_e = C'_e T_e = (\pi^2 N_e k_B^2 / 2E_F) T_e$. Elle est alors proportionnelle à T_e et $H \approx C_e / \tau_{\text{energie}} = (C'_e / \tau_{\text{energie}}) T_e$, avec τ_{energie} le temps caractéristique d'échange énergétique entre les électrons et les phonons. À partir de ces considérations, il est alors possible de réécrire l'équation 4.1 avec L_0 , une longueur caractéristique telle que :

$$\Delta T_e^2 - T_e^2 / L_0^2 \approx 0 \quad \text{et} \quad L_0 = \sqrt{\nu_F^2 \tau_{\text{energie}} \tau / 6} \approx \sqrt{R_0 \nu_F \tau_{\text{energie}} / 3} \quad (4.2)$$

Les conditions limites du problème sont choisies de telle sorte que la température des électrons au sein de l'électrode drain, c'est-à-dire loin de la constriction, doit être égale à la température du réseau. On obtient ainsi naturellement $T_e(z = L_c) = T_{ph}$. La puissance électrique P_N est injectée de façon homogène dans une demi-boule de rayon r_N à partir de l'abscisse $z = 0$. La condition limite en $z = 0$ nous permet ainsi d'écrire $\kappa_e(\partial T_e / \partial z)_{z=0} = -p_N \Theta(r - r_N)$, avec $p_N = P_N / \pi r_N^2 = (G_0 V^2 / \pi r_1^2) N^{-1}$, et avec une distribution marche d'escalier $\Theta(x)$, de telle sorte que $\Theta(x > 0) = 0$ et $\Theta(x < 0) = 1$. Au niveau des parois du cylindre, c'est-à-dire à $r = R_0$, le flux de chaleur est choisi comme correspondant aux pertes d'énergie occasionnées par les collisions électrons-parois métalliques. Cette considération est reprise du modèle développé par Tomchuk et Fedorovich [107]. La perte d'énergie est alors exprimée par $\kappa_e(\partial T_e / \partial r) = -H'(T_e^2 - T_{ph}^2)$, avec H' le coefficient introduit dans l'équation 3.6 du chapitre 3. Avec $\kappa_e = b \times T_e$, on obtient $(b/2)(\partial T_e^2 / \partial r) = -H'(T_e^2 - T_{ph}^2)$. Il est ainsi possible de définir un paramètre adimensionnel $h = 2H'R_0/b$, de telle sorte que $\partial T_e^2 / \partial r + (T_e^2 - T_{ph}^2)h/R_0 = 0$.

Les différentes valeurs envisagées pour le paramètre h permettent de se placer dans diverses conditions de dissipation. $h = 0$ correspond à une absence de transfert d'énergie entre les électrons et la paroi, le terme $\partial T_e^2 / \partial r$ disparaît alors de l'équation. Une grande valeur de h , c'est-à-dire $h \gg 1$ décrit un échange idéal d'énergie menant rapidement à un équilibre entre la température électronique et la température des phonons de sorte que $T_e = T_{ph}$.

Une solution à l'équilibre de l'équation définie précédemment peut alors s'exprimer sous la forme :

$$T_e^2 = T_{ph}^2 + T_0^2 \sum_{n=0}^{+\infty} a_n J_0(\mu_n r/R_0) \sinh(\lambda_n(L_c - z)/R_0) \quad (4.3)$$

avec les coefficients a_n définis par

$$\begin{aligned} a_n &= \frac{\mu_n J_1(\mu_n \zeta_N)}{\lambda_n \mu_n^2 ([J_1(\mu_n)]^2 + [J_0(\mu_n)]^2 \cosh(\lambda_n L_c/R_0)) \cosh(\lambda_n L_c/R_0)} \\ &= \frac{\mu_n J_1(\mu_n \zeta_N)}{\lambda_n (\mu_n^2 + \hbar^2) [J_0(\mu_n)]^2 \cosh^2(\lambda_n L_c/R_0)} \end{aligned}$$

Dans cette expression, $\zeta_N = r_N/R_0$, μ_n est la racine de l'équation $\mu_n J_1(\mu_n)/J_0(\mu_n) = h$ avec $n = 0, 1, 2, \dots$ et les valeurs propres du problème le long de l'axe z sont $\lambda_n = \sqrt{\mu_n^2 + R_0^2/L_0^2}$. Le coefficient T_0^2 de l'équation 4.3 est indépendant du nombre de canaux ouverts N , et $k_B^2 T_0^2 = 96(eV)^2 E_F / \pi^4 \hbar N_e V_F^2 \lambda_F \tau$. À partir de l'approximation précédente $\tau \approx R_0/\nu_F$ et de la relation $N_e = k_F^3/3\pi^2$ (k_F rayon de la sphère de Fermi de volume V_F), nous trouvons $k_B T_0 = (6/\pi^2)(eV) \sqrt{\lambda_F/R_0}$, c'est-à-dire $T_0 \approx 4.92 \sqrt{\lambda_F/R_0} \times 10^3$ K pour une tension $V = 0.7$ V.

D'après l'équation 4.3, le maximum de température est atteint à l'extrémité du cylindre de coordonnée ($z = 0, r = 0$). Dans le cas d'un transfert d'énergie optimal des électrons avec les parois, c'est-à-dire lorsque $h \mapsto +\infty$, la condition limite impose $T_e(r = R_0) = T_{ph}$ et la grandeur $\mu_n \rightarrow \mu'_n$ devient point d'annulation de la fonction de Bessel $J_0(\mu'_n) = 0$ avec $n = 1, 2, \dots$. La longueur caractéristique L_0 devient supérieure à R_0 et $L_0/R_0 \approx \sqrt{\nu_F \tau_{\text{energie}}/3R_0} \gg 1$. Dans ce cas, $\lambda_n \approx \mu'_n$ et la température électronique maximale dans ce cas limite s'exprime :

$$T_{e[h \rightarrow +\infty]}^2 \approx T_{ph}^2 + T_0^2 \sum_{n=0}^{+\infty} \frac{J_1(\mu'_n \zeta_N)}{[\mu'_n J_1(\mu'_n)]^2} \tanh\left(\frac{\mu'_n L_c}{R_0}\right) \quad (4.4)$$

Dans le cas opposé, lorsque les échanges sont très limités ($h \ll 1$) voir absent ($h = 0$), les racines $\mu_n \rightarrow \mu''_n$ correspondent à des $n^{\text{ème}}$ points d'annulation $\mu''_0 \approx \sqrt{2h}$ de la fonction de Bessel du premier ordre $J_1(\mu''_n) \approx 0$, avec $n = 1, 2, \dots$. On a alors $\lambda_0 \approx \sqrt{2h + R_0^2/L_0^2} \rightarrow R_0/L_0$ et la température électronique maximale devient :

$$T_{e[h \rightarrow 0]}^2 \approx T_{ph}^2 + T_0^2 \left[\frac{\zeta_N L_c}{R_0} + \sum_{n=0}^{+\infty} \frac{J_1(\mu''_n \zeta_N)}{[\mu''_n J_0(\mu''_n)]^2} \tanh\left(\frac{\mu''_n L_c}{R_0}\right) \right] \quad (4.5)$$

Les relations existantes entre la température électronique maximale et le nombre de canaux de conduction sont illustrées par les figures 4.5 (a) et (b). Les deux cas limites de transfert d'énergie ($h \ll 1$ et $h \gg 1$) y sont présentés pour des longueurs L_c graduellement incrémentées. Le rayon R_0 du cylindre est fixé à $R_0 = 2.5\lambda_F$, ce qui correspond à un maximum de 10 canaux quantiques de conduction disponibles

au contact. Pour chaque nombre N de canaux considéré, la température maximale croît avec l'augmentation graduelle de la longueur du cylindre de $L_c = R_0/6$ à $L_c = R_0$. À partir de ces premiers résultats et sans tenir compte du mécanisme de perte inélastique avec les parois du système, nous pouvons déjà conclure en partie sur la problématique initiale. La température électronique augmentent lorsque le nombre de canaux ouverts N diminue. Cette dépendance est d'autant plus marquée pour des longueurs du cylindre d'interconnexion L_c faibles.

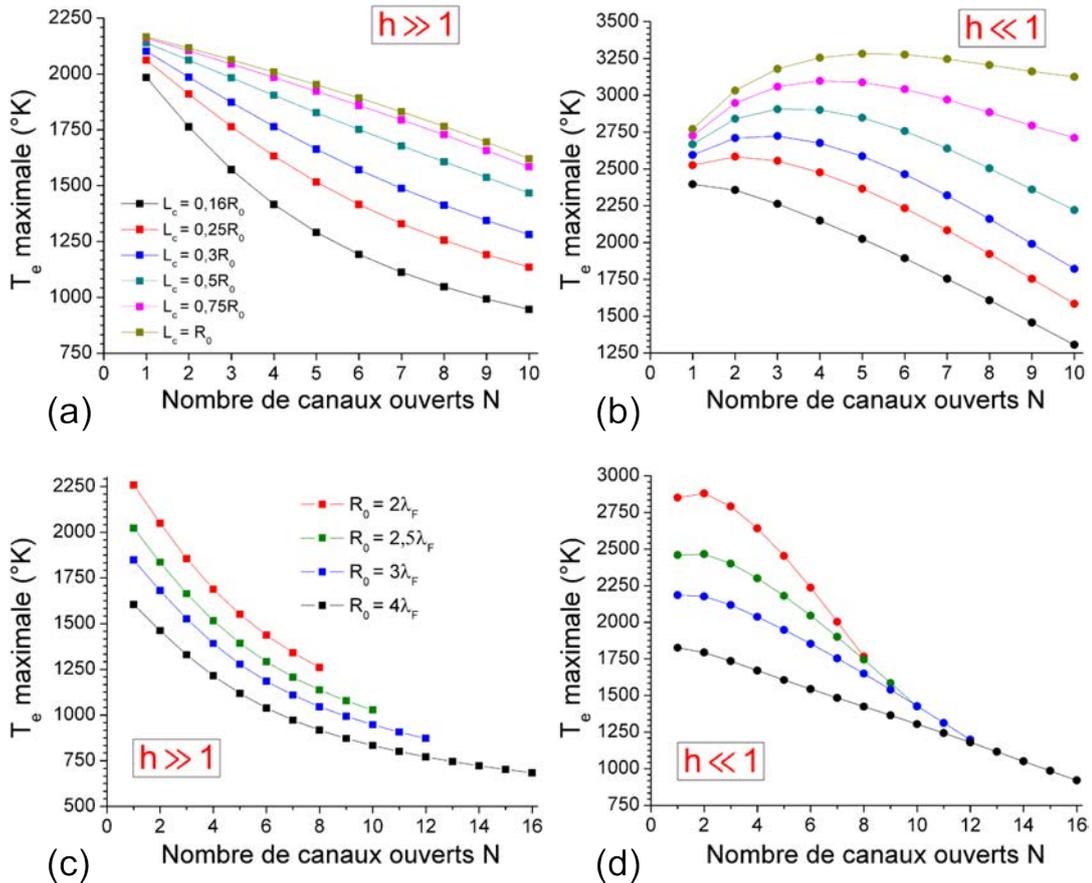


FIGURE 4.5 – Ces figures représentent le maximum de température électronique calculé en fonction du nombre de canaux quantiques de conduction ouverts N au sein de la constriction. (a) et (b) montrent les résultats avec le paramètre R_0 fixé à $2.5\lambda_F$. (c) et (d) présentent les résultats avec le paramètre L_c fixé à $\lambda_F/2$. Les points carrés correspondent à un transfert d'énergie optimal $h \gg 1$ et les points ronds à $h \ll 1$. Les courbes des figures (a) et (b) sont tracées pour des longueurs de cylindre telles que : $L_c = R_0/6$ (noire), $L_c = R_0/4$ (rouge), $L_c = R_0/3$ (bleue), $L_c = R_0/2$ (turquoise), $L_c = 3R_0/4$ (magenta) et $L_c = R_0$ (kaki). Les courbes des figures (c) et (d) sont représentées pour des rayons de la zone d'interconnexion tels que : $R_0 = 2\lambda_F$ (rouge), $R_0 = 2.5\lambda_F$ (verte), $R_0 = 3\lambda_F$ (bleue) et $R_0 = 3.5\lambda_F$ (noire).

Les figures 4.5 (c) et (d) représentent les dépendances de la température électronique maximale en fonction du nombre de canaux de conduction avec L_c constant et tel que $L_c = R_0/3$. Les différentes courbes correspondent à des rayons R_0 allant de

$R_0 = 2\lambda_F$ (soit 8 canaux de conduction) à $R_0 = 4\lambda_F$ (soit 16 canaux de conduction). Les variations sont plus prononcées pour $h \ll 1$ et pour les rayons les plus petits. La chute contre-intuitive de la température électronique avec l'augmentation de la puissance électrique peut être causée par la baisse de la conductivité thermique des électrons chauds. Cette baisse est elle-même provoquée par le mécanisme de transport et les collisions avec les parois de la zone de connexion. Les dimensions de cette région sont d'autant plus faibles que l'électromigration de la constriction progresse. En tenant compte du fait que la puissance électrique appliquée P_N est fonction de N (c'est-à-dire $P_N = V_b^2 G_0 N$), on observe que les données de la figure 4.5 sont en bonne concordance avec la figure 4.3 (b). Cette remarque est justifiable à condition de pouvoir relier la température électronique T_e avec la quantité de photons émis par la constriction.

Dans les métaux massifs, les électrons chauds à l'état de non-équilibre perdent majoritairement leur énergie par l'intermédiaire de transferts d'énergie non-radiatifs avec les phonons et les impuretés. Les températures déduites des calculs précédents nous permettent d'écarter dans un premier temps les mécanismes d'émissions par transferts d'énergies entre atomes du réseaux. Les photons peuvent donc être émis par des mécanismes de type bremsstrahlung thermique. Le modèle développé dans le chapitre 3 pour décrire l'émission lumineuse en régime tunnel est basé sur la loi de Planck. Cette dernière, de nature thermique, peut être déduite du bremsstrahlung (voir équation 4.17). Nous nous placerons donc ici dans un cadre général en considérant le bremsstrahlung thermique.

La mise en place d'un équilibre thermiques des photons résulte d'une dynamique complexe de transition entre électrons libres. Ces transitions trouvent pour origine les processus d'émission et d'absorption de type bremsstrahlung, tout comme de l'effet Compton [162, 163]. Dans le cadre d'une approximation simplifiée du phénomène de diffusion, nous pouvons utiliser l'équation de transfert radiatif suivante pour traiter l'émission de photon :

$$\frac{dI_\omega}{ds} = -\alpha_\omega I_\omega + \alpha_\omega B_\omega(T_e) \quad (4.6)$$

avec I_ω le spectre d'intensité irradié, α_ω le coefficient d'absorption correspondant à la fréquence ω , et $B_\omega(T_e)$ la densité spectrale irradiée à l'équilibre et donnée par la loi de Planck. Dans un métal massif, lorsque la profondeur de peau optique α_ω^{-1} est plus petite que la dimension caractéristique liée au volume de matière, l'équation 4.6 est déduite de la loi de Kirchhoff, dont l'émissivité est donnée par $j_\omega = \alpha_\omega B_\omega(T_e)$.

Dans le cas d'une région d'interconnexion avec la constriction de faibles dimensions, la zone où laquelle les électrons chauds sont de températures élevées est décrite par $r_N \approx N\lambda_F/4$, dont la taille est plus petite que la profondeur de peau optique α_ω^{-1} . De ce fait, il n'est pas possible de définir une distribution à l'équilibre des photons dans la région d'interconnexion avec la constriction. Le mécanisme d'émission des photons est alors plutôt guidé par des processus de type bremsstrahlung, que par la loi de Kirchhoff. Les électrons chauds dans cette région sont en régime de transport quasi-balistique. Le libre parcours moyen des électrons avant collision avec un phonon est en effet mesuré à $l_{e-ph} = v_F\tau_{e-ph} \sim 60$ nm pour l'Au [73]. En faisant abstraction de la présence d'impuretés ou de mécanismes d'émission par effet Compton à deux photons (collisions électron-électron), nous pouvons conclure que l'activité lumineuse détectée dans nos mesures est principalement due à un processus de bremsstrahlung thermique des électrons chauds, entrant en collision avec le potentiel de surface des parois de la structure.

La densité spectrale irradiée par le mécanisme de bremsstrahlung évoqué précédemment (collisions avec le potentiel de surface) peut être déterminé grâce à une approche employant un formalisme de mécanique quantique. La technique utilisée s'inspire de la théorie de la conductivité des couches minces métalliques de Trivedi et Ashcroft [164], ainsi que de la théorie dans transitions interbandes dans les structures quantiques planaires des semi-conducteurs [165, 166]. On considère une structure métallique planaire dont l'épaisseur L est suffisamment grande pour permettre une transition limitative vers le spectre continu de la quantité de mouvement des électrons. L'axe z est considéré transverse au plan et $\vec{\rho}$ représente le vecteur position. La paroi du plan de coordonnées ($z = 0, L$) est modélisée par une marche de potentiel infinie. Grâce au modèle du jellium d'un système d'électrons sans interaction, nous pouvons définir la fonction d'onde d'un électron à l'intérieur de la structure métallique planaire par :

$$\Psi(z, \vec{\rho}, t) = \sqrt{\frac{2}{V_e}} \sin[k_z z] \exp(i\vec{k}_\perp \vec{\rho}) \exp\left(-i\frac{\varepsilon}{\hbar}t\right) \quad (4.7)$$

avec $k_z = (\pi/L)j$, $j = 1, 2, 3 \dots$ le nombre d'onde longitudinal, $\hbar\vec{k}_\perp$ la quantité de mouvement transverse et V_e le volume quantifié d'un électron. L'énergie d'un électron exprimée par $\varepsilon = (\hbar^2/2m)(k_z^2 + |\vec{k}_\perp|^2)$ est la valeur propre d'un hamiltonien non-perturbé. Grâce à la perturbation de l'hamiltonien $H_{int} = -(e/mc)\hat{A}\vec{p}$, il est possible de décrire l'émission spontanée d'un photon dans un mode donné de vecteur d'onde \vec{k} , dont le potentiel vecteur \hat{A} possède l'écriture suivante :

$$\hat{A} = \left(\frac{2\pi\hbar c}{V_{ph}\omega}\right)^{1/2} \hat{a}_{\vec{k},\sigma}^+ \hat{e}_{\vec{k},\sigma}^* \exp(-i\vec{k}\vec{r})e^{-i\omega t} \quad (4.8)$$

Dans cette expression, $\hat{a}_{\vec{k},\sigma}^\dagger$ est l'opérateur création d'un photon, $\vec{e}_{\vec{k},\sigma}^*$ est le vecteur polarisation unitaire, V_{ph} le volume quantifiée des photons, σ la polarisation, et ω la pulsation telle que $\omega = |\vec{k}|c$. Des transitions sont engendrées entre l'état initial $|i\rangle$ d'un électron d'énergie ε_i et l'état disponible de photon, ainsi qu'entre l'état final $|f\rangle$ d'un électron d'énergie ε_f et un photon du mode précédent. Le taux de transition peut être exprimé à l'aide de la théorie des perturbations au premier ordre, de telle sorte que :

$$W_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H_{int} | i \rangle|^2 \delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i + \hbar\omega) d\rho_f \quad (4.9)$$

avec $d\rho_f$ la densité d'états finaux et telle que $d\rho_f = (V_e/(2\pi)^3) d^3\vec{k}_f \times (2V_{ph}/(2\pi)^3) d^3\vec{k}$ dans la limite d'une continuité des états. L'opérateur linéaire de l'hamiltonien modifié s'exprime alors sous la forme :

$$\begin{aligned} \langle f | H_{int} | i \rangle &= i \frac{4e\hbar}{mV_e} \left(\frac{2\pi\hbar c}{V_{ph}\omega} \right)^{1/2} \times \\ &\frac{k_{i,z}k_{f,z}}{k_{i,z}^2 - k_{f,z}^2} (\vec{e}_{\vec{k},\sigma}^*, \vec{e}_z) \delta(\vec{k}_{i,\perp} - \vec{k}_{f,\perp}) \end{aligned} \quad (4.10)$$

\vec{e}_z représente le vecteur unitaire le long de l'axe z . La fonction de Dirac δ dans l'opérateur de l'équation 4.10 assure la conservation de la partie transverse (parallèle à la paroi) de la quantité de mouvement de l'électron alors que sa composante suivant z change. Ce point permet de respecter la loi de conservation des énergies, attribuée à la fonction δ dans le membre de droite de la règle d'or de Fermi (voir équation 4.9). Pour exprimer le spectre d'émission par unité de temps, il suffit alors de faire la somme de tous les états finaux électroniques aussi bien en fonction de la polarisation mais aussi de l'angle solide d'émission des photons. La somme dans la limite de continuité $L \rightarrow \infty$ sur tous les états finaux électroniques est décrite par la relation suivante :

$$\begin{aligned} \int \frac{k_{i,z}^2 k_{f,z}^2}{(k_{i,z}^2 - k_{f,z}^2)^2} \delta^2(\vec{k}_{i,\perp} - \vec{k}_{f,\perp}) \times \\ \delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i + \hbar\omega) d^3\vec{k}_f = (2\pi)^2 S_\perp \frac{m^2 v_{i,z}^2 v_{f,z}}{4\hbar^3 \omega^2}, \end{aligned} \quad (4.11)$$

où S_\perp est la surface de la paroi, et avec les conditions $v_{i,z} = \hbar k_{i,z}/m$ et $v_{f,z} = (v_{i,z}^2 - 2\hbar\omega/m)^{1/2}$. La somme sur les différentes polarisations du bremsstrahlung des photons peut être prise en considération par la substitution $2|(\vec{e}_{\vec{k},\sigma}^*, \vec{e}_z)|^2 \rightarrow \sin^2 \theta$. Après avoir fait la somme sur tous les angles solides $d\Omega = \sin \theta d\theta d\phi$, on exprime

ainsi le taux d'émission bremsstrahlung par unité de fréquence :

$$\frac{dN_i(\omega)}{d\omega dt} = \frac{8e^2 v_{i,z}^2 v_{f,z}}{3\pi V_e \hbar \omega c^3} S_{\perp} \quad (4.12)$$

Soit n_i la densité d'électrons avec une vitesse longitudinale $v_{i,z}$. Le taux de collisions avec la paroi gauche de la structure métallique planaire est alors $\frac{1}{2}n_i S_{\perp} v_{i,z}$ et une valeur identique est attendue pour la paroi droite. Par conséquent, le spectre total de puissance émis par un électron ($n_i = 1/V_e$) est :

$$\frac{dP_{\omega}}{d\omega} = \frac{dN_i(\omega)}{d\omega dt} \frac{\hbar \omega}{v_{i,z} S_{\perp} / V_e} = \frac{8e^2}{3\pi c^3} v_{i,z} v_{f,z} \quad (4.13)$$

Dans la limite classique $\hbar \omega \rightarrow 0$, c'est-à-dire lorsque l'énergie des électrons diffusés ne change pas de façon significative, le terme $4v_{i,z}v_{f,z}$ peut être simplifié par $4v_{i,z}v_{f,z} \approx (v_{i,z} + v_{f,z})^2 = |\vec{v}_i - \vec{v}_f|^2$. On retrouve ainsi la relation classique $dP_{\omega}/d\omega = (2e^2/3\pi c^3)|\Delta v|^2$ pour le spectre de puissance émis par les électrons diffusés [167, 168].

En prenant une distribution de Fermi $f_F(\varepsilon) = 1/(1 + \exp[(\varepsilon - \varepsilon_F)/k_B T_e])$, et en effectuant une sommation de l'équation 4.12 sur tous les états électroniques de la structure métallique planaire, il est possible de calculer le densité spectrale d'émission par unité de surface telle que :

$$\begin{aligned} \frac{dN_{ph}(\omega)}{dS d\omega dt} &= \quad (4.14) \\ &= \frac{1}{2S_{\perp}} \int \frac{2d^2 \vec{k}_{i,\perp} dk_{i,z}}{(2\pi)^3} V_e \frac{dN_i(\omega)}{d\omega} f_F(\varepsilon_i)(1 - f_F(\varepsilon_f)) \\ &= \frac{8e^2}{3\pi^3 \hbar^3 c^3} \frac{k_B T_e / \hbar \omega}{\exp(\hbar \omega / k_B T_e) - 1} G(\omega, T_e, \varepsilon_F) \end{aligned}$$

avec $\varepsilon_i = (\hbar^2/2m)(k_{i,z}^2 + |\vec{k}_{i,\perp}|^2)$, $\varepsilon_f = \varepsilon_i - \hbar \omega$. Le terme $1/2S_{\perp}$ tient compte de la double diffusion aux surfaces de la structure. La fonction $G(\omega, T_e, \varepsilon_F)$ est donnée par l'intégrale suivante :

$$\begin{aligned} G(\omega, T_e, \varepsilon_F) &= \int_{\hbar \omega}^{\infty} du \sqrt{u(u - \hbar \omega)} \times \quad (4.15) \\ &\left\{ \ln \left[1 + \exp \left(\frac{\varepsilon_F - u + \hbar \omega}{k_B T_e} \right) \right] - \ln \left[1 + \exp \left(\frac{\varepsilon_F - u}{k_B T_e} \right) \right] \right\} \end{aligned}$$

La densité spectrale totale d'émission par unité de surface du nombre de photons émis par processus de Bremsstrahlung et donné par les équations 4.14 et 4.15 est une fonction compliquée dont l'analyse ne sera pas développée dans cette étude. Dans le cas présent, les conditions expérimentales nous permettent de nous placer dans le cas où le maximum de température atteint est bien en dessous de l'énergie des photons mesurés, avec la relation :

$$k_B T_e \ll \hbar\omega \ll \varepsilon_F. \quad (4.16)$$

Dans ces conditions, le logarithme dans l'accolade de l'équation 4.15 devient négligeable quand $u > \varepsilon_F + \hbar\omega$ et $u > \varepsilon_F$. Lorsque $\hbar\omega < u < \varepsilon_F$, le terme à l'intérieur de l'accolade est environ constant et égale à $\hbar\omega/k_B T_e \gg 1$, et lorsque $\varepsilon_F < u < \varepsilon_F + \hbar\omega$, ce même terme tend alors vers 0. Par conséquent, l'approximation $G \approx (\varepsilon_F^2 \hbar\omega / 2k_B T_e)(1 + O(\hbar\omega/\varepsilon_F))$ permet de trouver finalement :

$$\frac{dN_{ph}(\omega)}{dS d\omega dt} \approx \frac{4e^2 \varepsilon_F^2}{3\pi^3 \hbar^3 c^3} \frac{1}{\exp(\hbar\omega/k_B T_e) - 1} \quad (4.17)$$

Une expression équivalente peut être donnée à partir de loi de Planck pour un corps noir :

$$B_\omega(T_e) = \frac{\omega^2}{2\pi c^2} \frac{1}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} \quad (4.18)$$

On remarque alors que l'expression de l'émission par processus bremsstrahlung thermique développée précédemment (équation 4.17) est équivalente à celle de la loi de Planck, divisée par un facteur Υ de la forme :

$$\Upsilon = \frac{8}{3\pi^2} \frac{e^2}{\hbar c} \left(\frac{\varepsilon_F}{\hbar\omega} \right)^2, \quad (4.19)$$

Dans les conditions expérimentales de cette étude, le coefficient Υ peut être approximé à $\Upsilon \sim 0.1$.

Pour modéliser les mesures effectuées, on introduit une fonction $Q(\omega)$ permettant de prendre en compte la fonction de transfert du système de détection optique, en incluant la sensibilité spectrale des détecteurs. Les photodiodes à avalanche limitent la fenêtre de détection au domaine du visible, ce qui correspond à la partie des hautes énergies de la queue du signal d'émission bremsstrahlung. La fonction de transfert $Q(\omega)$ est ainsi modélisée par :

$$Q(\omega) \approx \left\{ \begin{array}{l} 0 = \omega < \omega_1 \\ 0.65 \frac{\omega - \omega_1}{\omega_2 - \omega_1} = \omega_2 > \omega > \omega_1 \\ 0.65 = \omega_3 > \omega > \omega_2 \end{array} \right\} \quad (4.20)$$

Dans cette expression, ω_1 correspond au seuil de détection du détecteur à la longueur d'onde $\lambda_1 = 1070$ nm, ω_2 est reliée au maximum de détection à $\lambda_2 = 740$ nm, et ω_3 se rapporte à la fin de la gamme spectrale de détection à $\lambda_3 = 600$ nm.

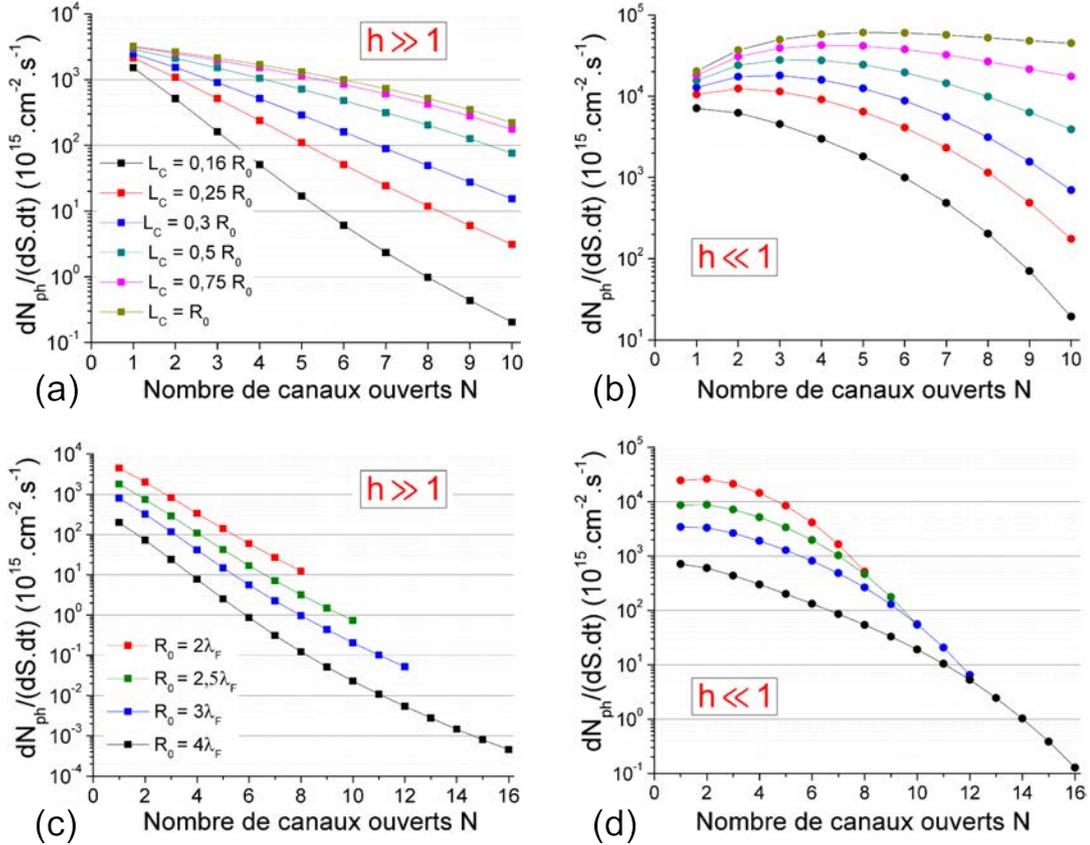


FIGURE 4.6 – Taux d'émission du bremsstrahlung thermique en fonction du nombre de canaux quantiques de conduction ouverts. Les figures (a) et (b) représentent les courbes en échelle semi-logarithmique pour des rayons $R_0 = 2.5\lambda_F$. Les carrés correspondent aux données en faisant l'approximation $h \gg 1$ alors que les cercles correspondent à l'approximation $h \ll 1$. Les données sont tracées pour différentes valeurs de L_c : $L_c = R_0/6$ (noire), $L_c = R_0/4$ (rouge), $L_c = R_0/3$ (bleue), $L_c = R_0/2$ (turquoise), $L_c = 3R_0/4$ (magenta), et $L_c = 3R_0/4$ (kaki). Les figures (c) et (d) sont elles-aussi en échelle semi-logarithmique mais avec cette fois-ci L_c fixé à $\lambda_F/2$. Les données sont présentées pour différentes valeurs de R_0 : $R_0 = 2\lambda_F$ (rouge), $R_0 = 2.5\lambda_F$ (verte), $R_0 = 3\lambda_F$ (bleue), et $R_0 = 4\lambda_F$ (noire).

Les résultats des calculs effectués pour montrer les dépendances du taux d'émission du bremsstrahlung en fonction du nombre de canaux quantiques de conduction ouverts sont présentés par les figures 4.6. Les calculs numériques sont effectués à partir des températures électroniques de la figure 4.5. Les résultats sont présentés

pour les deux cas extrêmes $h \gg 1$ et $h \ll 1$, et pour différentes valeurs des paramètres L_c et R_0 de la région d'interconnexion avec la constriction. On remarque que les résultats où L_c et R_0 sont faibles sont assez similaires aux mesures expérimentales effectuées. En effet, les décroissances exponentielles de l'intensité lumineuse qui apparaissent dans les figures 4.6 sont en accord avec les données expérimentales concaténées par la figure 4.3 (a).

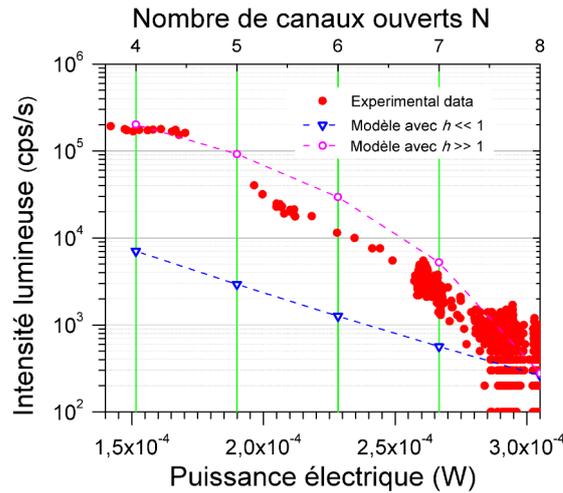


FIGURE 4.7 – Représentation de l'intensité lumineuse (échelle logarithmique) en fonction de la puissance dissipée par effet Joule $P_J = I^2 \times G^{-1}$ au niveau de la constriction (avec une tension appliquée $V_{DC} = 700$ mV). Les données sont représentées par des diamants bleus clairs dans la figure 4.3 (a). Les triangles bleus inversés représentent les points calculés à partir du modèle développé dans ce chapitre, en considérant une absence d'échanges avec les parois de la zone d'interconnexion ($h \ll 1$). Les cercles en magenta illustrent les points obtenus à partir du modèle en considérant une thermalisation efficace au niveau des parois de la zone d'interconnexion ($h \gg 1$).

Le modèle développé précédemment est aussi utilisé pour comparer les mesures expérimentales de l'intensité lumineuse en fonction de la puissance électriques traversant la constriction (voir figure 4.7 identique à la figure 4.3 (b)), pour un nombre de canaux ouverts N allant de 4 à 7. Les triangles bleus inversés montrent les calculs effectués à partir du modèle en considérant une absence d'échange avec les parois de la zone d'interconnexion ($h \ll 1$). Les cercles en magenta illustrent les calculs en tenant compte d'une thermalisation efficace avec les parois ($h \gg 1$). L'efficacité globale de détection n'est pas connue, et elle est ici considérée comme un paramètre libre nommé η . L'ajustement réalisé à partir des données permet d'évaluer η à environ 0.43. Ce rendement de détection semble être en accord avec le microscope utilisé. La figure 4.7 montre de façon évidente que le cas $h \gg 1$ est plus proche des mesures expérimentales. Ce point confirme le fait que le mécanisme de thermalisation avec les parois de la région d'arrivée des électrons (après passage à travers la constriction) est un phénomène important à considérer.

Dans ce chapitre, les mesures présentées par la figure 4.3 indiquent une élévation du nombre de photons émis, c'est-à-dire de la température électronique, alors que la puissance électrique traversant la constriction diminue. Dans le cas des mesures sur les jonctions tunnels présentées dans le chapitre 3, la température électronique augmente avec la puissance électrique injectée à travers la jonction. Cette différence de comportement trouve son origine dans la géométrie et les dimensions du système de conduction des électrons. Dans les deux cas, nous avons considéré les collisions des électrons avec les parois du conducteur comme phénomène principal de dissipation responsable de l'émission lumineuse. Dans le cadre de l'électromigration, la fermeture progressive des canaux de conduction entraîne une diminution de la puissance électrique traversant la constriction, mais avec cependant une augmentation du taux de collisions électrons-parois (T_e croissant). Dans le cas des jonctions tunnels, il est possible d'augmenter la puissance électrique injectée tout en préservant la géométrie du problème. Une puissance électrique croissante est alors synonyme d'une température électronique qui augmente avec le taux de collisions électrons-parois. Dans le cas des constriction, si le système pouvait être conservé en l'état, c'est-à-dire sans fermeture des canaux de conduction avec l'électromigration, il est certain qu'une augmentation de la puissance électrique conduirait à un taux de collision électrons-parois plus élevé, c'est-à-dire à une élévation de la température électronique. Ces deux observations en apparence contradictoires suivent donc en réalité la même interprétation.

Les travaux réalisés par d'autres équipes ont permis de démontrer que des constriction métalliques avaient la propriété d'émettre un rayonnement électromagnétique dans le domaine des radio-fréquences [150, 151]. Les tensions appliquées de quelques millivolts ont ainsi permis de sonder les effets linéaires d'un tel système. Ce chapitre présente le type de résultats obtenus à partir de l'application de tension d'amplitude plus élevée (quelques centaines de millivolts). Les effets non linéaires qui opèrent en régime balistique permettent ainsi d'émettre des photons dans la gamme spectrale du visible, violant parallèlement la limite quantique imposée par la tension appliquée. L'expérience démontre que la quantification du nombre de canaux de conduction entraîne indubitablement l'augmentation de la température électronique locale, à défaut d'un équilibre électrons-phonons. En considérant une distribution d'électrons chauds qui n'est plus à l'équilibre avec la population de phonons, nous avons développé un modèle permettant de relier la température électronique et l'activité lumineuse au nombre de canaux de conduction ouverts dans la constriction. Dans ce modèle, la zone d'arrivée des électrons après passage à travers la constriction est représentée par une zone d'interconnexion de faibles dimensions entre l'électrode massive et la constriction. À l'intérieur de cette région, le régime de conduction des électrons chauds est considéré quasi-balistique. Les échanges d'énergie sont principalement attribués aux collisions des électrons avec les parois de la zone d'interconnexion. Les mécanismes de transfert d'énergie électron-électron et électron-phonon

sont ici négligés pour les raisons évoquées précédemment. Les électrons chauds du système émettent alors des photons au dessus de la limite quantique eV_{DC} , dont l'émission est produite à partir d'un mécanisme de bremsstrahlung avec les parois de la région d'interconnexion.

Igor Smetanin et Alexander Uskov ont réalisé un développement analytique du taux d'émission de photon par processus bremsstrahlung à partir d'une approche quantique. La formule déduite de ce développement coïncide avec la relation dérivée à partir d'une approche classique dans la limite où $\hbar\omega \rightarrow 0$. La formule développée est proche de celle de la loi de Planck, qui sont difficilement dissociable dans cette gamme d'énergie au vu des valeurs de températures électroniques déduites. Les résultats numériques obtenus à partir de cette formule concordent avec les données expérimentales présentés. La fermeture progressive des canaux de conduction provoquent en théorie une croissance exponentielle du nombre de photons émis, qui est bien observée expérimentalement. Dans l'état actuel du système, la fermeture trop rapide des canaux de conduction ne nous permet pas de pousser l'étude en profondeur, avec par exemple la mesure des spectres d'émission comme dans le chapitre 3. Les résultats présentés dans ce chapitre montrent que le développement d'une technique plus efficace de contrôle du processus d'ouverture et de fermeture des canaux de conduction permettrait de concevoir de nouvelles sources optiques à l'échelle de l'atome, dont le rendement pourrait être en théorie meilleur que l'émission par effet tunnel [154].

Chapitre 5

Excitations électrique radio-fréquence et pulsée

Afin de pouvoir faire partie intégrante d'un protocole de transfert wifi à l'échelle nanométrique, la nanosource doit être en mesure de convertir une information électrique en une information lumineuse. Les chapitres précédents ont présenté le mode fabrication de ces nanosources, et démontré que le processus d'émission pouvait être attribué à la relaxation d'électrons chauds, dont la température est un facteur déterminant de l'émission. La vitesse d'encodage de l'information est cependant un paramètre important de cette étude. L'encodage des données par codage binaire est une technique largement utilisée dans les télécommunications. À partir de la variation de l'intensité lumineuse (codage de type NRZ *Non-Return-to-Zero*), l'information est codée par un convertisseur analogique numérique suivant une suite de 0 et de 1, définissant des bits. Plus le signal sera modulé rapidement, plus le débit d'information sera important.

La limite de modulation du signal d'une source réside en premier lieu dans la dynamique du processus d'émission. Dans le cas de source à dynamique thermique, il a été clairement démontré que la modulation haute fréquence demeure encore aujourd'hui un challenge [169, 170]. La loi de Kirchhoff énonce que l'émission thermique est le produit de deux facteurs : le coefficient d'absorption du milieu, fonction de la fréquence, et le spectre d'émission d'un corps noir, dont les paramètres dépendent de la température du milieu. La modulation d'une source thermique peut donc être obtenue par le contrôle de la dynamique d'un de ces deux facteurs. Plusieurs auteurs ont démontré des résultats intéressants par modulation du coefficient d'absorption [171-173]. La fréquence limite expérimentale a même été repoussée jusqu'à 600 kHz par Inoue *et al.* [173]. La modulation de la température de la source donne quant à elle des résultats moins satisfaisants. La limite atteinte se situe autour des 100 Hz [174]. Des calculs récents ont démontré que la limite pourrait être repoussée à l'échelle de quelques dizaines de mégahertz en réduisant de façon significative le volume du milieu émetteur [175]. La constante de temps de diffusion thermique d'un objet de dimension caractéristique l est en effet proportionnelle à l^2/D , avec D le coefficient de diffusion thermique. Une réduction de l diminue ainsi le temps

nécessaire au système pour redescendre à sa température initiale. La longueur caractéristique liée au volume du gaz d'électrons chauds de notre étude a été évaluée à une trentaine de nanomètres. L'origine du processus d'émission et les dimensions caractéristiques de notre source ouvrent alors la question sur la dynamique d'un tel système. Dans ce chapitre, nous discutons des possibilités de modulation qu'offre la source optique étudiée, ainsi que de ses limites. La première partie s'oriente sur la dynamique radio-fréquence des jonctions tunnels électroformées. La deuxième partie se concentre quant à elle sur l'étude de la réponse lumineuse des jonctions soumises à une excitation électrique pulsée.

5.1 Excitation sinusoïdale radio-fréquence

La réponse d'un circuit électrique diffère selon le type de tension appliquée, en particulier suivant la fréquence du signal électrique. Le produit Gain \times Bande passante étant constant, le convertisseur courant/tension utilisé précédemment se comporte comme un filtre passe-bas, avec une fréquence de coupure dépendant du gain choisi. La mesure de faibles courants nécessitant des gains importants ($10^6 - 10^7 \text{ V.A}^{-1}$) sous l'application de tensions oscillantes aux fréquences du mégahertz et du gigahertz devient alors irréalisable. Le montage électrique est modifié dans le but de retirer tout élément limitant la dynamique du circuit. La figure 5.1 illustre le nouveau montage électrique utilisé. Contrairement aux expériences précédentes, le courant électrique n'est plus mesuré. L'électrode source est utilisée comme potentiel de référence tandis que l'électrode drain est reliée au potentiel oscillant d'un générateur électrique radio-fréquence.

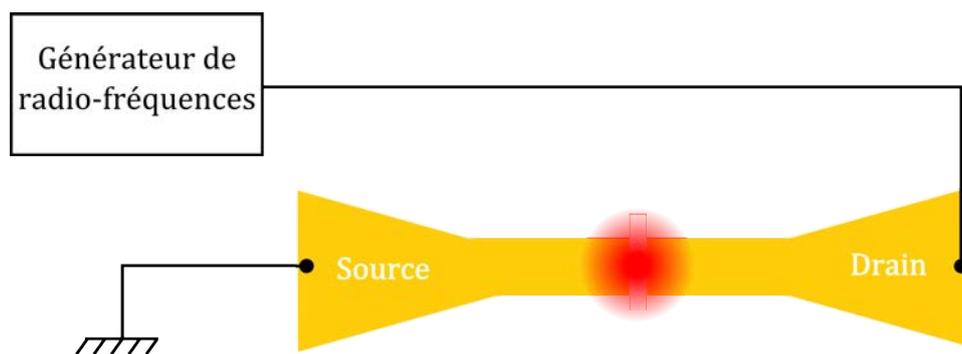


FIGURE 5.1 – Représentation de la partie électrique de l'excitation radio-fréquence. L'électrode source est fixée comme potentiel de référence tandis que l'électrode drain est reliée au potentiel oscillant. Le signal électrique sinusoïdale est produit par un générateur radio-fréquence de la marque Hewlett Packard modèle 8648B.

Dans leurs travaux sur les propriétés d'émission de films métalliques d'Ag et de Cu électromigrés [176], Dickson *et al.* démontrent que l'intensité lumineuse de

la réponse optique est fonction de la fréquence du signal sinusoïdal d'excitation. Ils observent l'apparition d'un phénomène d'exaltation du signal, dont le facteur est mesuré à 10^4 . Dans cet article, le processus d'émission est attribué à la recombinaison radiative électron-trou au sein d'agrégats quantiques composés de quelques atomes d'argents. Ces agrégats sont situés au sein de la jonction. Lorsqu'une période complète du signal électrique sinusoïdal est appliquée à la jonction, une tension positive puis une tension négative négative se succèdent. Le processus d'émission associé à la recombinaison radiative d'une paire électron-trou se divise alors temporellement en quatre étapes. Tout d'abord, l'électron tunnelle à travers la barrière suite à l'application de la partie positive. Le trou laissé dans la structure électronique par l'électron va alors thermiquement se dissiper. Le passage aux tensions négatives va ensuite faire tunneler l'électron dans l'autre sens, c'est-à-dire à son emplacement initial. Il pourra alors dans un dernier temps se recombiner avec le trou initialement laissé en émettant un photon. La convolution des différents temps caractéristiques de ces étapes montre expérimentalement une exaltation du signal optique pour une fréquence électrique de 168 MHz, dont la valeur est fonction de la nature même des agrégats. En s'inspirant de cette démarche, nous avons cherché dans un premier temps à étudier la réponse de la jonction en fonction la fréquence d'excitation.

Un signal électrique sinusoïdal d'amplitude $V_{max} = 550$ mV est appliqué aux bornes du circuit. Cette faible amplitude au regard de l'énergie lumineuse correspondante ($eV \ll h\nu$) assure que les photons mesurés sont issus de la relaxation d'électrons chauds précédemment discutée. La figure 5.2 présente les mesures d'intensité lumineuse moyenne obtenues en fonction de la fréquence du signal sinusoïdal d'excitation. L'intensité de la réponse lumineuse en coups par seconde est de l'ordre de celle attendue en tension continue, avec une amplitude de même valeur (nombre de coups par seconde évalué sur un spectre correspondant à la même amplitude mais en tension continue ≈ 100 cps.s⁻¹). On remarque cependant un signal clairement visible pour quelques fréquences illustrées par les pics de la figure 5.2 (a). Le facteur d'exaltation maximale du signal, mesuré à la fréquence de 144 MHz, est évaluée à environ $12000/100 \approx 10^2$. Les maxima d'intensités sont espacés d'approximativement 45 MHz les uns des autres (voir insert de la figure 5.2 (a)). La largeur à mi-hauteur de ces maxima vaut en moyenne 4 MHz. Ces mesures pointent l'éventuelle existence d'un phénomène de résonance optique. L'interprétation physique du processus d'émission établie précédemment ne permet cependant pas d'expliquer l'existence de résonances multiples. En effet, la désexcitation d'un bain d'électrons chauds ne propose pas à priori d'explication à un tel phénomène. Dans le cas de Dickson *et al.* [176], la présence d'agrégats quantiques est validé par la caractéristique IV des jonctions. Les variations mesurées du courant tunnel impliquent des corrélations existantes entre la structure électronique de l'agrégat et le phénomène de recombinaison électron-trou. Dans notre situation, aucune trace de ce type dans les

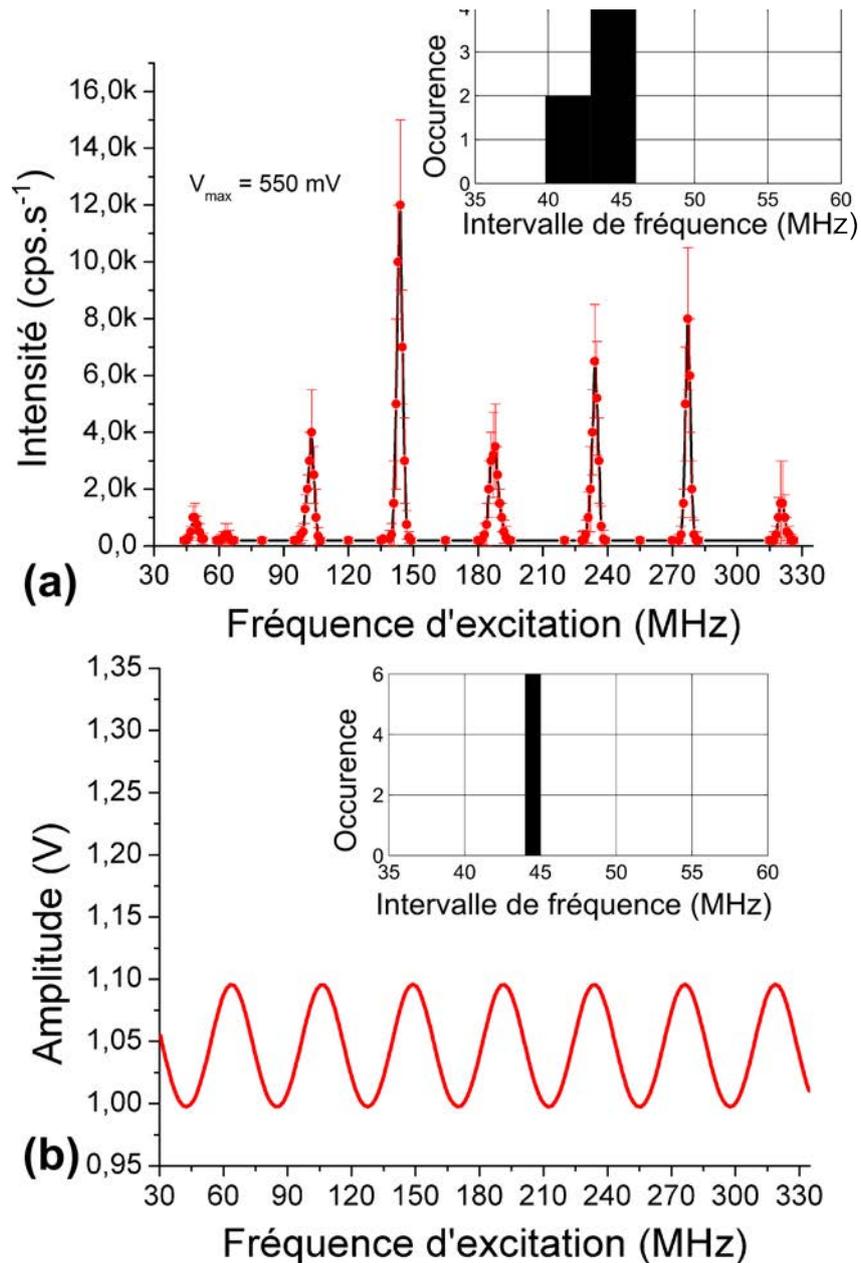


FIGURE 5.2 – Le graphique (a) représente l’intensité lumineuse moyenne mesurée en fonction de la fréquence d’excitation du signal électrique sinusoïdal. Le graphique (b) expose les résultats obtenus à partir d’une simulation. La tension aux bornes de la jonction est représentée en fonction de la fréquence d’excitation du générateur radio-fréquence. Les insertions des graphiques (a) et (b) sont des histogrammes décrivant respectivement l’écart en fréquence mesuré entre chaque pics d’intensité lumineuse (a) et chaque pic en amplitude électrique (b).

caractéristiques IV n’a été observée, ce qui permet d’écarter l’hypothèse d’une résonance de même origine.

Il convient cependant d’être prudent dans l’interprétation de ce phénomène en tant que résonance optique. En effet, ce phénomène pourrait aussi être attribué à

l'existence de réflexion dans la ligne électrique, dû aux problèmes d'impédance entre la source électrique et la charge du circuit. La réflexion du signal électrique interférant avec le signal incident produit alors une onde stationnaire, dont les positions des maxima d'amplitude électrique le long du circuit sont fonction de la fréquence d'excitation et de la longueur de la ligne de transmission du signal. Une simulation à l'aide du langage SPICE a été menée pour mettre en évidence ce phénomène. L'alimentation du circuit est modélisée par une source de tension alternative dont l'amplitude est fixée à 1 V et l'impédance à 50 Ω . Le signal est transporté à travers une ligne de transmission puis est appliqué à la jonction tunnel, modélisée par une résistance et une capacité placées en parallèle. La valeur de la résistance est fixée pour l'expérience à $R_T = 1/(0.81 \times G_0)$. La capacité C_T est évaluée dans la section 5.3 à 1.40×10^{-13} F. Cette faible valeur s'explique par une aire effective très petite (10^4 nm² au maximum). La figure 5.2 (b) présente les résultats de la simulation pour une gamme de fréquences sondées identique à l'expérience de la figure (a). La tension aux bornes de la jonction tunnel devient dépendante de la fréquence de transmission du signal si l'impédance de la ligne de transmission est différente de celle de la source. Pour une longueur de câble de 3 m et un délai de propagation de 3.92 ns.m⁻¹ (fonction du type de câble employé), on observe des maxima de tension aux bornes de la jonction. La création d'une onde stationnaire après réflexion sur la jonction implique que la position de ces maxima ne dépend pas de l'impédance de la ligne de transmission, mais de la longueur de la ligne et du délai de propagation du signal à travers celle-ci. Bien que la ligne de transmission soit choisie à 50 Ω , le constructeur indique qu'avec les incertitudes l'impédance peut être comprise entre 50 Ω et 55 Ω . Avec ces paramètres, on retrouve des maxima localisés aux mêmes fréquences que le signal lumineux. Il est cependant important de noter que la variation de l'amplitude du signal électrique (\approx %10) est bien plus faible en proportion que celle de l'intensité lumineuse (\approx 10²). La non-linéarité de la réponse optique de la jonction, dépendant de la caractéristique tunnel et de la température électronique du système, est probablement à l'origine de cette différence de proportion. Le fait que les maxima d'intensité lumineuse soient d'amplitudes différentes peut être expliqué par un sous-échantillonnage du signal. Le pas de mesure utilisé (1 MHz) est en effet proche de la largeur à mi-hauteur des pics lumineux (4 MHz).

Ces différents résultats démontrent qu'une excitation sinusoïdale radio-fréquence des jonctions tunnels fabriquées permet d'obtenir une réponse optique, tout comme en régime d'excitation continue. Les pics observés dans l'étude en fréquence de l'activité lumineuse ont pu être identifiés comme provenant du circuit électrique, et non de la nature du processus d'émission. La différence d'impédance entre l'impédance de la source et celle de la transmission est donc à l'origine de l'apparition de ces pics de tensions, entraînant une intensité lumineuse plus importante lors du processus d'émission.

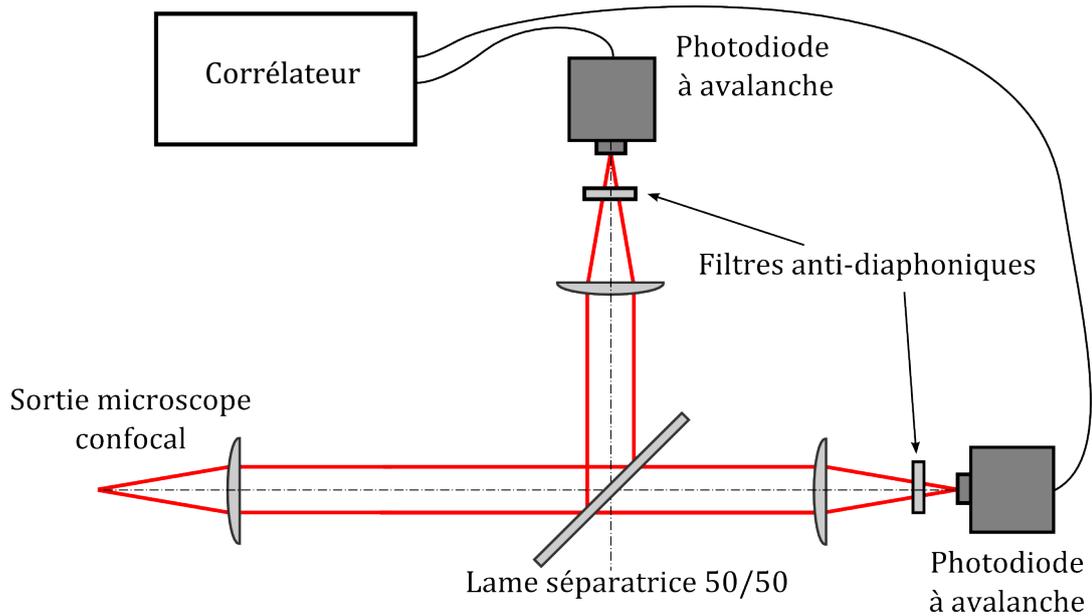


FIGURE 5.3 – Schéma optique du montage utilisé pour l'excitation électrique radio-fréquence. Le faisceau est collimaté à la sortie du microscope confocal pour être distribué sur deux détecteurs (photo-diodes à avalanche) par une lame séparatrice 50/50. Les filtres anti-diaphoniques absorbent la fluorescence émise par les détecteurs. Les signaux sont synchronisés par un module de comptage de photons Hydrharp 400 couplé à un corrélateur.

Le comptage de photon unique corrélé dans le temps est une technique développée pour mesurer les paramètres de fluorescence de molécules tel que le temps de vie [177, 178]. Cette technique est basée sur l'application d'un signal laser pompe, qui va aussi servir de signal déclencheur pour la partie détection. Un corrélateur connecté au détecteur et à la source mesure le temps écoulé entre l'excitation et la détection d'un photon. Cette opération est répétée pour construire un histogramme du nombre de photons collectés en fonction du temps écoulé entre l'excitation et la détection. La technique utilisée pour l'excitation sinusoïdale radio-fréquence des jonctions étudiées utilise le même principe avec cependant quelques différences. La figure 5.3 présente le montage optique utilisé. L'émission des jonctions collectée par l'objectif et le microscope est envoyée vers les détecteurs. Les photodiodes à avalanche utilisées possèdent un seuil de détection assez faible, avec un bruit de fond de 300 Hz. Le temps mort entre chaque détection est d'une vingtaine de nanosecondes. En assumant une fréquence de modulation des photons égale à la fréquence électrique, on trouve comme limite supérieure détectable de modulation 50 MHz. Une deuxième photodiode à avalanche est utilisée conjointement à la première pour repousser cette limite. Une lame séparatrice 50/50 distribue de manière égale le signal sur les deux détecteurs, et un corrélateur (Hydrharp 400) assure la synchronisation des signaux. Lorsque la première photodiode détecte un photon, le corrélateur mesure le temps écoulé jusqu'à la détection d'un photon par l'autre photodiode. Cette technique permet de mesurer les écarts temporels entre chaque détection des

photodiodes en s'affranchissant de la limite imposée par le temps mort des capteurs (50 MHz). Un histogramme du nombre de photons mesurés en fonction du temps écoulés entre chaque mesure des photodiodes permet alors de reconstruire l'évolution du taux d'émission en fonction de la fréquence d'excitation. Des filtres anti-diaphoniques sont installés devant les photodiodes pour bloquer la scintillation émise d'un détecteur à l'autre. Ces filtres permettent ainsi de limiter la présence d'artefacts de mesure [179].

Une étude temporelle de la réponse lumineuse a ensuite été menée pour quelques fréquences, choisies pour maximiser l'intensité lumineuse mesurée (voir la figure 5.2). Les corrélogrammes des mesures réalisées pour trois fréquences différentes (188, 235 et 278 MHz) sont présentés par les figures 5.4. Pour chacun de ces graphiques, la valeur absolue du signal électrique d'excitation est illustrée par une courbe rouge. Les corrélations des photons mesurés sont représentées en noires, en fonction de l'écart temporel entre chaque mesure effectuée par les photodiodes. Les maxima d'intensité lumineuse concordent temporellement avec les maxima de tension électrique, ce qui est conforme aux observations réalisées en tension continue (intensité lumineuse \nearrow lorsque la tension \nearrow). Chaque maxima d'intensité lumineuse correspond alors à un maximum de tension électrique atteint. Le signal électrique représentée n'est que la valeur absolue du signal électrique réel appliqué, qui oscille entre valeur positive et négative. Les intensités lumineuses recueillies ne semblent pas dépendre du signe de la tension appliquée car les maxima sont sensiblement constants. L'homogénéité des intensités mesurées pour une même fréquence d'excitation indique que les propriétés émettrices de la jonction sont donc symétriques. En effet, que le courant circule dans un sens ou dans l'autre, les intensités lumineuses recueillies sont similaires. Les écarts temporels mesurés entre deux pics lumineux consécutifs correspondent donc au double de la fréquence d'excitation électrique. Les fréquences de modulation optique mesurées sont donc 376 MHz pour la figure (a), 470 MHz pour la figure (b) et 556 MHz pour la figure (c). La symétrie de la barrière tunnel offre ainsi la possibilité de doubler la fréquence de la réponse lumineuse par rapport au signal d'excitation.

Les résultats obtenus démontrent la possibilité de moduler le signal optique jusqu'à au moins une fréquence de 556 MHz. Les fréquences atteintes dans cette étude dépassent de quasi 3 ordres de grandeurs les résultats obtenus à partir d'autres sources à dynamique thermique (600 kHz [173] et 100 Hz [174]). Les prédictions effectuées par Sakat *et al.* [175] annonce une limite de quelques dizaines de mégahertz pour un volume émetteur de $200 \times 200 = 4 \times 10^4 \text{ nm}^2$. Dans notre cas, le volume émetteur est approximé à $32 \times 32 \approx 1 \times 10^3 \text{ nm}^2$ avec des fréquences de quelques centaines de mégahertz atteintes. Ces résultats sont concordants avec les simulations effectuées par Sakat *et al.*, bien qu'il soit nécessaire de mentionner que la dissipation radiative soit ici associée aux électrons du système et non aux phonons. D'autres mesures sur la modulation du signal de jonction tunnel émettrices ont été effectués par

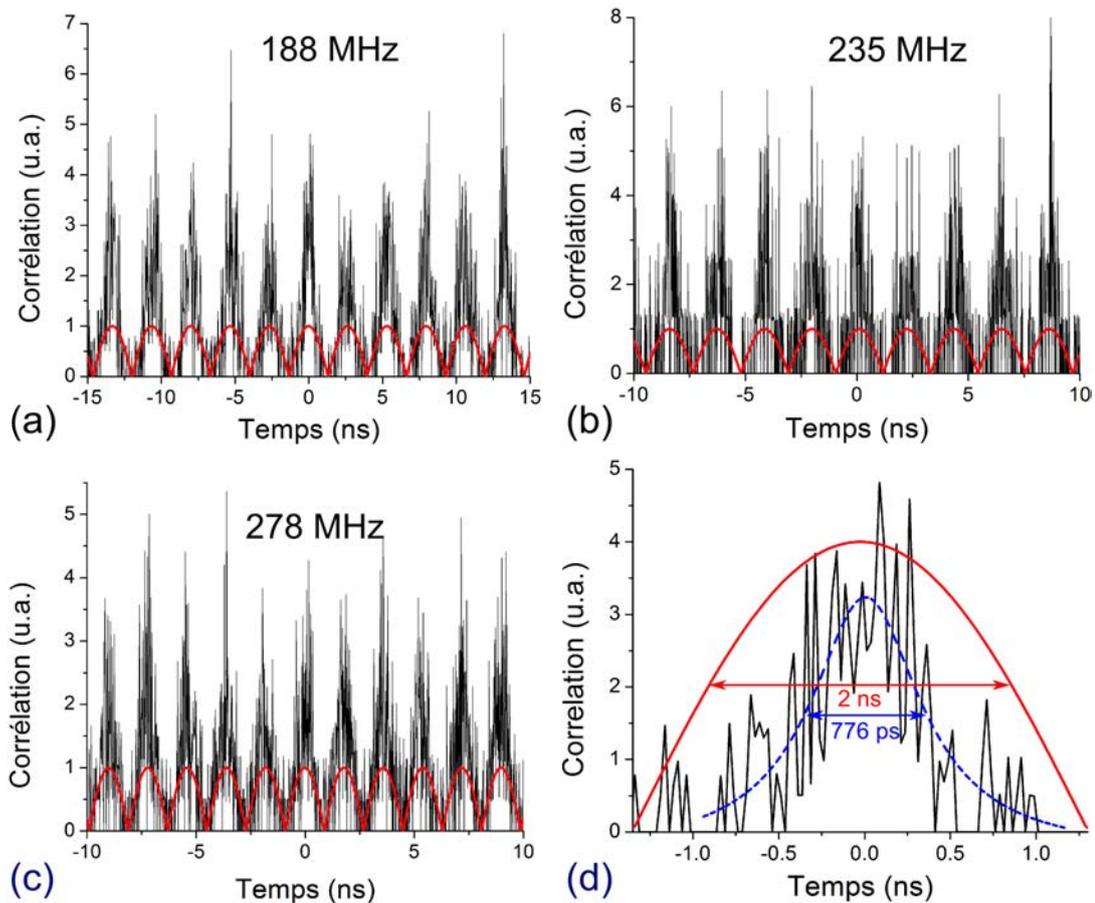


FIGURE 5.4 – Les graphiques (a), (b) et (c) représentent les histogrammes des intensités lumineuses mesurées pour trois fréquences d’excitations électriques différentes : (a) 188 MHz, (b) 235 MHz et (c) 278 MHz (la figure (d) représente un agrandissement de la figure (a) autour du pic central). La courbe bleue de la figure (d) représente l’ajustement des données à partir d’une fonction lorentzienne. La largeur à mi-hauteur de la fonction est évaluée à 776 ps, ce qui est bien inférieur à la largeur à mi-hauteur du signal d’excitation, soit 2 ns. Les courbes en rouges illustrent la valeur absolue du signal électrique appliqué.

Parzefall *et al.* [41]. Dans cette étude, l’émission est attribuée à l’effet tunnel inélastique. La modulation du signal d’émission dans ce cas n’est donc pas a priori limitée par temps de relaxation du bain d’électrons chauds, principal phénomène limitant dans le cas des sources à dynamique thermique. Les jonctions tunnels planaires formées par Parzefall *et al.* sont constituées de deux électrodes microscopiques d’Au séparées d’une couche diélectrique de nitrure de bore hexagonal. Une exaltation de l’émission est apportée par l’apport d’antennes optiques. Les auteurs présentent les résultats obtenus à partir de l’application d’une tension sinusoïdale superposée à une tension continue de plus grande amplitude. Les mesures, limitées ici aussi par la résolution du système, démontrent une modulation du signal lumineux atteignant la valeur limite de 1 GHz. Les résultats présentés dans cette partie indiquent donc que les jonctions émettant par effet tunnel inélastique ou par relaxation d’électrons chauds ne peuvent être différenciées par leur rapidité de modulation, dans la gamme

de fréquence étudiée.

La forme des signaux lumineux exposés par les figures 5.4 met en évidence un autre point intéressant. Alors que le signal électrique est sinusoïdal, le signal lumineux semble lui avoir une forme différente. La figure 5.4 (d) représente un agrandissement de la figure (a) sur le pic central à $t = 0$ s. La courbe rouge illustre le signal électrique. La courbe bleue correspond à l'ajustement des données avec une fonction lorentzienne, choisie arbitrairement pour modéliser le résultat. La largeur à mi-hauteur de la réponse lumineuse, évaluée ici à 776 ps, est alors 2.6 fois plus petite que celle du signal d'excitation mesurée à environ 2 ns. Cette différence est attribuée à la non linéarité du processus d'émission. Le chapitre précédent a montré que la température électronique évoluait de façon non linéaire ($T_e = \sqrt{\alpha P}/k_B$) en fonction de la puissance électrique injectée (voir figure 3.14 (a)). La densité spectrale rayonnée par la jonction est exprimée par la loi de Planck. Une augmentation de T_e implique alors une croissance exponentielle de la densité spectrale rayonnée par la jonction. L'évolution de la quantité de photons devient ainsi non-linéaire par rapport à la puissance électrique injectée dans la jonction.

Les principales limites rencontrées dans cette étude sont dues à la source électrique et au système de mesure utilisé. La capacité des sources à moduler un signal électrique haute fréquence se propageant dans le circuit reste un problème majeur. Nous n'avons donc pas pu sonder la limite du système avec le type de signaux envoyés. Pour étudier plus en détails la réponse optique et ses limites, il est cependant possible de s'inspirer des expériences réalisées en fluorescence par comptage de photon unique corrélé dans le temps [178]. Cette technique utilise comme signal d'excitation un laser pulsé, dont le taux de répétition doit être assez faible pour laisser le temps au système de se désexciter. Les générateurs de pulse peuvent être considérés comme des sources équivalentes dans le domaine électrique, bien qu'avec des largeurs temporelles plus importante, pour les mêmes raisons exposées précédemment. Dans la partie suivante, la dynamique de la réponse lumineuse est étudiée par l'intermédiaire d'une excitation électrique pulsée.

5.2 Excitation pulsée

Comme nous venons de l'exprimer dans la partie précédente, le signal optique possède une forme différente de celle du signal électrique d'excitation. Une impulsion électrique est adressée aux bornes de la jonction pour étudier les propriétés de cette réponse. Le même montage optique que la partie précédente est utilisé. La source électrique est un générateur de pulses de la marque Agilent, modèle 81130A. Le signal d'excitation est aussi appliqué au corrélateur pour synchroniser la détection des photodiodes. La détection de chaque photodiode est cette fois-ci déclenchée

par le pulse électrique. Un seul photon est détecté par pulse et c'est le temps entre la détection du photon et le départ de la mesure qui est enregistré. Un histogramme est ensuite construit à partir de ces données. Le taux de répétition du signal est fixé à 50 MHz. Afin de se rapprocher au mieux de l'impédance d'une jonction tunnel, le signal électrique appliqué réellement à la jonction est mesurée à partir d'un oscilloscope dont l'impédance d'entrée est réglée à $1\text{ M}\Omega$.

La figure 5.5 représente la superposition de l'impulsion électrique et de la réponse optique de la jonction, sous la forme d'un histogramme. Les signaux étant similaires, l'histogramme ne représente que les données issues d'une seule photodiode, durant un temps d'intégration de 240s pour cette mesure. La consigne de l'amplitude électrique est fixée à 600 mV pour une largeur à mi-hauteur de 750 ps. Le rapport cycle du signal ξ est défini par $\xi = t_{pulse}/T$, avec t_{pulse} la largeur temporelle du pulse et T la période du signal associée au taux de répétition. Avec $T = 1/50\text{MHz}$ on trouve $\xi = (750 \times 10^{-12}) / (2 \times 10^{-8}) = 3.75\%$. Ce faible rapport cyclique permet de dissocier la réponse de la jonction à chaque impulsion excitatrice. De plus, aucune tension continue n'est appliquée entre chaque impulsion afin de laisser le système au repos.

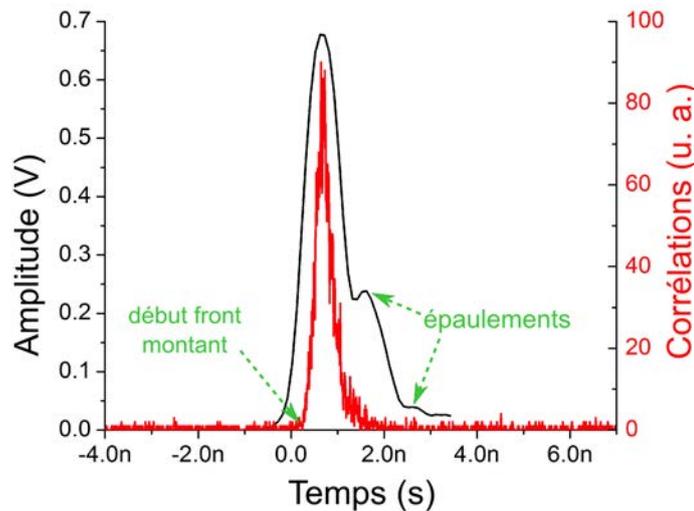


FIGURE 5.5 – Le graphique est une superposition du signal électrique excitateur et de la réponse optique de la jonction tunnel. Ces grandeurs sont représentées en fonction du temps, synchronisées par le corrélateur. Le temps d'intégration optique est de 240 s. La consigne de l'amplitude de l'impulsion électrique est à 600 mV pour 750 ps de largeur à mi-hauteur.

Tout comme pour les mesures de la partie précédente (excitation sinusoïdale), la réponse optique est plus étroite que l'impulsion électrique excitatrice. Le signal électrique réellement appliqué comporte des épaulements qui sont la signature de rebonds dus à une mauvaise adaptation d'impédance, pour les mêmes raisons que celles invoquées précédemment. Le signal optique est quant à lui plus étroit et ne

présente pas d'autres maxima. Les épaulements observés dans le signal d'excitation ne semblent donc pas avoir d'impact sur la réponse optique. L'absence d'épaulements dans le signal optique peut donc être expliquée par la non linéarité de la réponse lumineuse par rapport à l'excitation électrique. On remarque de plus que le début du front montant du signal optique, indiqué par un repère sur la figure 5.5, ne démarre pas au même instant que le front montant électrique. Cette observation laisse présumer aussi d'un effet de seuil, correspondant à l'apparition d'une réponse optique qu'à partir d'une certaine tension. L'absence de signal visible ($V < 500$ mV) dans les mesures de spectres effectuées en tension continue dans le chapitre précédent (figure 3.7) vont aussi dans ce sens. Le signal optique n'apparaît dans le fenêtrage spectral d'observation qu'à partir d'une certaine température électronique et donc d'une certaine tension d'après les relations établies ($T_e = \sqrt{\alpha IV}/k_B$). La température électronique atteinte par le système est indubitablement liée au signal d'excitation. Les principaux paramètres du signal d'excitation influençant la réponse optique sont l'amplitude et la forme du pulse (temps de croissance, temps de décroissance, largeur temporelle).

La source électrique offre la possibilité de faire varier l'amplitude du signal, ainsi que la largeur temporelle de celui-ci. Pour mieux comprendre l'impact de ces deux paramètres sur la réponse optique, nous avons scindé cette étude en deux parties. La première partie décrit la réponse du système soumis à une impulsion électrique de même largeur temporelle, mais d'amplitude électrique variable. La deuxième partie présente les mesures réalisées avec une consigne d'amplitude électrique constante, et avec des largeurs temporelles différentes à chaque mesure.

5.2.1 Variation de l'amplitude

Alors que la consigne amplitude est fixée à 600 mV, la figure 5.5 révèle une amplitude effective mesurée à l'aide de l'oscilloscope d'environ 680 mV. En plus de cela, la largeur à mi-hauteur mesurée est elle aussi différente de la consigne : 750 ps en consigne contre environ 923 ps mesurée. Cette mesure démontre qu'un étalonnage de la source électrique est nécessaire avant de commencer l'étude de la variation de l'amplitude du signal. Les résultats de l'étalonnage sont présentés par les figures 5.6 (a) et (b). Les mesures sont réalisées à partir d'un oscilloscope réglé sur une impédance d'entrée de $1\text{ M}\Omega$. La figure 5.6 (a) représente l'amplitude mesurée en fonction de l'amplitude sélectionnée en consigne. L'écart entre la mesure et la consigne suit une loi affine, illustrés par les pointillés noirs sur la figure. L'équation de cette droite montre que le signal évolue en $1.06 \times \text{consigne} + 41.7$ mV. La figure 5.6 (b) présente quant à elle les variations de la largeur à mi-hauteur du signal électrique en fonction de l'amplitude du signal électrique mesurée (figure 5.6 (a)). La largeur à mi-hauteur est quasi-constante avec une valeur moyenne de 917 ps. L'uniformité de la largeur à mi-hauteur permet de montrer qu'une variation de la

consigne en amplitude n'entraîne pas de variation de celle-ci. La fonction de réponse instrumentale du système, limitant temporellement la capacité de mesure du système est évaluée à environ 200 ps. Cette mesure est effectuée à partir de la mesure de la largeur à mi-hauteur d'un pulse laser envoyé sur le système de comptage de photon unique corrélé dans le temps [178].

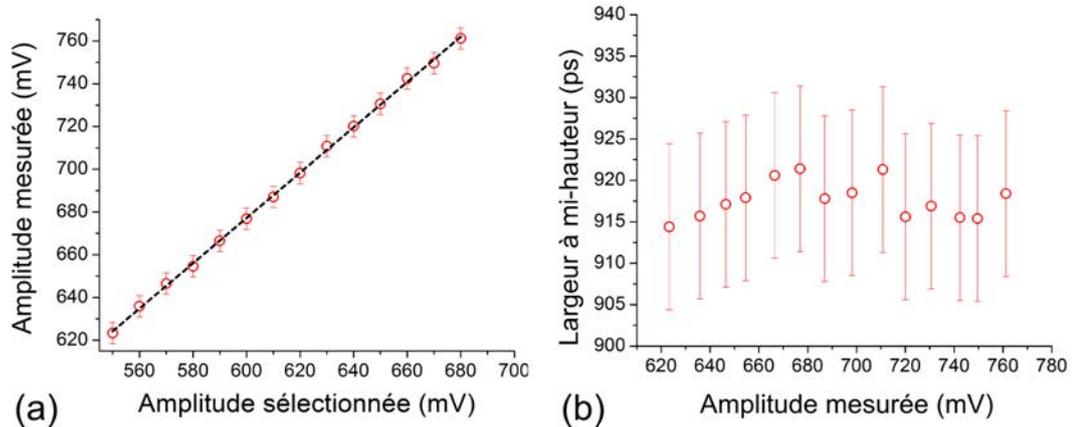


FIGURE 5.6 – La figure (a) représente l'amplitude du signal électrique mesurée en fonction de l'amplitude sélectionnée sur la source. L'impédance d'entrée de l'oscilloscope utilisé est réglée à $1\text{ M}\Omega$. Les points rouges correspondent aux mesures et la droite en pointillés noirs est une régression affine d'équation $1.06x + 41.7\text{ mV}$. La figure (b) illustre l'uniformité de la largeur à mi-hauteur de l'impulsion électrique en fonction de l'amplitude effective mesurée. La valeur moyenne est évaluée à 917 ps.

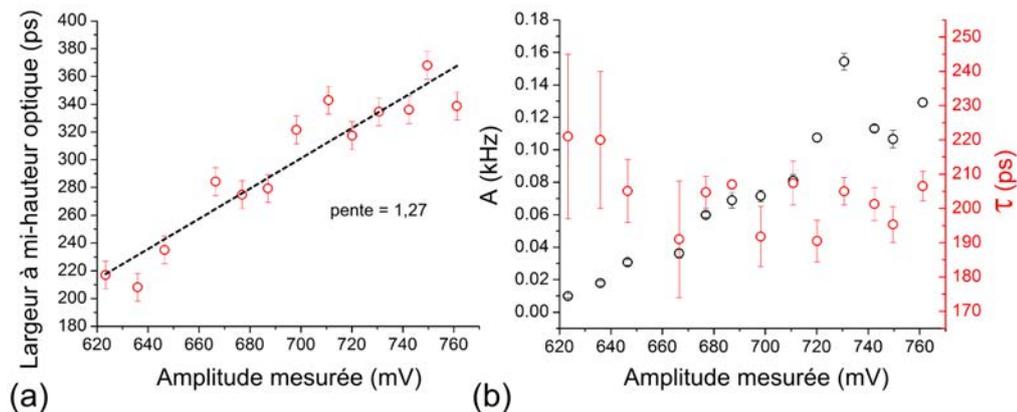


FIGURE 5.7 – Le graphique (a) représente l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la réponse optique en fonction de l'amplitude effective du signal d'excitation. Les mesures sont représentées par des points rouges. L'évolution est linéaire sur cette plage de tension. La droite pointillée est une régression affine dont le coefficient directeur vaut 1.27 ps.mV^{-1} . Le graphique (b) représente l'évolution de l'intensité lumineuse maximale A et le temps de décroissance τ en fonction de l'amplitude effective appliquée.

La réponse optique est maintenant étudiée à partir des paramètres corrigés par l'étalonnage. La figure 5.7 (a) présente l'évolution de la largeur à mi-hauteur du signal optique en fonction de l'amplitude réelle de l'impulsion excitatrice. Comme expliqué précédemment, la quantité de photons émis augmente de façon non linéaire par rapport à l'amplitude du signal (température électronique croissante). On s'attend donc à une évolution non linéaire des paramètres du signal optique. La figure 5.7 (a) montre cependant que la largeur à mi-hauteur du signal optique croît de façon linéaire sur cette plage de tension (fonction affine en pointillés noirs), avec des mesures qui s'étendent de 210 ps (limite de résolution) pour $V = 620$ mV, jusqu'à 370 ps pour $V = 760$ mV. Les faibles non-linéarités des caractéristiques IV mesurées pour ce type de jonction (voir figure 2.26) peuvent être à l'origine de cette variation quasi-linéaire de la réponse optique. Les mesures réalisées pour des amplitudes électriques plus faibles ne permettent pas d'identifier clairement le signal lumineux en raison du faible rapport signal sur bruit.

La figure 5.7 (b) est construite à partir de l'application d'un modèle mathématique de décroissance exponentielle sur le signal optique, décrit par $I_{lum} = A \exp(-t/\tau)$, avec τ la temps caractéristique associée et I_{lum} l'intensité lumineuse du signal. Ce modèle, largement utilisé dans les mesures de fluorescence [178], est appliqué sur une plage temporelle débutant au maximum d'intensité lumineuse enregistrée. Les paramètres extraits permettent ainsi d'exprimer l'intensité lumineuse maximale A , et le temps caractéristique τ . Ces grandeurs sont représentées en fonction de l'amplitude effective du signal électrique. L'intensité lumineuse maximale A , représentée en noire, évolue de façon quasi-linéaire en fonction de l'amplitude de l'impulsion électrique. Là encore, cette linéarité contre-intuitive de l'intensité lumineuse par rapport à la tension peut être attribuée à la faible non linéarité de la caractéristique I/V de la jonction. En effet, la faible étendue de la gamme de tensions sondées indique que le courant peut être considéré comme quasi-linéaire sur cette portion de la caractéristique I/V.

Le temps caractéristique τ apparaît en rouge sur la figure. Il semble constant sur la plage de mesures réalisées. La valeur moyenne de τ est évaluée à 203 ps. Les mesures indiquent que le temps caractéristique n'est pas dépendant de la puissance électrique injectée dans la jonction dans cette plage de mesures. Cependant la valeur moyenne est très proche de la fonction de réponse instrumentale du système (203 ps \approx 200 ps). Cette observation implique que τ pourrait être en réalité inférieur à 200 ps, mais que le système ne permet pas de le mesurer. Il est cependant possible d'évaluer l'ordre de grandeur que pourrait atteindre τ à partir d'autres mesures effectuées sur les relaxations de gaz d'électrons chauds. Une augmentation de l'amplitude de l'impulsion électrique entraîne aussi un accroissement de la température électronique maximale atteinte. Dans cet état de quasi-équilibre, τ peut être approximer par $\tau \approx \frac{C_e}{\alpha}$ [107]. C_e correspond à la capacité thermique électronique et

α représente la portion de puissance que les électrons à la température T_e transfèrent aux phonons à la température T_{ph} , de telle sorte que la puissance électrique absorbée Q s'écrit $Q = \alpha(T_e - T_{ph})$. On obtient alors $\tau \approx \frac{C_e(T_e - T_{ph})}{Q}$ [106, 180-182]. Cette relation permet d'anticiper une augmentation de τ avec l'élévation de la température électronique. Ainsi, sans la limitation de résolution imposée par la fonction de réponse instrumentale, le graphique 5.7 (b) devrait théoriquement montrer que τ est croissant en fonction de l'amplitude effective [182].

5.2.2 Variation de la largeur temporelle

L'objectif de cette partie est d'étudier l'impact de la largeur temporelle du signal d'excitation sur les propriétés de la réponse lumineuse. Un étalonnage du générateur d'impulsions électriques est effectué dans les mêmes conditions que la partie précédente. La figure 5.8 (a) présente les variations de la largeur à mi-hauteur effective sur signal d'excitation en fonction de la consigne de largeur temporelle choisie. La consigne de l'amplitude est fixée à 680 mV. La droite en pointillés noirs indique une dépendance affine de la largeur à mi-hauteur effective du signal par rapport à la consigne. La pente est égale à 1.13 avec un décalage en ordonné de 65.8 ps. La figure 5.8 (b) présente quant à elle l'amplitude effective du signal mesuré en fonction de la consigne de largeur temporelle. La figure montre une dépendance linéaire de l'amplitude, alors que la consigne de l'amplitude est fixée constante à 680 mV. Ce point met ainsi en évidence que la source utilisée n'a pas été en mesure de fournir des impulsions d'amplitude uniforme et de largeur à mi-hauteur différente.

Une étude de l'impact de la largeur à mi-hauteur du signal d'excitation est menée à partir des données de l'étalonnage. Les résultats de cette étude sont représentés par les figures 5.9 (a) et (b). Les mesures sont réalisées pour des largeurs à mi-hauteur effectives du signal d'excitation allant d'environ 920 ps à 1195 ps. La figure 5.9 (a) présente l'évolution de la largeur à mi-hauteur mesurée en fonction de la largeur à mi-hauteur effective de l'impulsion excitatrice. La tendance est linéaire. Ce résultat n'est pas évident au vu de l'étalonnage effectué. En effet, l'étalonnage a montré que l'augmentation de la consigne de largeur de l'impulsion entraîne à la fois l'élévation de la largeur de l'impulsion excitatrice et de l'amplitude électrique réelle. L'augmentation simultanée de ces deux paramètres devrait engendrer une élévation non linéaire de la largeur à mi-hauteur optique, ce qui n'est pas le cas. D'après les résultats de l'étude en amplitude de la partie précédente, on peut alors se demander si la largeur de l'impulsion électrique a réellement un impact sur la largeur de la réponse optique. Pour répondre à cette question, nous avons comparé l'évolution de la largeur à mi-hauteur optique de cette étude par rapport à celle mesurée pour l'étude en amplitude. Pour pouvoir les comparer, on représente dans la figure 5.10 la largeur à mi-hauteur optique de cette étude en fonction de l'amplitude électrique mesurée.

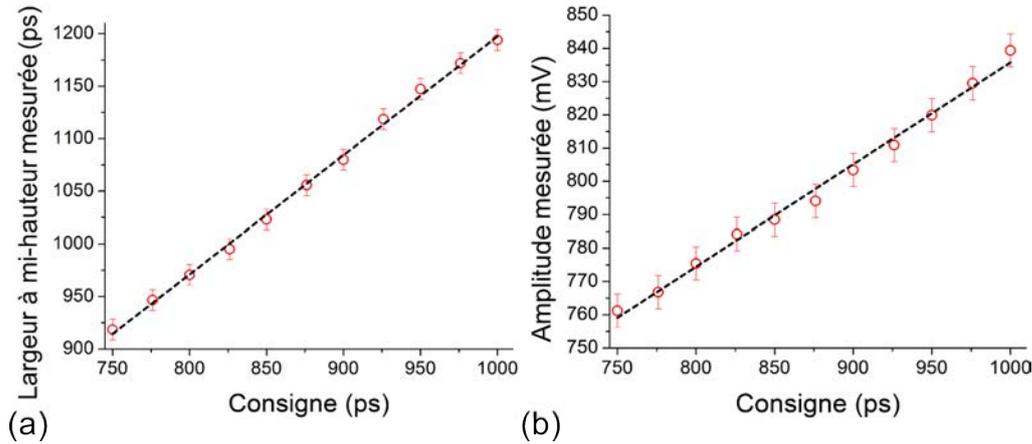


FIGURE 5.8 – La figure (a) représente la largeur à mi-hauteur du signal électrique mesurée en fonction de la largeur à mi-hauteur sélectionnée en consigne. L'impédance d'entrée de l'oscilloscope utilisée est réglée à $1\text{ M}\Omega$. Les mesures sont indiquées en points rouges. La droite en pointillés noirs est une régression linéaire d'équation $1.13x + 65.8\text{ ps}$. La figure (b) illustre l'évolution de l'amplitude électrique du signal en fonction de la largeur à mi-hauteur de la consigne. L'amplitude effective évolue linéairement alors que la consigne est fixé à 680 mV .

La figure 5.10 et la figure 5.7 (a) décrivent toutes les deux une évolution linéaire de la largeur à mi-hauteur mesurée, mais avec un coefficient directeur différent. La pente de la figure 5.10 est supérieure à celle de la figure 5.7 (a) ($2.31 > 1.27$). Cette différence montre que la largeur de l'impulsion électrique a bien une influence sur la largeur temporelle du signal optique, puisque la pente est plus élevée lorsque ce facteur augmente lui aussi avec l'amplitude électrique. Les gammes de tensions, et donc de températures électroniques étudiées, sont probablement trop étroites pour pouvoir mettre en évidence les non-linéarités attendues de la réponse optique.

La figure 5.9 (b) représente l'évolution des paramètres A et τ issus de l'application du modèle de décroissance exponentielle. Comme dans l'étude précédente, l'intensité lumineuse maximale A croît de façon linéaire. La dernière mesure diffère de cette tendance car la jonction a changé de caractéristique durant la mesure. Contrairement à l'étude de la partie 5.2.1 (mesures de τ constantes), τ évolue ici de façon linéaire, comme ce qui est attendu d'après d'autres travaux [106, 180-182]. Les mesures temporelles étant limitées par la fonction de réponse instrumentale, τ est évalué comme étant inférieur à la résolution du système. L'évolution conjointe de la largeur à mi-hauteur et de l'amplitude effective du signal d'excitation implique probablement une élévation en température électronique plus importante que dans l'étude précédente. C'est pourquoi la figure 5.9 (b) révèle la croissance annoncée du paramètre τ avec des mesures légèrement supérieures à 200 ps . Les valeurs extraites de τ ($> 200\text{ ps}$), dans le cas d'une désexcitation radiative d'un bain d'électrons chauds, restent cependant surestimées au vu des résultats obtenus dans d'autres travaux [106, 180, 182]. Dans leur article [182], Demichel *et. al* mesurent des valeurs de

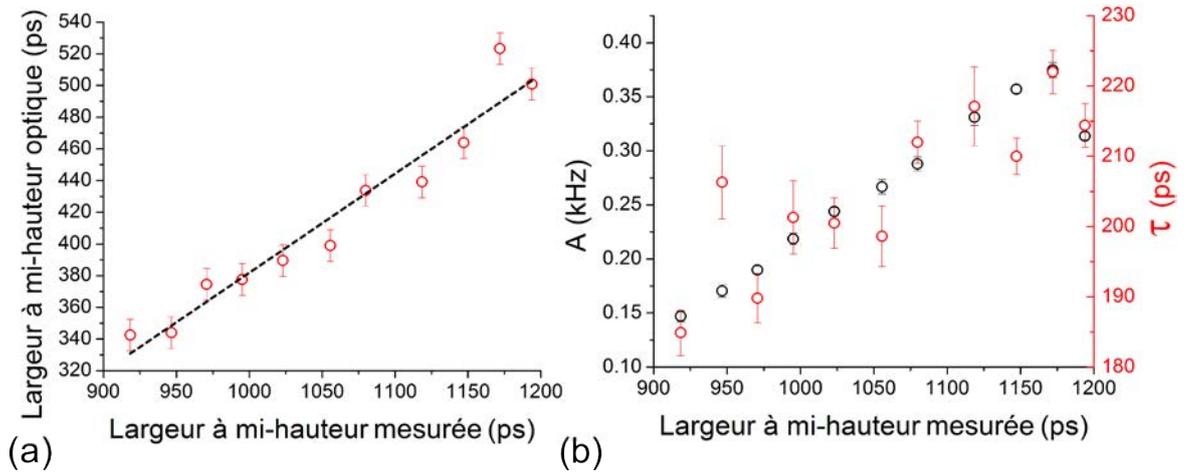


FIGURE 5.9 – Le graphique (a) représente l'évolution de la largeur à mi-hauteur du signal lumineux émis par la jonction en fonction de la largeur à mi-hauteur de l'impulsion excitatrice. Les mesures sont représentées par des points rouges. La droite pointillée est une régression linéaire d'équation $0.63x - 248$ ps. Le graphique (b) présente les variations de l'intensité lumineuse maximale A et le temps de décroissance τ en fonction de la largeur à mi-hauteur effective. A évolue linéairement comme dans l'étude précédente. En revanche, τ semble croître linéairement lui aussi en fonction de la largeur à mi-hauteur effective.

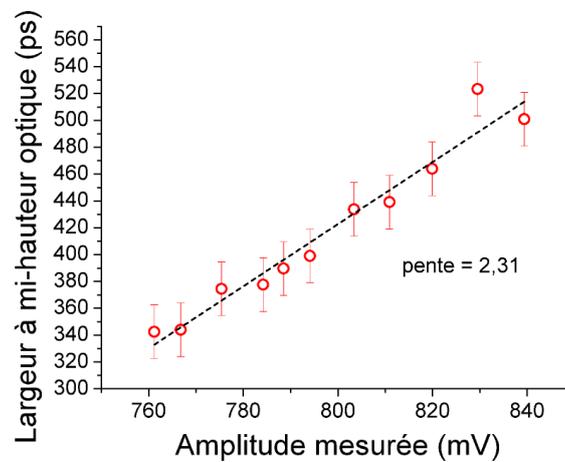


FIGURE 5.10 – La figure représente la largeur à mi-hauteur du signal optique en fonction de l'amplitude électrique mesurée. La droite en pointillée indique une régression affine, dont la valeur de la pente est de 2.31 ps.mV^{-1} .

thermalisation des électrons τ' atteignant jusqu'à 2.5 ps pour une température électronique de $T_e = 1500$ °K. L'évolution du paramètre τ dans la figure 5.9 (b) est donc discutable au vu de ces grandeurs. De plus, la largeur temporelle du signal d'excitation électrique est supérieure à la réponse optique (voir figure 5.5). Contrairement aux mesures pompe-sonde avec des impulsions lasers femtosecondes, la méthode employée ici ne permet pas de sonder temporellement des dynamiques aux mêmes

ordres de grandeurs que celles des travaux cités [106, 180, 182].

L'étude de variation temporelle et de variation en amplitude du signal électrique a permis de montrer que malgré les non-linéarités attendues, la largeur à mi-hauteur du signal optique et son amplitude évoluent de façon linéaire. Cette linéarité permet de concevoir un contrôle simplifié des paramètres de la réponse optique, dans la gamme de température étudiée. Cette étude a aussi mis en évidence que la source optique pouvait être modulée à au moins $1/5\tau = 1/5 \times 200 \text{ ps} = 1 \text{ GHz}$. Les limites induites par le système de détection (IRF) et par la capacité de la source à moduler un signal électrique à des fréquences supérieures laissent présumer que les sources optiques développées peuvent atteindre des fréquences supérieures. Le temps de vie des électrons dépend de la température électronique, il serait alors avantageux de travailler à des températures électroniques plus faibles, mais suffisamment élevées pour émettre un signal mesurable dans la gamme spectrale étudiée (visible et proche infra-rouge).

5.3 Limite de modulation

La limite réelle de modulation des jonctions dépend principalement de trois paramètres : le temps de vol des électrons à travers la barrière tunnel, le temps de relaxation des électrons chauds et la fréquence de coupure du circuit RC correspondant à la jonction tunnel. Le temps de vol d'un électron représente le temps moyen nécessaire pour que cet électron transite à travers la barrière tunnel. Il indique ainsi une limite dans le fait qu'un électron doit avoir transité complètement à travers la barrière. Ce temps dépend des grandeurs physiques telles que les caractéristiques de la barrière et les niveaux d'énergies considérés. Différentes études sur le temps de ionisation d'un atome ont cependant permis d'évaluer le temps de vol τ_{vol} à environ 10^{-16} s [183, 184], ce qui correspond à une fréquence limite $f_{c_{e^-}} \approx 1/\tau_{vol} \approx 10^{16} \text{ Hz}$. Le temps de relaxation des électrons chauds dans un matériau donné dépend principalement de la température électronique et de la taille du système. D'autres auteurs ont démontré des temps de thermalisation des électrons chauds τ' de l'ordre de la picoseconde dans l'Au, ce qui donne comme fréquence limite $f_{c_{hote^-}} = 1/\tau' = 1 \text{ THz}$. La dernière limite envisagée est caractérisée par la fréquence de coupure du circuit. Le circuit électrique, dont la jonction tunnel fait partie, peut être modélisé par le circuit de la figure 5.11 [41]. La jonction tunnel est ici représentée par la capacité C_T et la résistance R_T mises en parallèle. La résistance du reste du circuit, placée en série, correspond à $R_C = 50 \Omega$. À partir de ce modèle, une représentation de la fonction de transfert de ce circuit dans le plan complexe peut s'écrire :

$$\frac{V_s}{V_e} = \frac{1}{\frac{R_C}{R_T} + jR_C C_T \omega} \quad (5.1)$$

Puisque dans le cas présent $R_T \gg R_C$, on obtient alors à haute fréquence une constante de temps $\tau_{RC} = R_C C_T$. La fréquence de coupure f_c s'écrit alors $f_{c_{RC}} = \frac{1}{2\pi R_C C_T}$. Dans le cadre des jonctions tunnels étudiées, une approximation de C_T peut être donnée par l'expression :

$$C_T = \epsilon \epsilon_0 \frac{A_{eff}}{d} \quad (5.2)$$

avec ϵ la permittivité du milieu, $\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}$ F.m⁻¹ la permittivité du vide, A_{eff} l'aire effective d'injection de la puissance électrique et d la largeur de l'interstice tunnel. Des ordres de grandeurs des paramètres A_{eff} et d ont été évalués dans le chapitre 2. Au vu de l'incertitude sur la valeur de A_{eff} , deux valeurs limites peuvent être choisies pour calculer $f_{c_{RC}}$: $A_{eff} \approx 10^{-1}$ nm² et $A_{eff} \approx 10^4$ nm². En prenant $d \approx 3.9$ Å et $\epsilon = 1.0006$ pour l'air, on trouve $f_{c_{RC}} \approx 2.9 \times 10^{18}$ Hz et $f_{c_{RC}} \approx 1.4 \times 10^{13}$ Hz. La limite inférieure de la fréquence de coupure du circuit restreint la modulation du signal aux environs des 14 THz. Parmi les 3 limites à la fréquence de modulation discutée, c'est le temps de relaxation des électrons chauds (τ') qui semblent être le principal phénomène limitant. En effet, les valeurs du temps caractéristique τ' rapportées dans d'autres travaux [106, 180, 182] semblent apporter une limite plus significative à la modulation du signal, avec $f_{c_{note-}} = 1/\tau' \approx 1$ THz.

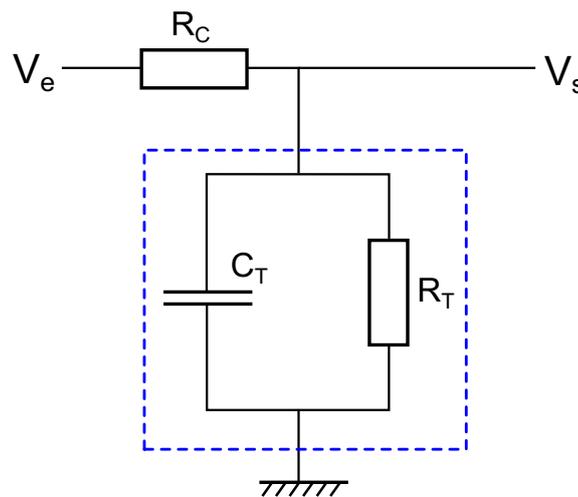


FIGURE 5.11 – La figure représente le schéma électrique équivalent du circuit. Le cadre bleu indique la position de la jonction tunnel dans le circuit. Elle est modélisée par la résistance R_T et la capacité C_T associée en parallèle. La résistance $R_C = 50 \Omega$ correspond à la résistance du reste du circuit.

Un article récent de Dasgupta *et al.* démontre expérimentalement la mesure de courants électriques rectifiés optiquement [185] par le biais de jonctions tunnels identiques aux nôtres. Le laser utilisé provoque une oscillation de la barrière tunnel aux fréquences optiques, permettant le passage d'un courant oscillant à la même fréquence. L'origine physique de ce courant démontre ainsi que ce type de jonction admet des fluctuations de courant au moins jusqu'aux fréquences optiques utilisées, c'est à dire aux alentours des 300 THz. Il semblerait donc que les jonctions tunnels émettrices utilisées dans cette étude aient une limite réelle ne dépendant uniquement que de la fréquence optique émise. Bien que limité par le temps de réponse du système, les résultats ont démontré la possibilité d'atteindre en théorie des fréquences de modulation bien supérieures à celles atteintes par les technologies semi-conducteurs. Grâce à l'emploi de métaux comme l'Au, le temps de vie des électrons est ici réduit de façon significative.

Chapitre 6

Conclusion et perspectives

Cette thèse avait pour objectif principal le développement d'une antenne optique pilotée électriquement capable de générer des photons aux fréquences optiques. Le passage d'un flux d'électrons par effet tunnel à travers une barrière de potentiel étant le mode d'émission lumineuse envisagé. Cette structure émettrice fait partie intégrante d'un dispositif capable d'assurer la génération et la réception d'un signal lumineux à l'échelle nanométrique, à l'image de la technologie de transmission sans fil wifi. Nous avons donc choisi dans un premier temps de développer la fabrication du point d'alimentation de l'antenne, dont le défi majeur résidait dans la réalisation d'interstice de l'ordre du nanomètre, capable d'accueillir des courants tunnels mesurables expérimentalement. Grâce à un protocole de fabrication divisé en plusieurs étapes, nous avons pu démontrer que l'électromigration contrôlée de nanofil d'Or permet de réaliser des jonctions tunnels de conductance s'étendant de G_0 à $10^5 \times G_0$. Les propriétés physiques de ces jonctions ont été évaluées à l'aide d'un modèle du courant tunnel adapté du modèle de Simmons. Conjointement à ce travail, une analyse sur la représentation de Fowler-Nordheim nous a permis de démontrer que la tension de transition en régime tunnel ne dépendait pas essentiellement des potentiels d'extraction Φ de la barrière, mais aussi de la longueur d de celle-ci ($V_T \propto \sqrt{\Phi/d}$).

Les caractéristiques de l'émission lumineuse des différentes jonctions tunnels ont été sondées par le biais de plusieurs techniques de mesures optiques. L'analyse des spectres d'émission en fonction des puissances électriques injectées a permis de montrer que l'activité lumineuse des jonctions de dimensions sub-nanométriques (de conductance proche de G_0) ne pouvait être décrite par un processus d'émission par effet tunnel inélastique. La violation de la limite quantique sur plusieurs eV a ainsi été expliquée par le biais d'une théorie s'appuyant sur la relaxation radiative d'un bain d'électrons chauds, ayant tunnelés de façon élastique à travers la jonction tunnel. L'analyse des spectres a été menée à partir d'une adaptation du modèle de Planck, similaire dans la gamme de fréquence étudiée, à un bremsstrahlung thermique des électrons chauds du système. Grâce à des dimensions restreintes limitant les transferts non radiatifs électrons-phonons, nous avons pu démontrer que la température électronique atteinte par un tel système avoisinait plusieurs milliers de

degrés Kelvin, dans un volume dont la longueur caractéristique a été évaluée à une trentaine de nanomètre. Contrairement aux sources lambertienne à dynamique thermique, la géométrie intrinsèque à la constitution de l'antenne offre une directivité de l'émission monolobe ou bilobe, selon la position de la jonction par rapport aux électrodes. L'efficacité de cette directivité est du même ordre que celles de structures additionnelles plus encombrantes telles que les antennes Yagi-Uda ou log-périodiques. Les rendements quantiques du processus d'émission ont été mesurés jusqu'à 10^{-10} , ce qui reste assez faible par rapport à ceux mesurés dans d'autres travaux [72, 94, 100, 101]. Grâce à une comparaison au modèle développée par Chen *et al.*, nous avons évalués que seulement 2 à 5% de la puissance électrique traversant la jonction contribuait au phénomène d'émission. L'augmentation de ce paramètre et la prise en compte de toute la gamme spectrale irradiée par la source devrait permettre d'atteindre des rendements quantiques plus élevés. La puissance irradiée par unité de surface de la source développée est comparable à celle d'une ampoule à filament classique de taille macroscopique.

La maîtrise du processus d'électromigration nous a permis d'investir les propriétés radiatives des constriction métalliques, durant les derniers instants avant la rupture du nanofil, c'est-à-dire en régime de conduction balistique. Cette émission ne peut être interprétée par l'effet tunnel inélastique en raison de la violation de la limite quantique ($eV < h\nu$), et du caractère balistique du régime de conduction. En se plaçant dans un contexte général décrivant les interactions d'un système en équilibre local avec la barrière de potentiel des parois (bremsstrahlung), nos collègues russes ont développé un modèle à deux températures. Avec les mesures réalisées, nous avons démontré que les effets non linéaires tels que la dissipation par collisions des électrons avec les parois de région après la constriction pouvaient eux aussi mener à une émission lumineuse dans le visible, ici décrite par un bremsstrahlung thermique des électrons chauds. La loi de Planck, utilisée dans le chapitre précédent, est alors une limite du bremsstrahlung thermique, en considérant un plasma d'électrons dense et une profondeur de peau fine. Les difficultés pour contrôler l'ouverture et la fermeture des canaux quantiques de conduction ne nous ont pas permis pour le moment d'utiliser ce type de source optique pour notre système. Les rendements théoriques attendus montrent cependant que lorsque l'ouverture et la fermeture des canaux seront maîtrisées, cette source optique pourrait se révéler très intéressante.

La capacité de l'antenne à moduler le signal optique est un paramètre essentiel pour le codage de l'information. L'étude de la réponse en fréquence de la jonction nous a permis de montrer qu'il était possible de moduler le signal optique. Une étude en excitation sinusoïdale radio-fréquence a montré que le signal optique était modulé à une fréquence double par rapport au signal électrique d'excitation. C'est la symétrie des propriétés de conduction de la jonction qui est responsable de ce phénomène. Une étude de la réponse en excitation pulsée a permis de mettre en

évidence que contrairement aux prédictions, le signal lumineux évoluait de façon linéaire par rapport à l'amplitude et à la largeur du signal électrique. Les limites du système de mesure et d'excitation ont fait obstacle à la possibilité de mesurer précisément le temps de relaxation du bain d'électrons chauds. Ce temps, dépendant du volume émetteur et de la température électronique était cependant inférieur à 200 ps (limite de détection temporelle).

Cette thèse démontre que la technologie développée permet de coupler l'antenne optique émettrice à d'autres dispositifs. Notre équipe est parvenue à montrer dans un article de Cazier [186] que ce type de source pouvait être intégrée sur un guide plasmonique à base de silicium, utilisé dans le transfert d'information intra-puce. La partie réception du dispositif a été réalisée à partir de la même structure que celle développée dans cette étude. Mennemanteuil [187] et Dasgupta [185] ont démontré que la conversion photon-électron était réalisable à partir de la rectification optique des jonctions tunnels développées. En contournant les effets thermiques dus à l'irradiation de la jonction par un laser, les auteurs ont prouvé que le courant électrique qui en résulte oscille localement à la fréquence des photons incidents. Ce point montre alors la capacité de la jonction à opérer aux fréquences du domaine du térahertz.

Tout au long de cette thèse, le phénomène d'émission a été interprété comme issu de la thermalisation radiative d'un bain d'électrons chauds, localisé dans un volume restreint ($\approx 1000 \text{ nm}^2$) sur l'électrode d'accueil. La gamme spectrale de l'étude démontrent cependant que le modèle de Planck et le bremsstrahlung des électrons chauds du système ne peuvent être distingués l'un de l'autre. D'autres travaux démontrent que le franchissement de la limite quantique dans les spectres de jonctions tunnels peut aussi être interprété à partir de processus multi-électrons [100, 101, 188]. Même si nos mesures ne démontrent pas de signature de processus multi-électrons [100], il serait intéressant de prouver le caractère thermique de l'émission par une autre méthode de mesure.

Les sources à dynamique thermique se distinguent d'autres sources classiques (telles que les lasers) par la statistique d'émission des photons et les corrélations existantes entre eux. La mesure de la fonction de corrélation de second ordre permet de mettre en évidence ces corrélations par le biais d'un système de comptage de photon unique corrélé dans le temps. Le caractère thermique de l'émission est démontré par la présence d'un épaulement aux délais de corrélation courts, signature d'une émission de photons groupés (valeur > 1). L'utilisation de cette technique de mesure pourrait ainsi valider d'une autre façon l'interprétation du processus d'émission.

Plusieurs pistes sont envisagées pour améliorer le rendement quantique d'émission de cette source. La première piste consiste à apporter une résonance électronique dans le système. Uskov *et al.* ont démontré théoriquement dans leur publication que l'apport d'un puits quantique à deux dimensions au sein d'une jonction tunnel permettrait d'atteindre un rendement d'émission $> 10\%$ [189]. L'augmentation de la probabilité du transit inélastique et radiatif d'un électron est possible grâce à l'ajout d'un milieu intermédiaire (puits quantique à deux dimensions). Le temps de transit d'un électron à travers la jonction est allongé et sa probabilité d'exciter un plasmon de surface radiatif devient ainsi plus importante.

Du point de vue de la structure de l'antenne, les mesures ont démontré l'absence de résonances significatives dans la gamme spectrale étudiée. Afin d'augmenter la quantité de lumière émise et de contrôler le spectre d'émission, il serait intéressant de travailler sur l'environnement électromagnétique de la source lumineuse en y apportant une résonance physique plus marquée. Le couplage des jonctions tunnels radiatives avec des structures optiques résonantes a permis de montrer que le rendement quantique pouvait être considérablement augmenté [41, 94]. Le challenge principal réside sur la réalisation d'électrode macroscopique de longueurs plus petites, de géométries définies, et dont les connexions électriques interfèrent au minimum avec les modes de résonances optiques. C'est ce que Kern *et al.* ont démontré dans leur article, en augmentant de deux ordres de grandeurs le rendement quantique de leur système [94].

Une autre piste d'amélioration concerne la stabilité du système. Le contrôle de l'environnement des jonctions tunnels permettrait d'éviter une contamination extérieure, puisque le système est utilisé en atmosphère ambiante. Le dépôt d'une couche de matériau isolant après électromigration pourrait encapsuler la jonction et préserver son état plus longtemps. Une telle opération est envisageable par dépôt de couches minces atomiques d'alumine. La diminution de la mobilité des atomes est aussi une piste à explorer. L'utilisation d'un matériau moins diffusif que l'Au ou une diminution de la température ambiante pourrait permettre d'améliorer ainsi la stabilité du système.

L'application d'une différence de potentiel aux bornes de la jonction entraîne la circulation d'un courant tunnel, mais apporte dans le même temps une instabilité croissante avec l'augmentation du champ électrique au sein de la jonction. La réalisation de jonctions tunnels bi-métallique offrirait aussi une option intéressante [190]. La présence de deux métaux de nature différente entrainerait une différence d'énergie entre les niveaux de Fermi des deux électrodes. La fonction de transfert des électrons n'est alors plus la même selon le sens de circulation des électrons. L'accentuation de la non-linéarité de la caractéristique $I(V)$ dans le sens de circulation préférentiel des électrons permettrait d'augmenter davantage la quantité d'électrons transitant à travers la barrière et contribuant à l'élévation de la température du bain d'électrons.

Enfin, les antennes optiques tunnels peuvent être employées lorsque le système impose un faible encombrement. Elles permettent aussi de s'insérer dans des dispositifs isolés, où l'antenne ne peut pas être alimentée par une source lumineuse extérieure (exemple : lasers, points quantiques ou molécules alimentés par un laser). Les antennes optiques tunnels développées dans cette thèse, couplées à leurs homologues réceptrices [185], présentent un nouveau concept de communication à l'échelle nanométrique. La liaison établie entre ces deux antennes ouvre la voie à un transfert d'information ultra-rapide, couplant optique et électronique. Ce couplage entre antenne optique tunnel émettrice et antenne optique tunnel réceptrice pourrait constituer un nouveau paradigme, permettant de répondre aux contraintes d'interface entre électrons et photons à l'échelle du nanomètre.

Table des figures

1.1	Dessin montrant le concept de la communication optique sans fil avec l'antenne optique multifonctionnelle	3
1.2	Schémas illustrant l'effet tunnel et le principe d'émission par effet tunnel inélastique	4
2.1	2 différentes géométries de nanofils	8
2.2	Représentations schématiques des connexions électriques et de l'emplacement des nanofils sur le substrat de verre	9
2.3	Comparaison de deux profils de lithographie différents	10
2.4	Protocole de lithographie par faisceau d'électrons et dépôts métalliques	11
2.5	Représentation schématique du motif lithographié par faisceau d'électrons avec une image optique du motif métallique en fin de lithographie	12
2.6	Image optique du masque métallique de photolithographie par ultraviolet avec une image optique d'un échantillon terminé	13
2.7	Photographie d'un échantillon et de la connexion à la carte électronique	14
2.8	Schéma illustrant les forces intervenant dans le phénomène d'électromigration	15
2.9	Image MEB d'un nanofil électromigré de façon non contrôlée et de la rampe de courant/tension correspondante	17
2.10	Évolution du courant et de la conductance en fonction de la tension . .	19
2.11	Principe de la mesure de la conductance dynamique et représentation schématique de la partie électrique du montage expérimental	20
2.12	Graphique représentant l'évolution de la conductance mesurée après chaque rampe de tension appliquée, et une image MEB d'un nanofil électromigré avec la technique de rampe de tension successive	22
2.13	Image MEB de jonctions électromigrées en rampe de tension	23
2.14	Graphiques représentant l'évolution de la conductance et de la tension continue appliquée en fonction du temps.	25
2.15	Graphique représentant l'évolution de la conductance en fonction du taux d'humidité.	27
2.16	Image MEB de la répartition inhomogène de joints de grains sur un nanofil électromigré	28
2.17	Évolution de la morphologie des nanofils durant l'électromigration . .	31
2.18	Ajout d'une structure d'antenne optique de type Yagi-Uda	32
2.19	Images MEB de nanofils électromigrés en tension continue	34

2.20	Mesure de la stabilité des jonctions dans le temps	35
2.21	Schémas et mesures illustrant les régimes de transport diffusif et balistique.	36
2.22	Dessin schématique de la jonction tunnel et de la description quantique de la barrière de potentiel	38
2.23	Caractéristique $I(V)$ et mesure de la conductance à $V_{DC} \approx 0$ par régression linéaire	39
2.24	Caractéristique courant/tension destructive et non destructive	40
2.25	Répartition des mesures de conductance tunnels obtenues sur un même échantillon	43
2.26	Caractéristiques $I(V)$ quasi-symétriques et détermination des paramètres de la jonction par ajustement numérique	46
2.27	Caractéristiques $I(V)$ asymétriques et détermination des paramètres des jonctions par ajustement numérique	47
2.28	Caractéristique $I(V)$ et représentation de Fowler-Nordheim	50
2.29	Comparaison des mesures de la tension de transition avec l'expression analytique de $V_{T_{calc}}$ et avec la représentation de ΔV_T en fonction de $\Delta\Phi$	52
3.1	Représentation schématique de la partie optique du dispositif expérimental	56
3.2	Figures représentant les différentes efficacité quantiques des capteurs utilisées et la courbe de calibration des spectres mesurés.	57
3.3	Premières images optiques d'émissions lumineuses provenant des nanofils d' Au électromigrés	59
3.4	Profil d'émission lumineuse des jonctions tunnels.	59
3.5	Graphiques représentant différents spectres d'émission, en fonction de la tension appliquée	61
3.6	Effet tunnel inélastique et statistique de Fermi-Dirac à 293 °K	62
3.7	Spectres d'une jonction tunnel de conductance proche de G_0 et énergies maximales d'émission	64
3.8	Étapes du processus de relaxation des électrons après la traversé d'une barrière de potentiel	66
3.9	Parcours des électrons et collisions avec les parois de la structure	68
3.10	Représentation schématique du problème de dissipation de la puissance électrique injectée par l'intermédiaire du courant tunnel	68
3.11	Rayonnement électromagnétique d'un corps noir	72
3.12	Mesure de la valeur moyenne du courant durant chaque acquisition spectrale	74
3.13	Représentation des spectres en fonction de la tension et évolution de l'intensité lumineuse à une énergie donnée en fonction de la puissance électrique	74

3.14	Évolution de la température électronique en fonction de la puissance électrique	75
3.15	Signature d'une résonance plasmonique dans le spectre d'émission et ajustement du modèle de Planck	81
3.16	Dépendance du spectre en fonction de la polarisation de l'émission	84
3.17	Profil d'émission d'une jonction tunnel à géométrie symétrique	86
3.18	Image MEB d'une jonction à géométrie asymétrique	87
3.19	Profil d'émission d'une jonction tunnel à géométrie asymétrique	88
3.20	Evolution du rendement quantique en fonction du nombre d'électrons	90
3.21	Rayonnement électromagnétique d'un corps noir	90
4.1	Dispositif optique de mesure de l'émission lumineuse en régime balistique	95
4.2	Mesures de l'activité lumineuse en polarisation croisée	95
4.3	Concaténation des intensités lumineuses enregistrés sur 9 électromigrations différentes en fonction de la conductance	97
4.4	Représentation schématique du problème de dissipation de la puissance électrique ayant traversée une constriction à N canaux de conduction.	98
4.5	Évolution du maximum de température électronique en fonction du nombre de canaux quantiques ouverts	102
4.6	Taux d'émission du bremsstrahlung thermique des électrons chauds de la région d'interconnexion en fonction du nombre de canaux quantiques ouverts	108
4.7	Intensité lumineuse en fonction de la puissance électrique dissipée par la constriction	109
5.1	Schéma de l'excitation électrique radio-fréquence	114
5.2	Étude de l'émission lumineuse en fonction de la fréquence électrique d'excitation	116
5.3	Schéma optique du montage radio-fréquence	118
5.4	Histogramme des mesures d'intensités lumineuses avec excitation électrique radiofréquence	120
5.5	Superposition d'une impulsion électrique et de la réponse optique de la jonction	122
5.6	Calibration en amplitude de la source électrique pulsée	124
5.7	Étude de la réponse optique en fonction de l'amplitude effective de l'impulsion d'excitation	124
5.8	Calibration temporelle de la source électrique pulsée	127
5.9	Étude de la réponse optique en fonction de la largeur à mi-hauteur effective de l'impulsion d'excitation	128
5.10	Représentation de la largeur à mi-hauteur optique en fonction de l'amplitude électrique mesurée durant l'étude temporelle	128

5.11 Schéma électrique équivalent du circuit 130

Liste des tableaux

2.1	Tableau comparatif de la mesure de $G _{V_{DC}=0V}$ et de $G_{AC} _{V_{DC}=0V}$ d'une jonction de forte conductance, pour différents gains d'amplification du courant.	42
2.2	Tableau comparatif de la mesure de $G _{V_{DC}=0V}$ et de $G_{AC} _{V_{DC}=0V}$ d'une jonction de faible conductance, pour différents gains d'amplification du courant.	42
3.1	Tableau comparatif des différents paramètres β présents dans la littérature.	77

Bibliographie

- [1] R. P. FEYNMAN. « Feynman and Computation ». In : sous la dir. d'Anthony J. G. HEY. 1999. Chap. There's plenty of room at the bottom, p. 63-76. ISBN : 0-7382-0057-3.
- [2] D. A. B. MILLER. « Rationale and challenges for optical interconnects to electronic chips ». In : *Proceedings of the IEEE* 88.6 (2000), p. 728-749. DOI : 10 . 1109/5.867687.
- [3] S. RUMLEY et al. « Silicon photonics for exascale systems ». In : *Journal of Lightwave Technology* 33.3 (2015), p. 547-562. DOI : 10 . 1109 / JLT . 2014 . 2363947.
- [4] C. L. SCHOW et al. « A single-chip CMOS-based parallel optical transceiver capable of 240-Gb/s bidirectional data rates ». In : *Journal of Lightwave Technology* 27.7 (2009), p. 915-929. DOI : 10 . 1109 / JLT . 2008 . 927759.
- [5] Y. VLASOV, W. M. J. GREEN et F. XIA. « High-throughput silicon nanophotonic wavelength-insensitive switch for on-chip optical networks ». In : *Nature Photonics* 2 (2008), 242 EP -. DOI : 10 . 1038 / nphoton . 2008 . 31.
- [6] J. E. BOWERS et al. « Hybrid silicon lasers : The final frontier to integrated computing ». In : *Optics and Photonics News* 21.5 (2010), p. 28-33. DOI : 10 . 1364 / OPN . 21 . 5 . 000028.
- [7] G. ROELKENS et al. « III-V/silicon photonics for on-chip and intra-chip optical interconnects ». In : *Laser & Photonics Reviews* 4.6 (2010), p. 751-779. DOI : 10 . 1002 / lpor . 200900033.
- [8] A. H. ATABAKI et al. « Integrating photonics with silicon nanoelectronics for the next generation of systems on a chip ». In : *Nature* 556.7701 (2018), p. 349-354. DOI : 10 . 1038 / s41586 - 018 - 0028 - z.
- [9] S. I. BOZHEVOLNYI et al. « Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators ». In : *Nature* 440 (2006), 508 EP -. DOI : 10 . 1038 / nature04594.
- [10] J. A. DIONNE et al. « Plasmon slot waveguides : Towards chip-scale propagation with subwavelength-scale localization ». In : *Phys. Rev. B* 73 (3 2006), p. 035407. DOI : 10 . 1103 / PhysRevB . 73 . 035407.
- [11] H. WEI et al. « Cascaded logic gates in nanophotonic plasmon networks ». In : *Nature Communications* 2 (2011), 387 EP -. DOI : 10 . 1038 / ncomms1388.

- [12] L. NOVOTNY et B. HECHT. *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, 2006. DOI : 10.1017/CBO9780511813535.
- [13] P. BHARADWAJ, B. DEUTSCH et L. NOVOTNY. « Optical Antennas ». In : *Adv. Opt. Photon.* 1.3 (2009), p. 438-483. DOI : 10.1364/AOP.1.000438.
- [14] A. G. CURTO et al. « Unidirectional emission of a quantum dot coupled to a nanoantenna ». In : *Science* 329.5994 (2010), p. 930-933. DOI : 10.1126/science.1191922.
- [15] P. BIAGIONI, J.-S. HUANG et B. HECHT. « Nanoantennas for visible and infrared radiation ». In : *Reports on Progress in Physics* 75.2 (2012), p. 024402. DOI : 10.1088/0034-4885/75/2/024402.
- [16] L. NOVOTNY et N. van HULST. « Antennas for light ». In : *Nature Photonics* 5 (2011), 83 EP -. DOI : 10.1038/nphoton.2010.237.
- [17] M. RAZAVY. *Quantum theory of tunneling*. World Scientific, 2003. DOI : 10.1142/4984.
- [18] T. CUFF. « The STM (Scanning Tunneling Microscope) : The forgotten contribution of Robert Francis Earhart to the discovery of quantum tunneling ». In : *ResearchGate* (2016). DOI : 10.13140/RG.2.1.2987.7527.
- [19] J. LAMBE et S. L. MCCARTHY. « Light emission from inelastic electron tunneling ». In : *Phys. Rev. Lett.* 37 (14 1976), p. 923-925. DOI : 10.1103/PhysRevLett.37.923.
- [20] T. W. HICKMOTT. « Electron emission, electroluminescence, and voltage-controlled negative resistance in Al-Al₂O₃-Au diodes ». In : *Journal of Applied Physics* 36.6 (1965), p. 1885-1896. DOI : 10.1063/1.1714372.
- [21] L. C. DAVIS. « Theory of surface-plasmon excitation in metal-insulator-metal tunnel junctions ». In : *Phys. Rev. B* 16 (6 1977), p. 2482-2490. DOI : 10.1103/PhysRevB.16.2482.
- [22] D. J. SCALAPINO et S. M. MARCUS. « Theory of inelastic electron-molecule interactions in tunnel junctions ». In : *Phys. Rev. Lett.* 18 (12 1967), p. 459-461. DOI : 10.1103/PhysRevLett.18.459.
- [23] R. C. JAKLEVIC et J. LAMBE. « Molecular vibration spectra by electron tunneling ». In : *Phys. Rev. Lett.* 17 (22 1966), p. 1139-1140. DOI : 10.1103/PhysRevLett.17.1139.
- [24] E. L. WOLF. « Nonsuperconducting electron tunneling spectroscopy ». In : *Solid State Physics : Advances in Research and Applications* 30 (1975), p. 1-91. DOI : 10.1016/S0081-1947(08)60335-5.
- [25] R. W. RENDELL, D. J. SCALAPINO et B. MÜHLSCHLEGEL. « Role of local plasmon modes in light emission from small-particle tunnel junctions ». In : *Phys. Rev. Lett.* 41 (25 1978), p. 1746-1750. DOI : 10.1103/PhysRevLett.41.1746.

- [26] R. W. RENDELL et D. J. SCALAPINO. « Surface plasmons confined by microstructures on tunnel junctions ». In : *Phys. Rev. B* 24 (6 1981), p. 3276-3294. DOI : 10.1103/PhysRevB.24.3276.
- [27] D ROGOVIN et D.J SCALAPINO. « Fluctuation phenomena in tunnel junctions ». In : *Annals of Physics* 86.1 (1974), p. 1 -90. DOI : [https://doi.org/10.1016/0003-4916\(74\)90430-8](https://doi.org/10.1016/0003-4916(74)90430-8).
- [28] D. HONE, B. MÜHLSCHLEGEL et D. J. SCALAPINO. « Theory of light emission from small particle tunnel junctions ». In : *Applied Physics Letters* 33.2 (1978), p. 203-204. ISSN : 0003-6951. DOI : 10.1063/1.90275.
- [29] B. LAKS et D. L. MILLS. « Light emission from tunnel junctions : The role of the fast surface polariton ». In : *Phys. Rev. B* 22 (12 1980), p. 5723-5729. DOI : 10.1103/PhysRevB.22.5723.
- [30] S. USHIODA, J. E. RUTLEDGE et R. M. PIERCE. « Theory of prism-coupled light emission from tunnel junctions ». In : *Phys. Rev. B* 34 (10 1986), p. 6804-6812. DOI : 10.1103/PhysRevB.34.6804.
- [31] K. ARYA et R. ZEYHER. « Light emission from tunnel junctions : The role of multiple scattering of surface polaritons ». In : *Phys. Rev. B* 28 (8 1983), p. 4080-4089. DOI : 10.1103/PhysRevB.28.4080.
- [32] P. JOHANSSON, R. MONREAL et P. APELL. « Theory for light emission from a scanning tunneling microscope ». In : *Phys. Rev. B* 42 (14 1990), p. 9210-9213. DOI : 10.1103/PhysRevB.42.9210.
- [33] P. JOHANSSON. « Light emission from a scanning tunneling microscope : Fully retarded calculation ». In : *Phys. Rev. B* 58 (16 1998), p. 10823-10834. DOI : 10.1103/PhysRevB.58.10823.
- [34] J. AIZPURUA, S. P. APELL et R. BERNDT. « Role of tip shape in light emission from the scanning tunneling microscope ». In : *Phys. Rev. B* 62 (3 2000), p. 2065-2073. DOI : 10.1103/PhysRevB.62.2065.
- [35] Y. UEHARA et al. « Theory of visible light emission from scanning tunneling microscope ». In : *Japanese Journal of Applied Physics* 31.Part 1, No. 8 (1992), p. 2465-2469. DOI : 10.1143/jjap.31.2465. URL : <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.31.2465>.
- [36] B. N. J. PERSSON et A. BARATOFF. « Theory of photon emission in electron tunneling to metallic particles ». In : *Phys. Rev. Lett.* 68 (21 1992), p. 3224-3227. DOI : 10.1103/PhysRevLett.68.3224.
- [37] J. BARDEEN. « Tunnelling from a many-particle point of view ». In : *Phys. Rev. Lett.* 6 (2 1961), p. 57-59. DOI : 10.1103/PhysRevLett.6.57.
- [38] A. J. BENNETT, C. B. DUKE et S. D. SILVERSTEIN. « Theory of the tunneling spectroscopy of collective excitations ». In : *Phys. Rev.* 176 (3 1968), p. 969-992. DOI : 10.1103/PhysRev.176.969.

- [39] T. SCHIMIZU, K. KOBAYASHI et M. TSUKADA. « Theoretical approach to the microscopic mechanism of light emission from a scanning tunneling microscope ». In : *Applied Surface Science* 60-61 (1992), p. 454-459. DOI : 10.1016/0169-4332(92)90459-B.
- [40] A. DOWNES, M. E. TAYLOR et M. E. WELLAND. « Two-sphere model of photon emission from the scanning tunneling microscope ». In : *Phys. Rev. B* 57 (11 1998), p. 6706-6714. DOI : 10.1103/PhysRevB.57.6706.
- [41] M. PARZEFALL et al. « Antenna-coupled photon emission from hexagonal boron nitride tunnel junctions ». In : *Nature Nanotechnology* 10 (2015), 1058 EP -. DOI : 10.1038/nnano.2015.203.
- [42] M. PARZEFALL et al. « Light from van der Waals quantum tunneling devices ». In : *Nat Commun* 10.1 (2019), p. 292-292. DOI : 10.1038/s41467-018-08266-8.
- [43] L. WANG et al. « Advance of mechanically controllable break junction for molecular electronics ». In : *Topics in Current Chemistry* 375.3 (2017), p. 61. DOI : 10.1007/s41061-017-0149-0.
- [44] F. SKAUPY. « Chemical review ». In : *Academy of science Paris* (1861).
- [45] F. SKAUPY. « Eletrical conduction in metals ». In : *Verband Deutscher Physikalischer Gesellschaften* 16 (1914), p. 156-157.
- [46] I. A. BLECH et E. S. MEIERAN. « Direct transmission electron microscope observation of electrotransport in aluminum thin films ». In : *Applied Physics Letters* 11.8 (1967), p. 263-266. DOI : 10.1063/1.1755127.
- [47] H. B. HUNTINGTON et A. R. GRONE. « Current-induced marker motion in gold wires ». In : *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 20.1 (1961), p. 76-87. DOI : 10.1016/0022-3697(61)90138-X.
- [48] J. R. BLACK. « Mass transport of aluminum by momentum exchange with conducting electrons ». In : *Reliability Physics Symposium, 1967. Sixth Annual IEEE* (1967), p. 148-159.
- [49] H. A. SCHAFFT. « Thermal analysis of electromigration test structures ». In : *IEEE Transactions on Electron Devices* 34.3 (1987), p. 664-672. DOI : 10.1109/T-ED.1987.22978.
- [50] J. CHO et C. V. THOMPSON. « Grain size dependence of electromigration-induced failures in narrow interconnects ». In : *Applied Physics Letters* 54.25 (1989), p. 2577-2579. DOI : 10.1063/1.101054.
- [51] D. R. STRACHAN et al. « Controlled fabrication of nanogaps in ambient environment for molecular electronics ». In : *Applied Physics Letters* 86.4 (2005), p. 043109. DOI : 10.1063/1.1857095.

- [52] H. PARK et al. « Fabrication of metallic electrodes with nanometer separation by electromigration ». In : *Applied Physics Letters* 75.2 (1999), p. 301-303. DOI : 10.1063/1.124354.
- [53] M. F. LAMBERT et al. « Fabrication and characterization of sub-3 nm gaps for single-cluster and single-molecule experiments ». In : *Nanotechnology* 14.7 (2003), p. 772-777. DOI : 10.1088/0957-4484/14/7/313.
- [54] D. R. STRACHAN et al. « Controlled fabrication of nanogaps in ambient environment for molecular electronics ». In : *Applied Physics Letters* 86.4 (2005), p. 50-53. DOI : 10.1063/1.1857095.
- [55] K. I. BOLOTIN et al. « Metal-nanoparticle single-electron transistors fabricated using electromigration ». In : *Applied Physics Letters* 84.16 (2004), p. 3154-3156. DOI : 10.1063/1.1695203.
- [56] P. S. HO et H. B. HUNTINGTON. « Electromigration and void observation in silver ». In : *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 27.8 (1966), p. 1319-1329. DOI : 10.1016/0022-3697(66)90016-3.
- [57] D.G. PIERCE et P.G. BRUSIUS. « Electromigration : A review ». In : *Microelectronics Reliability* 37.7 (1997), p. 1053-1072. DOI : 10.1016/S0026-2714(96)00268-5.
- [58] B. STAHLMECKE et G. DUMPICH. « Influence of the electron beam on electromigration measurements within a scanning electron microscope ». In : *Applied Physics Letters* 90.4 (2007), p. 043517. DOI : 10.1063/1.2432304.
- [59] A. STOLZ et al. « Nonlinear photon-assisted tunneling transport in optical gap antennas ». In : *Nano Letters* 14.5 (2014), p. 2330-2338. DOI : 10.1021/nl404707t.
- [60] M.-M. MENNEMANTEUIL et al. « Pre-determining the location of electromigrated gaps by nonlinear optical imaging ». In : *Applied Physics Letters* 105.2 (2014), p. 021101. DOI : 10.1063/1.4890415.
- [61] M.-M. MENNEMANTEUIL et al. « Remote plasmon-induced heat transfer probed by the electronic transport of a gold nanowire ». In : *Phys. Rev. B* 94.8 (2016), p. 035413. DOI : 10.1103/PhysRevB.94.035413.
- [62] Z. WU et al. « Feedback controlled electromigration in four-terminal nanojunctions ». In : *Applied Physics Letters* 91.5 (2007), p. 053118. DOI : 10.1063/1.2760150.
- [63] R. HOFFMANN et al. « Conductance of gold nanojunctions thinned by electromigration ». In : *Applied Physics Letters* 93.4 (2008), p. 043118. DOI : 10.1063/1.2965121.
- [64] G. ESEN et M. S. FUHRER. « Temperature control of electromigration to form gold nanogap junctions ». In : *Applied Physics Letters* 263101.2005 (2005), p. 1-4. DOI : 10.1063/1.2149174.

- [65] A. UMENO et K. HIRAKAWA. « Nonthermal origin of electromigration at gold nanojunctions in the ballistic regime ». In : *Appl. Phys. Lett.* 94.16 (2009), p. 28-31.
- [66] J. LAMBE et S. L. MCCARTHY. « Light emission from inelastic tunneling — LEIT ». In : sous la dir. de Thomas WOLFRAM. Springer Berlin Heidelberg, 1978, p. 210-217.
- [67] D. W. PASHLEY, M. J. STOWELL et T. J. LAW. « The crystal structure of evaporated gold films ». In : *physica status solidi (b)* 10.1 (1965), p. 153-163. DOI : 10.1002/pssb.19650100115.
- [68] Z. LIU et P.C. SEARSON. « Single nanoporous gold nanowire sensors ». In : *The Journal of Physical Chemistry B* 110.9 (2006), p. 4318-4322. DOI : 10.1021/jp056940t.
- [69] Z. M. WU et al. « Feedback controlled electromigration in four-terminal nanojunctions ». In : *Applied Physics Letters* 91.5 (2007), p. 053118. DOI : 10.1063/1.2760150.
- [70] R.L. de ORIO, H. CERIC et S. SELBERHERR. « Physically based models of electromigration : From Black's equation to modern TCAD models ». In : *Microelectronics Reliability* 50.6 (2010), p. 775-789. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.microrel.2010.01.007>.
- [71] H. F. HOFMANN, T. KOSAKO et Y. KADOYA. « Design parameters for a nano-optical Yagi-Uda antenna ». In : *New Journal of Physics* 9.7 (2007), p. 217. URL : <http://stacks.iop.org/1367-2630/9/i=7/a=217>.
- [72] A. DOWNES, Ph. DUMAS et M. E. WELLAND. « Measurement of high electron temperatures in single atom metal point contacts by light emission ». In : *Applied Physics Letters* 81.7 (2002), p. 1252-1254. DOI : 10.1063/1.1497188.
- [73] K. L. CHOPRA. « Current-controlled negative resistance in thin niobium oxide films ». In : *Proceedings of the IEEE* 51.6 (1963), p. 941-942. DOI : 10.1109/PROC.1963.2339.
- [74] R.LANDAUER. « Spatial variation of currents and fields due to localized scatterers in metallic conduction ». In : *IBM J. Res. Dev.* 1.3 (1957), p. 223-231. DOI : 10.1147/rd.13.0223.
- [75] C. J. MULLER et al. « Quantization effects in the conductance of metallic contacts at room temperature ». In : *Phys. Rev. B* 53 (1996), p. 1022-1025. DOI : 10.1103/PhysRevB.53.1022.
- [76] J. G. SIMMONS. « Generalized formula for the electric tunnel effect between dissimilar electrodes separated by a thin insulating film ». In : *Journal of Applied Physics* 34.9 (1963), p. 2581-2590. DOI : 10.1063/1.1729774.
- [77] A. MANGIN. « Electronic transport in metallic nanogaps for the realization of molecular transistor. » Theses. Oct. 2009.

- [78] A. MAYER et al. « Three-dimensional analysis of the rectifying properties of geometrically asymmetric metal-vacuum-metal junctions treated as an oscillating barrier ». In : *Phys. Rev. B* 78 (2008), p. 205404. DOI : 10 . 1103 / PhysRevB . 78 . 205404.
- [79] G. BINNIG et H. ROHRER. « Scanning tunneling microscopy—from birth to adolescence ». In : *Rev. Mod. Phys.* 59 (1987), p. 615-625. DOI : 10 . 1103 / RevModPhys . 59 . 615.
- [80] M. A. REED et al. « Conductance of a molecular junction ». In : *Science* 278.5336 (1997), p. 252-254. DOI : 10 . 1126 / science . 278 . 5336 . 252.
- [81] C. P. COLLIER et al. « Molecular-based electronically switchable tunnel junction devices ». In : *Journal of the American Chemical Society* 123.50 (2001), p. 12632-12641. DOI : 10 . 1021 / ja0114456.
- [82] W. F. BRINKMAN, R. C. DYNES et J. M. ROWELL. « Tunneling conductance of asymmetrical barriers ». In : *Journal of Applied Physics* 41.5 (1970), p. 1915-1921. DOI : 10 . 1063 / 1 . 1659141.
- [83] W. M. H. SACHTLER, G. J. H. DORGELO et A. A. HOLSCHER. « The work function of gold ». In : *Surface Science* 5.2 (1966), p. 221 -229. DOI : 10 . 1016 / 0039-6028 (66) 90083-5.
- [84] R. SCHUSTER et al. « Distance dependence and corrugation in barrier-height measurements on metal surfaces ». In : *Ultramicroscopy* 42-44.Part 1 (1992), p. 533-540. DOI : 10 . 1016 / 0304-3991 (92) 90319-F.
- [85] K. INOUE et al. « Investigation of electromigration induced by field emission current flowing through Au nanogaps in ambient air ». In : *Journal of Applied Physics* 122.8 (2017), p. 084303. DOI : 10 . 1063 / 1 . 4999831.
- [86] G. S. ANUFRIEV, B. S. BOLTENKOV et A. I. RYABINKOV. « High-resolution mass spectra of the residual gas in a metallic vacuum system ». In : *Technical Physics* 51.1 (2006), p. 100-111. DOI : 10 . 1134 / S1063784206010154.
- [87] J. M. BEEBE et al. « Transition from direct tunneling to field emission in metal-molecule-metal junctions ». In : *Phys. Rev. Lett.* 97 (2006), p. 026801. DOI : 10 . 1103 / PhysRevLett . 97 . 026801.
- [88] K. SOTTHEWES et al. « Transition voltage spectroscopy of scanning tunneling microscopy vacuum junctions ». In : *RSC Adv.* 4 (61 2014), p. 32438-32442. DOI : 10 . 1039 / C4RA04651J.
- [89] A. VILAN, D. CAHEN et E. KRAISLER. « Rethinking transition voltage spectroscopy within a generic Taylor expansion View ». In : *ACS Nano* 7.1 (2013), p. 695-706. DOI : 10 . 1021 / nn3049686.
- [90] E. H. HUISMAN et al. « Interpretation of transition voltage spectroscopy ». In : *Nano Letters* 9.11 (2009), p. 3909-3913. DOI : 10 . 1021 / n19021094.

- [91] I. BÂLDEA. « Transition voltage spectroscopy : Artefacts of the Simmons approach ». In : *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 73.9 (2012), p. 1151-1153. DOI : 10.1016/j.jpcs.2012.05.006.
- [92] R. STRATTON. « Volt-current characteristics for tunneling through insulating films ». In : *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 23.9 (1962), p. 1177-1190. DOI : [https://doi.org/10.1016/0022-3697\(62\)90165-8](https://doi.org/10.1016/0022-3697(62)90165-8).
- [93] A. DASGUPTA et al. « Electromigrated electrical optical antennas for transducing electrons and photons at the nanoscale ». In : *Beilstein Journal of Nanotechnology* 9 (2018), p. 1964-1976. DOI : 10.3762/bjnano.9.187.
- [94] J. KERN et al. « Electrically driven optical antennas ». In : *Nature Photonics* 9 (2015), 582 EP -. DOI : 10.1038/nphoton.2015.141.
- [95] P. K. HANSMA et H. P. BROIDA. « Light emission from gold particles excited by electron tunneling ». In : *Applied Physics Letters* 32.9 (1978), p. 545-547. DOI : 10.1063/1.90123.
- [96] R. PECHOU et al. « Cutoff anomalies in light emitted from the tunneling junction of a scanning tunneling microscope in air ». In : *Applied Physics Letters* 72.6 (1998), p. 671-673. DOI : 10.1063/1.120841.
- [97] V. KALATHINGAL, P. DAWSON et J. MITRA. « Scanning tunnelling microscope light emission : Finite temperature current noise and over cut-off emission ». In : *Scientific Reports* 7.1 (2017), p. 3530. DOI : 10.1038/s41598-017-03766-x.
- [98] T. MALINOWSKI et al. « Infrared light emission from nano hot electron gas created in atomic point contacts ». In : *EPL (Europhysics Letters)* 114.5 (2016), p. 57002. DOI : 10.1209/0295-5075/114/57002.
- [99] P. B. JOHNSON et R. W. CHRISTY. « Optical constants of the noble metals ». In : *Phys. Rev. B* 6 (12 1972), p. 4370-4379. DOI : 10.1103/PhysRevB.6.4370.
- [100] G. SCHULL et al. « Electron-plasmon and electron-electron interactions at a single atom contact ». In : *Phys. Rev. Lett.* 102 (5 2009), p. 057401. DOI : 10.1103/PhysRevLett.102.057401.
- [101] N. L. SCHNEIDER, P. JOHANSSON et R. BERNDT. « Hot electron cascades in the scanning tunneling microscope ». In : *Phys. Rev. B* 87 (4 2013), p. 045409. DOI : 10.1103/PhysRevB.87.045409.
- [102] F. XU, C. HOLMQVIST et W. BELZIG. « Overbias light emission due to higher-order quantum noise in a tunnel junction ». In : *Phys. Rev. Lett.* 113 (6 2014), p. 066801. DOI : 10.1103/PhysRevLett.113.066801.
- [103] P.-J. PETERS et al. « Quantum coherent multielectron processes in an atomic scale contact ». In : *Phys. Rev. Lett.* 119 (2017), p. 066803. DOI : 10.1103/PhysRevLett.119.066803.

- [104] M. L. BRONGERSMA, N. J. HALAS et P. NORDLANDER. « Plasmon-induced hot carrier science and technology ». In : *Nature Nano* 10.1 (2015), p. 25-34. DOI : 10.1038/nnano.2014.311.
- [105] E. G. GAMALY. « Femtosecond laser-matter interactions : Theory, experiments, and applications ». In : *Contemporary Physics* 53.6 (2012), p. 521-522. DOI : 10.1080/00107514.2012.737843.
- [106] R. H. M. GROENEVELD, R. SPIRIK et A. LAGENDIJK. « Femtosecond spectroscopy of electron-electron and electron-phonon energy relaxation in Ag and Au ». In : *Phys. Rev. B* 51 (17 1995), p. 11433-11445. DOI : 10.1103/PhysRevB.51.11433.
- [107] E.D. BELOTSKII et P.M. TOMCHUK. « Electron-phonon interaction and hot electrons in small metal islands ». In : *Surface Science* 239.1 (1990), p. 143 -155. DOI : 10.1016/0039-6028(90)90626-J.
- [108] R.D. FEDOROVICH, A.G. NAUMOVETS et P.M. TOMCHUK. « Electron and light emission from island metal films and generation of hot electrons in nanoparticles ». In : *Physics Reports* 328.2-3 (2000), p. 73-179. DOI : [http://doi.org/10.1016/S0370-1573\(99\)00094-0](http://doi.org/10.1016/S0370-1573(99)00094-0).
- [109] P. M. TOMCHUK et R. D. FEDOROVICH. « Emission of hot electrons from thin metal films ». In : *Sov. Phys. - Solid State* 8.226-227 (1966).
- [110] M. PLANCK et M. MASIUS. *The theory of heat radiation*. Blakiston, 1914.
- [111] S. I. ANISIMOV, B. L. KAPELIOVICH et T. L. PEREL'MAN. « Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses ». In : *Zh. Eksp. Teor. Fiz* 66.776 (1974), p. 375-7.
- [112] J. G. FUJIMOTO et al. « Femtosecond laser interaction with metallic tungsten and nonequilibrium electron and lattice temperatures ». In : *Phys. Rev. Lett.* 53 (19 1984), p. 1837-1840. DOI : 10.1103/PhysRevLett.53.1837.
- [113] P. E. HOPKINS et al. « Thermal conductivity in nanoporous gold films during electron-phonon nonequilibrium ». In : *Journal of Nanomaterials* 2008 (2008). DOI : 10.1155/2008/418050.
- [114] W. M. HAYNES, D. R. LIDE et T. J. BRUNO. *CRC handbook of chemistry and physics : a ready-reference book of chemical and physical data*. Boca Raton, 2015.
- [115] Cao GUOZHONG. *Nanostructures and Nanomaterials : synthesis, properties and applications*. World scientific, 2004.
- [116] E. HAUG et W. NAKEL. *The elementary process of bremsstrahlung*. WORLD SCIENTIFIC, 2004. DOI : 10.1142/5371.
- [117] J.-J. GREFFET et al. « Light emission by nonequilibrium bodies : local Kirchhoff law ». In : *Phys. Rev. X* 8 (2 2018), p. 021008. DOI : 10.1103/PhysRevX.8.021008.

- [118] L. WOJSZVZYK, H. MONIN et J.-J. GREFFET. « Light emission by a thermalized ensemble of emitters coupled to a resonant structure ». In : *Advanced Optical Materials* 0.0 (2019), p. 1801697. DOI : 10.1002/adom.201801697.
- [119] Tuhiti MALINOWSKI. « Electroluminescence at the scale of the atomic point contact ». Theses. Université Aix Marseille, 2016.
- [120] R. CHEN et al. « Enhanced noise at high bias in atomic-scale Au break junctions ». In : *Scientific Reports* 4 (2014), 4221 EP -. DOI : 10.1038/srep04221.
- [121] M.J.M. de JONG et C.W.J. BEENAKKER. « Semiclassical theory of shot noise in mesoscopic conductors ». In : *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications* 230.1 (1996), p. 219 -248. DOI : 10.1016/0378-4371(96)00068-4.
- [122] F. PIERRE. « Interaction électron-électron dans les fils mésoscopiques ». Theses. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2000.
- [123] R. D'AGOSTA, N. SAI et M. Di VENTRA. « Local electron heating in nanoscale conductors ». In : *Nano Letters* 6.12 (2006), p. 2935-2938. DOI : 10.1021/nl1062316w.
- [124] O. PÉREZ-GONZÁLEZ et al. « Optical spectroscopy of conductive junctions in plasmonic cavities ». In : *Nano Letters* 10.8 (2010), p. 3090-3095. DOI : 10.1021/nl1017173.
- [125] N. A. MORTENSEN et al. « A generalized non-local optical response theory for plasmonic nanostructures ». In : *Nature Communications* 5 (2014), 3809 EP -. DOI : 10.1038/ncomms4809.
- [126] J.-J. GREFFET et al. « Coherent emission of light by thermal sources ». In : *Nature* 416 (2002), 61 EP -. DOI : 10.1038/416061a.
- [127] Andrei V. SHCHEGROV et al. « Near-field spectral effects due to electromagnetic surface excitations ». In : *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), p. 1548-1551. DOI : 10.1103/PhysRevLett.85.1548.
- [128] R. CARMINATI et J.-J. GREFFET. « Near-Field effects in spatial coherence of thermal sources ». In : *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), p. 1660-1663. DOI : 10.1103/PhysRevLett.82.1660.
- [129] E. WOLF et D. F. V. JAMES. « Correlation-induced spectral changes ». In : *Reports on Progress in Physics* 59.6 (1996), p. 771. DOI : 10.1088/0034-4885/59/6/002.
- [130] L. J. KLEIN, S. INGVARSSON et H. F. HAMANN. « Changing the emission of polarized thermal radiation from metallic nanoheaters ». In : *Opt. Express* 17.20 (2009), p. 17963-17969. DOI : 10.1364/OE.17.017963.
- [131] D. R. WARD, N. J. HALAS et D. NATELSON. « Localized heating in nanoscale Pt constrictions measured using blackbody radiation emission ». In : *Applied Physics Letters* 93.21 (2008), p. 213108. DOI : 10.1063/1.3039060.

- [132] T. H. TAMINIAU, F. D. STEFANI et N. F. van HULST. « Optical nanorod antennas modeled as cavities for dipolar emitters : evolution of sub- and super-radiant modes ». In : *Nano Letters* 11.3 (2011), p. 1020-1024. DOI : 10.1021/nl1103828n.
- [133] P. FAN et al. « Redesigning photodetector electrodes as an optical antenna ». In : *Nano Letters* 13.2 (2013), p. 392-396. DOI : 10.1021/nl303535s.
- [134] X. LIN et al. « Electrically-driven single-photon sources based on colloidal quantum dots with near-optimal antibunching at room temperature ». In : *Nature Communications* 8.1 (2017), p. 1132. DOI : 10.1038/s41467-017-01379-6.
- [135] R. STEINMEYER et al. « Improved fluorescent proteins for single-molecule research in molecular tracking and co-localization ». In : *Journal of Fluorescence* 15.5 (2005), p. 707. DOI : 10.1007/s10895-005-2978-4.
- [136] N. AGRÄIT, A. L. YEYATI et J. M. Van RUITENBEEK. « Quantum properties of atomic-sized conductors ». In : *Physics Reports* 377.2 (2003), p. 81 -279. DOI : 10.1016/S0370-1573(02)00633-6.
- [137] L. CUI et al. « Quantized thermal transport in single-atom junctions ». In : *Science* 355 (2017), p. 1192-1195. DOI : 10.1126/science.aam6622.
- [138] S. DATTA. *Electronic transport in mesoscopic systems*. Cambridge University Press, 1995. DOI : 10.1017/CBO9780511805776.
- [139] H. van HOUTEN et C. W. J. BEENAKKER. « Quantum point contacts ». In : *Physics Today* 49 (1996), p. 22. DOI : 10.1063/1.881503.
- [140] F. GREEN et M. P. DAS. « Noise and transport in mesoscopics : physics beyond the Landauer-Büttiker formalism ». In : *Fluctuation and Noise Letters* 05.01 (2005), p. C1-C14. DOI : 10.1142/S0219477505002355.
- [141] M. P. DAS et F. GREEN. « Mesoscopic transport revisited ». In : *Journal of Physics : Condensed Matter* 21.10 (2009), p. 101001. DOI : 10.1088/0953-8984/21/10/101001.
- [142] T. N. TODOROV. « Local heating in ballistic atomic-scale contacts ». In : *Philosophical Magazine, Part B* 77 (1998), p. 965-973. DOI : 10.1080/13642819808206398.
- [143] N. AGRÄIT et al. « Onset of energy dissipation in ballistic atomic wires ». In : *Phys. Rev. Lett.* 88 (21 2002), p. 216803. DOI : 10.1103/PhysRevLett.88.216803.
- [144] T. FREDERIKSEN et al. « Modeling of inelastic transport in one-dimensional metallic atomic wires ». In : *Journal of Computational Electronics* 3.3 (2004), p. 423-427. DOI : 10.1007/s10825-004-7089-y.
- [145] M. REZNIKOV et al. « Temporal correlation of electrons : Suppression of shot noise in a ballistic quantum point contact ». In : *Phys. Rev. Lett.* 75 (1995), p. 3340-3343. DOI : 10.1103/PhysRevLett.75.3340.

- [146] M. KUMAR et al. « Detection of vibration-mode scattering in electronic shot noise ». In : *Phys. Rev. Lett.* 108 (2012), p. 146602. DOI : 10.1103/PhysRevLett.108.146602.
- [147] C. W. J. BEENAKKER et H. SCHOMERUS. « Antibunched photons emitted by a quantum point contact out of equilibrium ». In : *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), p. 096801. DOI : 10.1103/PhysRevLett.93.096801.
- [148] A. V. LEBEDEV, G. B. LESOVIK et G. BLATTER. « Statistics of radiation emitted from a quantum point contact ». In : *Phys. Rev. B* 81 (2010), p. 155421. DOI : 10.1103/PhysRevB.81.155421.
- [149] I. C. FULGA, F. HASSLER et C. W. J. BEENAKKER. « Nonzero temperature effects on antibunched photons emitted by a quantum point contact out of equilibrium ». In : *Phys. Rev. B* 81 (2010), p. 115331. DOI : 10.1103/PhysRevB.81.115331.
- [150] E. ZAKKA-BAJJANI et al. « Experimental determination of the statistics of photons emitted by a tunnel junction ». In : *Phys. Rev. Lett.* 104 (2010), p. 206802. DOI : 10.1103/PhysRevLett.104.206802.
- [151] J.-C. FORGUES et al. « Non-classical radiation emission by a coherent conductor ». In : *Comptes Rendus Physique* 17.7 (2016), p. 718 -728. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.crhy.2016.07.004>.
- [152] F. GREEN, J. S. THAKUR et M. P. DAS. « Where is the shot noise of a quantum point contact? » In : *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004), p. 156804. DOI : 10.1103/PhysRevLett.92.156804.
- [153] R. D'AGOSTA, N. SAI et M. Di VENTRA. « Local electron heating in nanoscale conductors ». In : *Nano Letters* 6.12 (2006), p. 2935-2938. DOI : 10.1021/nl062316w.
- [154] A. V. USKOV et al. « Biased nanoscale contact as active element for electrically driven plasmonic nanoantenna ». In : *ACS Photonics* 4.6 (2017), p. 1501-1505. DOI : 10.1021/acsp Photonics.7b00272.
- [155] R. HOFFMANN et al. « Conductance of gold nanojunctions thinned by electromigration ». In : *Applied Physics Letters* 93.4 (2008), p. 043118. DOI : 10.1063/1.2965121.
- [156] A. FUJII et al. « Stability of Atom-sized Metal Contacts under High Biases ». In : *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology* 2 (2004), p. 125-130. DOI : 10.1380/ejssnt.2004.125.
- [157] M. PARZEFALL, P. BHARADWAJ et L. NOVOTNY. « Antenna-Coupled Tunnel Junctions ». In : *Quantum Plasmonics*. Sous la dir. de Sergey I. BOZHEVOLNYI, Luis MARTIN-MORENO et Francisco GARCIA-VIDAL. Springer International Publishing, 2017, p. 211-236. DOI : 10.1007/978-3-319-45820-5_10.

- [158] K. KAASBJERG et A. NITZAN. « Theory of light emission from quantum noise in plasmonic contacts : Above-threshold emission from higher-order electron-plasmon scattering ». In : *Phys. Rev. Lett.* 114 (2015), p. 126803. DOI : 10 . 1103/PhysRevLett.114.126803.
- [159] M. BURET et al. « Spontaneous hot-electron light emission from electron-fed optical antennas ». In : *Nano Letters* 15.9 (2015), p. 5811-5818. DOI : 10 . 1021/acs.nanolett.5b01861.
- [160] N. W. ASHCROFT et N. D. MERMIN. *Solid state physics*. Holt, Rinehart et Winston, 1976. DOI : 10 . 1002/piuz.19780090109.
- [161] A. P. KANAVIN et al. « Heat transport in metals irradiated by ultrashort laser pulses ». In : *Phys. Rev. B* 57 (1998), p. 14698-14703. DOI : 10 . 1103 / PhysRevB.57.14698.
- [162] A. KOMPANEETS. « The Establishment of thermal equilibrium between quanta and electrons ». In : *Sov. Phys. JETP* 31 (5 1957), p. 876.
- [163] Y. B. ZELDOVICH. « Interaction of free electrons with electromagnetic radiation ». In : *Soviet Physics Uspekhi* 18.2 (1975), p. 79-98. DOI : 10/d9gdmr.
- [164] Nandini TRIVEDI et N. W. ASHCROFT. « Quantum size effects in transport properties of metallic films ». In : *Phys. Rev. B* 38 (17 1988), p. 12298-12309. DOI : 10 . 1103/PhysRevB.38.12298.
- [165] J. H. SMET, C. G. FONSTAD et Q. HU. « Intrawell and interwell intersubband transitions in multiple quantum wells for far-infrared sources ». In : *Journal of Applied Physics* 79.12 (1996), p. 9305-9320. DOI : 10 . 1063/1.362607.
- [166] B. R. NAG. *Physics of quantum well devices*. Solid-State Science and Technology Library. Springer Netherlands, 2006. DOI : 10 . 1007/0-306-47127-2.
- [167] L. LANDAU et E. LIFSHITZ. *The classical theory of fields*. Pergamon press, 1971. DOI : 10 . 1016/C2009-0-14608-1.
- [168] *Radiative processes in high energy astrophysics*. T. 873. Springer International Publishing, 2013. DOI : 10 . 1007/978-3-319-00612-3.
- [169] J.-J. GREFFET. « Controlled incandescence ». In : *Nature* 478 (2011), 191 EP -. DOI : 10 . 1038/478191a.
- [170] X. LIU et al. « Taming the blackbody with infrared metamaterials as selective thermal emitters ». In : *Phys. Rev. Lett.* 107 (4 2011), p. 045901. DOI : 10 . 1103/PhysRevLett.107.045901.
- [171] S. VASSANT et al. « Epsilon-Near-Zero Mode for Active Optoelectronic Devices ». In : *Phys. Rev. Lett.* 109 (23 2012), p. 237401. DOI : 10 . 1103/PhysRevLett.109.237401.
- [172] S. VASSANT et al. « Electrical modulation of emissivity ». In : *Applied Physics Letters* 102.8 (2013), p. 081125. DOI : 10 . 1063/1.4793650.

- [173] T. INOUE et al. « Realization of dynamic thermal emission control ». In : *Nature Materials* 13 (2014), 928 EP -. DOI : 10.1038/nmat4043.
- [174] J. HILDENBRAND et al. « Micromachined mid-infrared emitter for fast transient temperature operation for optical gas sensing systems ». In : *IEEE Sensors Journal* 10.2 (2010), p. 353-362. DOI : 10.1109/JSEN.2009.2034624.
- [175] E. SAKAT et al. « Enhancing thermal radiation with nanoantennas to create infrared sources with high modulation rates ». In : *Optica* 5.2 (2018), p. 175-179. DOI : 10.1364/OPTICA.5.000175.
- [176] T-H. LEE, J. L. GONZALEZ et R. M. DICKSON. « Strongly enhanced field-dependent single-molecule electroluminescence ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 99 (2002), p. 10272-10275. DOI : 10.1073/pnas.162356799.
- [177] H. J. KIMBLE, M. DAGENAIS et L. MANDEL. « Photon antibunching in resonance fluorescence ». In : *Phys. Rev. Lett.* 39 (11 1977), p. 691-695. DOI : 10.1103/PhysRevLett.39.691.
- [178] D. V. O'CONNOR et D. PHILLIPS. *Time-Correlated Single Photon Counting*. 1984. DOI : 10.1016/B978-0-12-524140-3.X5001-1.
- [179] H. C. BURSTYN. « Afterpulsing effects in photon correlation experiments ». In : *Review of Scientific Instruments* 51.10 (1980), p. 1431-1433. DOI : 10.1063/1.1136097.
- [180] W. S. FANN et al. « Electron thermalization in gold ». In : *Phys. Rev. B* 46 (20 1992), p. 13592-13595. DOI : 10.1103/PhysRevB.46.13592.
- [181] N. Del FATTI et al. « Nonequilibrium electron dynamics in noble metals ». In : *Phys. Rev. B* 61 (24 2000), p. 16956-16966. DOI : 10.1103/PhysRevB.61.16956.
- [182] O. DEMICHEL et al. « Dynamics, efficiency, and energy distribution of nonlinear plasmon-assisted generation of hot carriers ». In : *ACS Photonics* 3.5 (2016), p. 791-795. DOI : 10.1021/acsp Photonics.5b00726.
- [183] A. N. PFEIFFER et al. « Attoclock reveals natural coordinates of the laser-induced tunnelling current flow in atoms ». In : *Nature Physics* 8 (2011), 76 EP -. DOI : 10.1038/nphys2125.
- [184] N. CAMUS et al. « Experimental Evidence for Quantum Tunneling Time ». In : *Phys. Rev. Lett.* 119 (2 2017), p. 023201. DOI : 10.1103/PhysRevLett.119.023201.
- [185] A. DASGUPTA et al. « Optical wireless link between a nanoscale antenna and a transducing rectenna ». In : *Nature Communications* 9.1 (2018), p. 1992. DOI : 10.1038/s41467-018-04382-7.

- [186] N. CAZIER et al. « Electrical excitation of waveguided surface plasmons by a light-emitting tunneling optical gap antenna ». In : *Optics Express* 24.4 (2016), p. 3873-3884. DOI : 10.1364/OE.24.003873.
- [187] M.-M. GOURIER (MENNEMANTEUIL). « Rectifications optique et thermique générées à l'aide de jonctions tunnel planaires électromigrées ». Theses. 2017.
- [188] G. HOFFMANN, R. BERNDT et P. JOHANSSON. « Two-electron photon emission from metallic quantum wells ». In : *Phys. Rev. Lett.* 90 (4 2003), p. 046803. DOI : 10.1103/PhysRevLett.90.046803.
- [189] A. V. USKOV et al. « Excitation of plasmonic nanoantennas by nonresonant and resonant electron tunnelling ». In : *Nanoscale* 8.30 (2016), p. 14573-14579. DOI : 10.1039/C6NR01931E.
- [190] H. Q. NGUYEN et al. « Mechanisms of current rectification in an STM tunnel junction and the measurement of an operational tunneling time ». In : *IEEE Transactions on Electron Devices* 36.11 (1989), p. 2671-2678. DOI : 10.1109/16.43771.