



**HAL**  
open science

# Straintronique des matériaux 2D semiconducteurs

Anis Chiout

► **To cite this version:**

Anis Chiout. Straintronique des matériaux 2D semiconducteurs. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris-Saclay, 2024. Français. NNT : 2024UPASP012 . tel-04540625

**HAL Id: tel-04540625**

**<https://theses.hal.science/tel-04540625>**

Submitted on 10 Apr 2024

**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.

# Straintronique des matériaux 2D semiconducteurs

*Straintronics of 2D semiconductors*

**Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay**

École doctorale n°564, Physique en Île-de-France (PIF)

Spécialité de doctorat : Physique

Graduate School : Physique

Référent : Faculté des sciences d'Orsay

Thèse préparée dans la (ou les) unité(s) de recherche **Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (Université Paris-Saclay, CNRS)**, sous la direction de **Abdelkarim OUERGHI**, Directeur de recherche CNRS et la co-encadrement de **Julien CHASTE**, Chargé de recherche CNRS

**Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 26 février 2024, par**

**Anis CHIOUT**

## Composition du Jury

Membres du jury avec voix délibérative

**Noelle GOGNEAU**

Directrice de recherche CNRS, C2N,  
Université Paris Saclay

Présidente

**Stéphane BERCIAUD**

Professeur des universités, Université  
de Strasbourg

Rapporteur & Examineur

**Benoit JOUAULT**

Directeur de recherche CNRS,  
Université de Montpellier

Rapporteur & Examineur

**Antoine RESERBAT-PLANTEY**

Chargé de recherche CNRS, CRHEA,  
Université Côte d'azur

Examineur

**Titre :** Straintronique de matériaux semiconducteurs 2D

**Mots clés :** Matériaux 2D, Semiconducteurs, NEMS, Optomécanique, Optoélectronique, Nanostructures, Nanotechnologie

**Résumé :** Les travaux de cette thèse ont porté sur l'étude de nouveaux matériaux semi-conducteurs d'épaisseur atomiquement fine, à savoir les matériaux dichalcogénures métalliques de transition 2D (TMD). Mon travail a porté à la fois sur des aspects purement fondamentaux de la matière condensée, sur la mise en place de mesures sur une plateforme nano-optoélectromécanique (NOEMS) et sur des dispositifs innovants utilisant les propriétés mécaniques de ces matériaux. Les matériaux 2D sont uniques en ce sens qu'ils sont à la fois très solides et mécaniquement résistants dans le plan du matériau, mais aussi très flexibles dans et hors du plan. Une monocouche est analogue à bien des égards à un film plastique extensible, aussi dur que l'acier et ultimement fin. Nous avons mis en place différentes expériences qui illustrent parfaitement le nouveau domaine de la straintronique dans les matériaux 2D, qui consiste à contrôler les déformations en 2D pour améliorer les propriétés optiques ou électroniques, et vice versa.

Les nanorésonateurs mécaniques à base de TMD sont très sensibles à la dilatation thermique, et nous avons utilisé cette propriété pour créer une nanoguitare qui peut être accordée sur plus d'une octave, un outil nanométrique nouveau qui permettrait de se projeter dans des applications impliquants les filtres mécaniques ou accéléromètres de nos téléphones.

Ensuite, nous avons déformé une membrane 2D suspendue avec une pointe tout en mesurant et en extrayant les propriétés électroniques et optiques sur la pointe, avec des déformations extrêmes allant jusqu'à 10%.

Enfin, nous avons cherché à comprendre le principe de fonctionnement et les possibilités de réaliser un transfert d'information cohérent en couplant fortement deux vibrations mécaniques ou en couplant deux harmoniques d'un même mode. Nous avons également créé des peignes de fréquences multi-modes en couplant paramétriquement un mode mécanique et un mode électrique dans un résonateur mécanique en matériaux 2D.

**Title :** Straintronics of 2D semiconductors

**Keywords :** 2D materials, Semiconductors, NEMS, Optomechanics Optoelectronics, Nanostructures, Nanotechnology

**Summary :** The work of this thesis focused on the study of new semiconductor materials of atomically thin thickness, namely 2D transition metal dichalcogenide (TMD) materials. My work involved both purely fundamental aspects of condensed matter, the implementation of measurements on a nano-optoelectromechanical platform (NOEMS) and innovative devices using the mechanical properties of these materials. 2D materials are unique in that they are both very strong and mechanically resistant in the plane of the material, but also very flexible in and out of the plane. A monolayer is analogous in many ways to a stretchable plastic film, as hard as steel and ultimately thin. We have set up various experiments that perfectly illustrate the new field of straintronics in 2D materials, which consists of controlling 2D deformations to improve optical or electronic properties, and vice versa.

TMD-based mechanical nanoresonators are very sensitive to thermal expansion, and we used this property to create a nanoguitar that can be tuned over more than an octave, an essential nanometric tool that can have many potential applications in our phones as mechanical filters or accelerometers.

Next, we deformed a suspended 2D membrane with a tip while measuring and extracting electronic and optical properties on the tip, with extreme deformations of up to 10%.

Finally, we sought to understand the operating principle and the possibilities of achieving coherent information transfer by strongly coupling two mechanical vibrations or by coupling two harmonics of the same mode. We have also created multi-mode frequency combs by parametrically coupling a mechanical mode and an electrical mode in a mechanical resonator made of 2D material.



# CONTENU

---

CONTENU.....	4
CHAPITRE 1 : LES MATERIAUX 2D ET DE LA NANO-MECANIQUE.....	9
1.1. LA ZOOLOGIE DES MATERIAUX 2D ET LEURS PROPRIETES .....	9
1.2. LA STRAINTRONIQUE DANS LES MATERIAUX 2D.....	12
1.3. LES MEMBRANES SUSPENDUS 2D ET LES RESONATEURS MECANQUES .....	19
1.3.1. DETECTION DE MASSE ET DE FORCE .....	20
1.3.2. INGENIERIE DES VIBRATIONS : MODULATION DES RESONANCES, COUPLAGE MECANIQUE ET RESEAUX PHONONIQUES.....	21
CHAPITRE 2 : MODELE MECANIQUE D'UNE MEMBRANE 2D CIRCULAIRE, COUPLAGE ET INDENTATION.....	24
2.1. DEFLECTION MECANIQUE STATIQUE : CAS DE L'INDENTATION PAR UNE POINTE .....	26
2.1.1. MODELES DE POINTE .....	28
2.1.2. MODELE D'INDENTATION, AU CENTRE, AVEC UNE POINTE INFINIMENT FINE.....	28
2.1.3. MODELE D'INDENTATION EMPIRIQUE DE LA POINTE PLATE.....	30
2.1.4. MODELE D'INDENTATION AVEC UNE POINTE ARRONDIE .....	31
2.2. DEFLECTION MECANIQUE STATIQUE : CAS DE LA FORCE ELECTROSTATIQUE NON LOCALE.....	33
2.3. DYNAMIQUE ET VIBRATION D'UNE MEMBRANE .....	35
2.3.1. VIBRATION D'UN OSCILLATEUR MECANIQUE SIMPLE.....	36
2.3.2. VIBRATION D'UNE MEMBRANE EN SYMETRIE CIRCULAIRE SOUS TENSION ET AVEC UNE FORCE ELECTROSTATIQUE.....	37
2.4. COUPLAGE MECANIQUE .....	39
2.4.1. COUPLAGE MECANIQUE COHERENT .....	39
2.4.2. COUPLAGE MECANIQUE COHERENT ET RAIDEUR PARAMETRIQUE <sup>82</sup> .....	40
2.4.3. PARAMETRES IMPORTANTS DU REGIME DE FORT COUPLAGE MECANIQUE .....	43
CHAPITRE 3 : PREPARATION DES ECHANTILLONS ET METHODES EXPERIMENTALES .....	44
3.1. METHODES DE FABRICATION DES MATERIAUX 2D.....	44
3.1.1. APPROCHE TOP-DOWN (EXFOLIATION) .....	45
3.1.2. APPROCHE BOTTOM-UP (CROISSANCE CVD) .....	46
3.2. METHODES DE TRANSFERT.....	48
3.2.1. METHODE HUMIDE.....	48
3.2.2. METHODE SEMI SECHE.....	51

3.3.	MESURE OPTO-ELECTRO-MECANQUES .....	54
3.3.1.	DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....	54
3.3.2.	INTERFEROMETRIE, REFLECTIVITE DU LASER ET CAVITE FABRY PEROT .....	60
3.3.3.	MESURES OPTIQUES.....	63
CHAPITRE 4 : UNE NANOGUITARE THERMIQUE EN $\text{MoS}_2^{103}$ .....		69
4.1.	CARACTERISATION DU TAMBOUR EN $\text{MoS}_2$ .....	70
4.2.	VARIATION ELECTROTHERMIQUE DE LA FREQUENCE DE VIBRATION.....	73
4.3.	BOLOMETRIE EN SPECTROSCOPIE RAMAN ET EN MECANIQUE .....	81
4.4.	CONCLUSION .....	88
CHAPITRE 5 : DEFORMATION EXTREME D'UNE MEMBRANE 2D ET MESURES DE PHOTOLUMINESCENCE LOCALISES.....		89
5.1.	TAMBOUR EN $\text{WSe}_2$ ET TEPL : INTRODUCTION.....	91
5.2.	INDENTATION ET PHOTOLUMINESCENCE.....	94
5.3.	RELATION ENTRE DEFORMATION MECANIQUE ET PHOTOLUMINESCENCE.....	97
5.4.	MESURES DE PHOTOLUMINESCENCE SOUS INDENTATION ; A LA RECHERCHE DU SIGNAL SOUS LA POINTE.....	102
5.5.	DERIVE ET DIFFUSION DES CHARGES ET EXCITONS NEUTRES .....	106
5.6.	CONCLUSION .....	107
CHAPITRE 6 : COUPLAGE MECANIQUE .....		108
6.1.	COUPLAGE PUREMENT MECANIQUE PAR RECOUVREMENT DES MODES DE VIBRATIONS ; NOS SOLUTIONS EXPERIMENTALES .....	109
6.2.	COUPLAGE PARAMETRIQUE COHERENT .....	113
6.3.	PEIGNE DE FREQUENCE MECANIQUE ET COUPLAGE ELECTROMECHANIQUE .....	115
6.4.	DOUBLE TAMBOUR $\text{WSe}_2$ ET COUPLAGE MECANO-MECANIQUE : LOCALISE OU DELOCALISE ? .....	120
6.5.	MODULATION DU COUPLAGE : VERS LE COUPLAGE MECANIQUE ULTRA FORT .....	128
6.6.	CONCLUSION .....	131
CONCLUSION.....		132
ANNEXES .....		133

<b>A.</b>	<b>TABLEAU DES REFERENCES UTILISEES POUR LE CHAPITRE 4</b> .....	<b>133</b>
<b>B.</b>	<b>MODELE DE L'INDENTATION PAR POINTE EN 1r</b> .....	<b>135</b>
<b>C.</b>	<b>LES ENERGIE EN JEU POUR UNE MEMBRANE 2D SOUMISE A UNE FORCE CAPACITIVE ET POSITION D'EQUILIBRE ET LA FREQUENCE DE RESONANCE</b> .....	<b>137</b>
<b>7.</b>	<b>BIBLIOGRAPHIE</b> .....	<b>142</b>

## Introduction

Depuis leur isolement dans le début des années 2000, les matériaux bidimensionnels (matériaux 2D) sont un sujet de recherche très actif avec des champs de recherches très vastes couvrant tous les domaines de la physique de la matière condensée, allant de la supraconductivité aux semiconducteurs en passant par la photonique et la phononique.

Dans ce manuscrit, nous allons explorer les propriétés mécaniques des matériaux 2D et leurs relations étroites avec les propriétés optiques ou électroniques, à travers différentes expériences. Nous allons voir que nous sommes capables de construire des dispositifs avec des matériaux 2D suspendus sous la forme de micro-tambours très fins pour exploiter leurs vibrations ou déformations mécaniques atypiques et modifier les propriétés globales de ces matériaux.

Nous allons notamment explorer la relation entre propriétés thermiques et mécaniques d'un matériau 2D semiconducteur à travers des expériences d'accordabilité de la fréquence mécanique. Nous allons aborder le transport d'excitons dans un matériau 2D monocouche dans un champ de contraintes mécaniques permettant de varier la bande interdite dudit feuillet avec des expériences de nano indentation. Enfin nous aborderons le transport de vibrations mécaniques et le couplage mécanique entre différents modes de vibrations.

Dans le cadre de ces recherches nous avons mis en place une plateforme nano optoelectromécanique (NOEMS) pour effectuer les différentes mesures proposées, qui continue à être développée à l'heure actuelle. Dans un cadre plus large, nous avons effectué plusieurs mesures en collaboration directe avec des industriels. En particulier, les travaux effectués avec Horiba (Horiba France SAS, Palaiseau) sur les mesures d'indentation ont été présentés dans des conférences et publiés dans des revues scientifiques.

## Liste de publications scientifiques reliées à la thèse :

**Chiout, A.**, Correia, F., Zhao, M. Q., Johnson, A. T., Pierucci, D., Oehler, F., ... & Chaste, J. (2021). Multi-order phononic frequency comb generation within a MoS<sub>2</sub> electromechanical resonator. *Applied Physics Letters*, 119(17).

**Chiout, A.**, Brochard-Richard, C., Marty, L., Bendiab, N., Zhao, M. Q., Johnson, A. C., ... & Chaste, J. (2023). Extreme mechanical tunability in suspended MoS<sub>2</sub> resonator controlled by Joule heating. *npj 2D Materials and Applications*, 7(1), 20.

Mahmoudi, A., Bouaziz, M., **Chiout, A.**, Di Berardino, G., Ullberg, N., Kremer, G., ... & Ouerghi, A. (2023). Electronic properties of rhombohedrally stacked bilayer W Se<sub>2</sub> obtained by chemical vapor deposition. *Physical Review B*, 108(4), 045417.

**Chiout, A.** et al. Mapping of Vibrational Modes and strong and tunable coupling in Two Juxtaposed 3R-WSe<sub>2</sub> Nanodrums (en cours de soumission)

**Chiout, A.** et al. High Strain Engineering of a Suspended WSe Monolayer Membrane by Indentation and Measured by Tip-enhanced Photoluminescence. (en cours de publication dans *Advanced Optical Materials*, 2024

# CHAPITRE 1 : LES MATERIAUX 2D ET DE LA NANO-MECANIQUE

---

Les matériaux 2D sont des composés ayant une épaisseur atomique fine (un à quelques atomes) dans une seule des trois dimensions. Ils présentent donc par nature une très forte anisotropie structurale. Dans la pratique, la plupart des matériaux 2D ont une structure lamellaire dont la cohésion est basée sur l'interaction de van der Waals dans la direction hors du plan. Depuis la découverte des méthodes d'exfoliation mécanique de ces matériaux,<sup>1</sup> la communauté scientifique s'est attachée à étudier leurs nombreuses propriétés propres et les potentielles applications qui peuvent en découler. Tout d'abord un travail d'identification a été mené afin d'étudier les propriétés intrinsèques de chacun de ces matériaux. Par la suite, des expériences et dispositifs ont été conçus sur la base de ces matériaux 2D, en combinaison avec des matériaux conventionnels (3D) ou d'autres matériaux 2D (hétérostructures).

Dans ce mémoire, nous allons explorer les relations entre les différentes propriétés des matériaux 2D par le prisme de la mécanique, profitant de l'intrication entre leurs propriétés physiques (structure électronique, conduction thermique ...) et leur état de contrainte mécanique.

## 1.1. LA ZOOLOGIE DES MATERIAUX 2D ET LEURS PROPRIETES

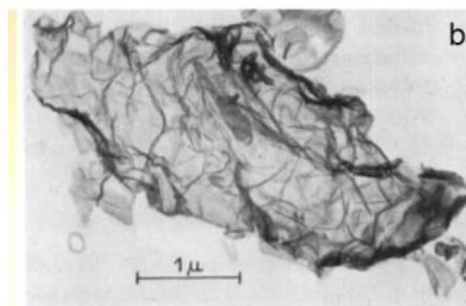


Figure 1 - Première image au microscope électronique d'un feuillet de graphène en 1962. Provient de la référence <sup>2</sup>.

La « préhistoire » du graphène (un seul feuillet d'atomes de carbone organisés de manière hexagonale), commence en 1962 avec la première observation d'un

monofeuillet de graphène. Il est communément admis que l'étude intensive des matériaux 2D commence en 2004 avec l'isolation du graphène par exfoliation à partir du graphite et les premières mesures d'effet Hall effectuées sur un matériau 2D.<sup>1</sup> Des cristaux lamellaires peuvent être séparés mécaniquement en deux grâce à l'utilisation d'adhésif. En effet, dans l'axe perpendiculaire au réseau d'atomes, ces matériaux sont mécaniquement faibles (non ductile) grâce aux liaisons Van der Waals entre les feuillets atomiques. En répétant l'opération de séparation plusieurs fois, on peut arriver à obtenir un matériau d'épaisseur atomiquement fine et parfaitement bidimensionnel, c'est le procédé d'exfoliation mécanique. Depuis, d'autres matériaux 2D ont été isolés soit par exfoliation ou par d'autres méthodes de fabrication comme la croissance en phase vapeur (CVD). Les matériaux 2D présentent une grande diversité, allant de matériaux en feuillets contenant un seul élément comme le graphène (composé de carbone) en passant par des feuillets de composition mixte comme le hBN (composé de Bore et d'azote), ou encore les dichalcogénures de métaux de transition (TMDs). La maille cristalline de ces derniers est composée d'un atome métallique faisant partie des métaux de transition et de deux atomes de la famille des chalcogènes (Soufre, Sélénium, Tellure). Les matériaux 2D peuvent être organisés en un seul plan atomique (typiquement, graphène et hBN) ou en plusieurs plans atomiques (TMDs ou phosphore noir). Dans cette thèse, nous allons principalement nous intéresser au composé MoS<sub>2</sub>, WSe<sub>2</sub> et leurs alliages.

L'implémentation technologique de tel matériaux, voir Figure 1, et le budget alloué aux matériaux 2D en général, est incomparable à celui du Silicium (projeté à 772 Milliard de Dollars en 2030). Même si les performance de transistors de MoS<sub>2</sub> intégrés approches des objectifs définis par le cahier des charges international du Silicium<sup>3,4</sup>, leur réelle utilisation en tant que matériaux de base de la technologie CMOS n'est pas certaine. Toutefois, il existe de nombreuses applications niches dans lesquelles les matériaux 2D pourraient être compétitifs.

La structure en feuillet se prête à l'empilement de matériaux 2D différents dans la direction hors du plan. Ce type d'hétérostructure « verticale » permet de modifier substantiellement leurs propriétés des matériaux de départ. Cela permet de d'assembler encore d'autres dispositifs et autres preuves de concept basées sur des effets particuliers. Pour l'électronique, on peut citer, par exemple, les transistors subthermioniques<sup>5</sup>, les dispositifs neuromorphiques ou memristifs<sup>6-8</sup>. Les hétérostructures de matériaux 2D permettent aussi la réalisation de spectromètres miniatures,<sup>9</sup> la filtration de l'eau,<sup>10</sup> la condensation des excitons<sup>11</sup>, la twistronique,<sup>12,13</sup> l'étude de modes de transport thermique atypiques,<sup>14</sup> et plus récemment la straintronique.<sup>15-17</sup>

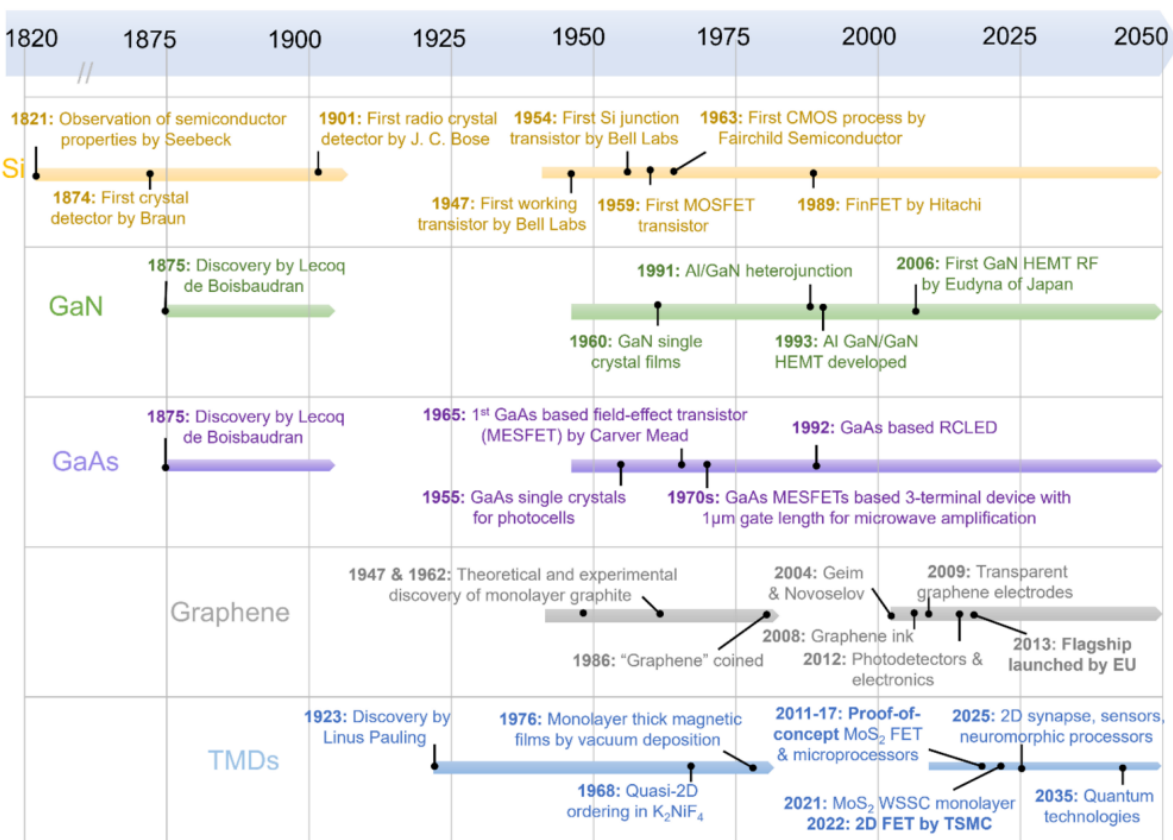


Figure 2 – Chronologie de découverte et implémentation des technologies de la micro-electronique suivant le type de matériau. Outre les longs intervalles de temps entre la période de découverte, la période d'intérêt et d'activité expérimentale intensive, ce graphique met en évidence les échelles de temps relatives en matière de recherche et développement consacrées à chaque type de matériau. Provient de la référence<sup>18</sup>.



Les propriétés des matériaux 2D recouvrent en grande partie les propriétés des matériaux 3D. Pour chaque type de comportement d'un matériau 3D, électrique, optique, mécanique ou thermique, il existe probablement un matériau 2D présentant des caractéristiques analogues. De fait, les applications optiques et électriques des matériaux 2D couvrent l'ensemble du spectre électromagnétique : du visible, en passant par l'ultraviolet et l'infrarouge, vers les basses énergies dans le domaine du THz jusqu'au ondes radios (voir Figure 3 qui provient de la référence <sup>19</sup>).

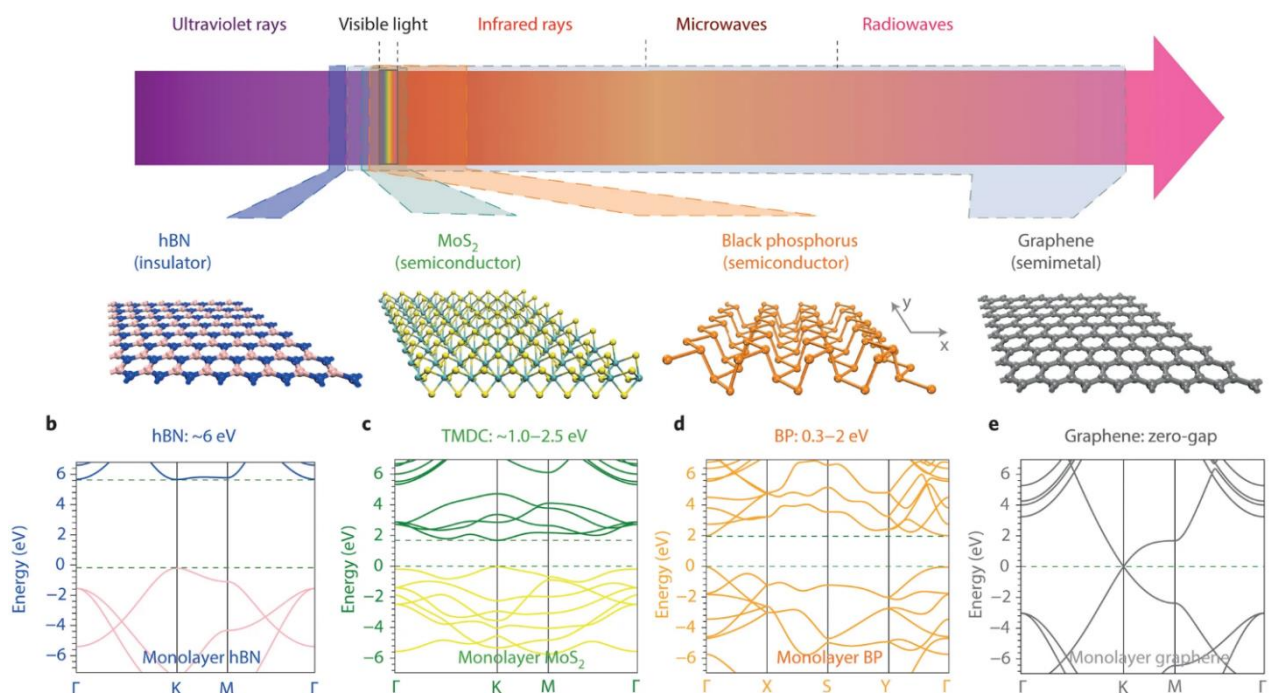


Figure 3 - Diversité des matériaux 2D. Les matériaux 2D présentent un large panel de propriétés optoélectroniques allant d'isolant, comme le hBN, à semiconducteur à gap direct ou indirect pouvant couvrir tout le spectre de lumière visible comme les TMDs sans oublier le graphène semimétallique qui peut couvrir les applications allant du THz aux ondes radios. Provient de la référence <sup>19</sup>.

## 1.2. LA STRAINTRONIQUE DANS LES MATERIAUX 2D

Les matériaux 2D présentent des propriétés mécaniques intéressantes grâce à l'anisotropie entre les liaisons covalentes fortes entre atomes dans le plan par rapport aux liaisons van der Waals hors plan, plus faible mécaniquement. Ils sont extrêmement résistants aux déformations dans le plan du feuillet atomique mais du fait de leur

extrême finesse, ils sont extrêmement mous et malléables. Leur masse est aussi très faible. Cette combinaison de légèreté, dureté et de grande déformation permet aux matériaux 2D d'être un choix de prédilection pour nombres d'applications en (nano)-mécanique.

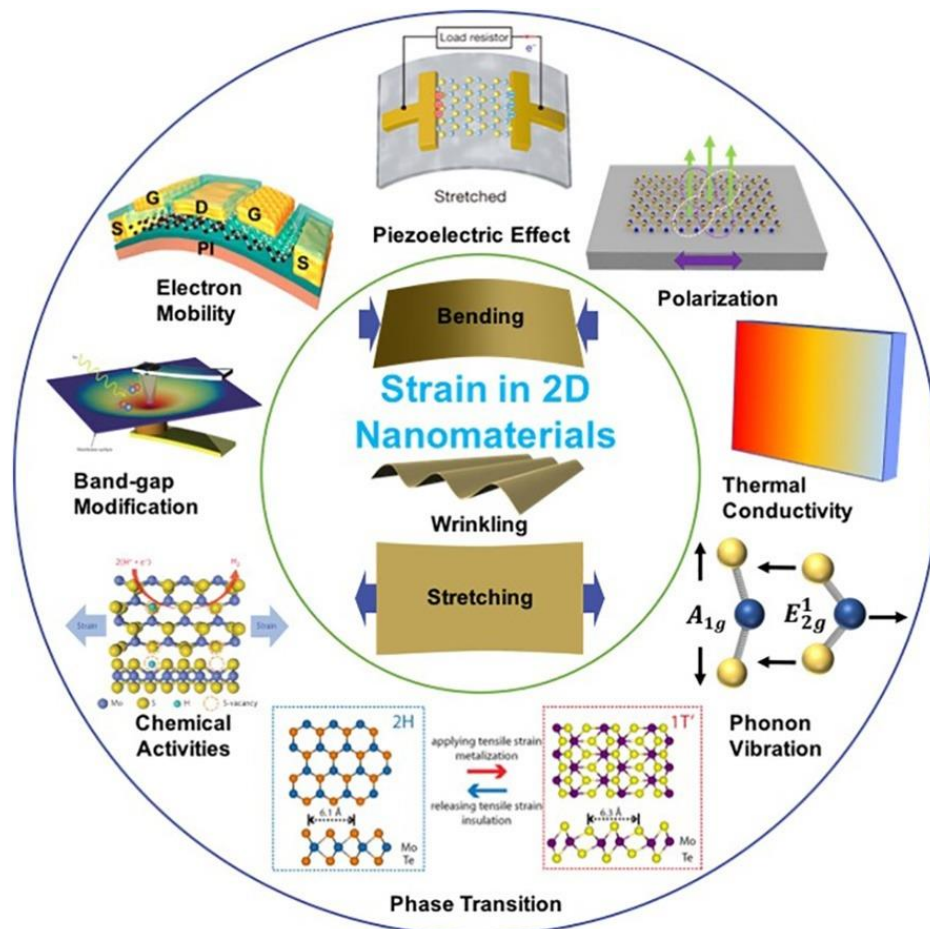


Figure 4 – Différentes applications de recherche de straintronique pour les matériaux 2D allant de l'électronique flexible aux effets piezo électriques en passant par la nanoindentation par pointe AFM. Référence <sup>20</sup>.

L'assemblage de propriétés optiques et électroniques atypiques avec des propriétés mécaniques tout aussi inusuelles, a donné naissance à champs de recherche particulier : la straintronique. Cette dernière qui peut être définie comme l'ingénierie des propriétés physiques des matériaux (électroniques, optiques, thermiques et mécaniques) par la modification de l'état de contrainte. Pour cela, il faut pouvoir allonger ou comprimer un matériau 2D efficacement et sans dommage (Figure 4).

La straintronique est la modulation et le contrôle de propriétés électroniques par l'ingénierie de leur déformation à l'échelle macro et nanométrique.<sup>20-22</sup> Dans le cadres des matériaux 2D, elle est principalement utilisée pour moduler la réponse optique<sup>16,23-25</sup> ou créer des sources d'émission quantique. Ceci est particulièrement intéressant car les matériaux 2D peuvent supporter plus de 11 % de déformation pour les TMDs semiconducteurs,<sup>26</sup> et l'énergie excitonique est décalée de -125meV par % de déformation en extension.<sup>27</sup> En déformant une zone restreinte, il est donc possible d'obtenir l'émission de photons à cet endroit et à une énergie bien inférieure à celle du matériau non déformé. Une réalisation expérimentale<sup>28</sup> montre que ces photons peuvent montrer une très bonne cohérence quantique et ouvre des applications potentielles dans la génération de sources de photons cohérents. L'ajout d'un matériaux 2D magnétique permet d'obtenir à la fois une source optique de grande pureté de photons uniques (>95%) et un fort degré de polarisation optique des photons émis (0.89 pour une polarisation circulaire ).<sup>29</sup>

Pour une meilleure compréhension de la mécanique dans les matériaux 2D, nous allons succinctement définir quelques notions élémentaires. Un matériau peut être soumis à des forces extérieurs  $F$ . On définit les contraintes mécaniques comme la force appliqué sur une surface ( $S$ ) infinitésimale qui s'exprime comme une pression :  $\sigma = \delta F / \delta S$ .

En 3 dimensions, on définit le tenseur des contraintes avec des composantes  $\sigma_{i,j}$  selon les axes  $i$  pour le vecteur orthogonal à la surface et l'axe  $j$  pour l'axe du vecteur la force.

Sous l'effet de ces contraintes, une position  $x$  dans un volume est transformé en une nouvelle position  $x'$  avec  $x' = u(x)$ . Les déformations locales sont alors définies comme

$$\varepsilon = \frac{\partial(u(x) - x)}{\partial x} \quad (1)$$

Plus généralement le tenseur des déformations est tel que  $\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right)$ . Si on ne considère que de petites déformations locales dans l'axe  $i$ , nous avons  $u(x) = l/l_0 \cdot x$

avec la longueur du matériau au repos  $l_0$ , et la longueur  $l$  après extension la formule précédente donne une déformation  $\varepsilon$  (ou élongation dans ce cas précis) comme suit :

$$\varepsilon (\%) = 100 \times \frac{l - l_0}{l_0} \quad (2)$$

L'élongation est positive si le matériau s'étend et négative si le matériau se contracte.

L'énergie élastique s'écrit comme une intégrale sur le volume  $V$  :  $U_{\text{él}} = 1/2 \int \sigma \varepsilon dV$ .

Par la suite, dans le cas de petit déplacement et spécifiquement pour une membrane en matériau 2D, on appellera  $u$  le champ de déplacement radial et  $w$  le champ de déplacement transversal, avec  $r' = r + u$  en coordonnées cylindrique.

Quand le champ de déplacement est produit par une force extérieure  $F$ , on le nomme déflexion et la constante de raideur  $k$  est le rapport entre la force appliquée et cette déflexion. Dans le cas d'un ressort, on retrouve  $k = F/x$ , étant la déflexion radiale du ressort soumis à  $F$ . Dans le cas d'une poutre ou d'une membrane soumise à une pression hors plan, on définit la raideur flexionnelle  $k = F/w$ , le rapport entre la force et le déplacement (déflexion) hors-plan. Un paramètre caractéristique important, car non négligeable, dans une membrane 2D est la rigidité flexionnelle qui s'écrit  $D = Et^3/(12(1 - \nu^2))$ . Ce paramètre représente la facilité avec laquelle un matériau se courbe sous une contrainte mécanique. La dépendance en  $t^3$  avec l'épaisseur de la membrane  $t$  rend ce terme très petit pour les matériaux fins. A l'extrême, les matériaux 2D vont se courber très facilement avec n'importe quelle force extérieure.  $E$  est le module de Young et  $\nu$  le coefficient de Poisson du matériau.

Une particularité des matériaux 2D est leur très grande résistance aux contraintes mécaniques avec une très grande robustesse dans le plan. Dans un régime élastique, la contrainte, est proportionnelle à la déformation par le module de Young, c'est la loi de Hooke,  $\sigma = E\varepsilon$ .

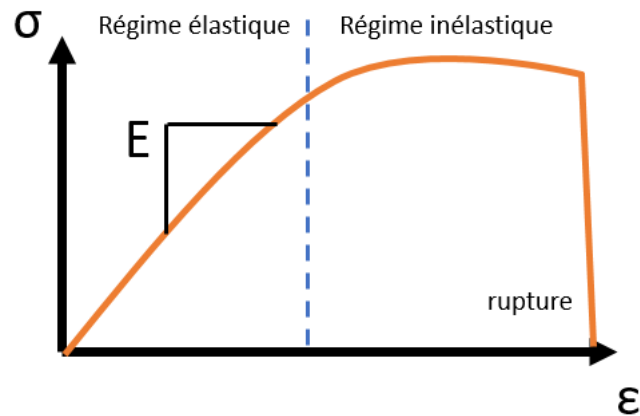


Figure 5 - Courbe des contraintes en fonction des déformations typique avec les trois régimes représentés : le régime élastique linéaire, plastique et la rupture quand un matériau devient fragile.

Le graphène présente un module de Young  $E = 1000 \text{ GPa}$  qui est une valeur extrêmement élevée, plus grande que l'acier et le béton. Cependant, le graphène présente une forte capacité à résister en même temps aux déformations par compression et tension, avec des élongations pouvant aller jusqu'à 25%.<sup>30</sup> Dans le plan, le graphène est donc plus rigide que l'acier dans le plan atomique, mais aussi possède une plus grande pression de rupture que des matériaux plastiques comme le Polyimide. (Voir Figure 6)

En plus du graphène, les autres matériaux 2D sont aussi très robustes dans le plan avec des modules de Young allant jusqu'à  $E = 270 \text{ GPa}$  pour le  $\text{MoS}_2$ , tout en conservant une grande résistance aux grandes déformations mécaniques, pouvant aller jusqu'à 11% pour le  $\text{MoS}_2$ .

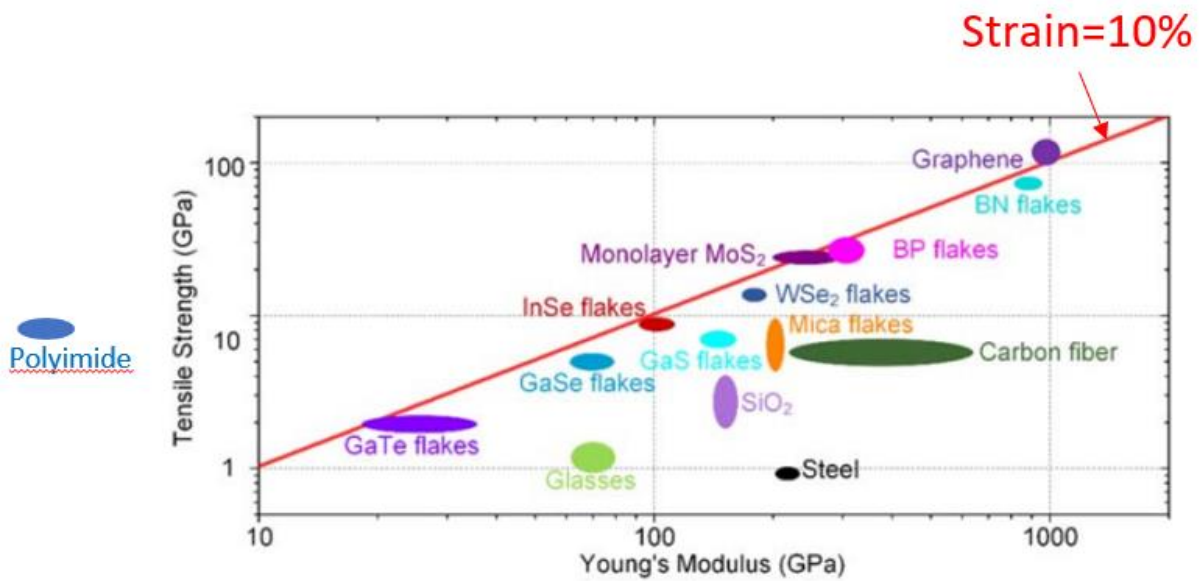


Figure 6 - Différents matériaux, dont des matériaux 2D en fonction du Module de Young et de la pression de rupture des matériaux. La ligne rouge représente une élongation maximum avant rupture de l'ordre de 10%. Modifié à partir de la référence <sup>30</sup>.

Grâce à cette résistance à l'extension, les matériaux 2D sont parfaits pour des applications pour de l'électronique flexible. Pour les TMDs piézo-électriques, comme le MoS<sub>2</sub> monocouche, il est alors envisageable de convertir une extension mécanique en tension électrique ou de détecter électriquement les déformations du matériau.

Matériau	Module de Young (Gpa)	Elongation de rupture (%)	Epaisseur(nm)
Acier inoxydable	205 <sup>26</sup>	0.4 <sup>26</sup>	
Silicium	100-170 <sup>31</sup>	2.5-5 <sup>31</sup>	50-200
Polyimide	2.5	9	
Graphene	1000 1025 <sup>32</sup>	25 <sup>30</sup> 11 <sup>33</sup>	0.33
WSe <sub>2</sub>	167 <sup>34</sup>	7.3 <sup>34</sup>	0.7
MoS <sub>2</sub>	270 <sup>26</sup> 264 <sup>32</sup>	6-11 <sup>26</sup>	0.65
WS <sub>2</sub>	272 <sup>32</sup>	3 <sup>35</sup>	0.65

Tableau 1 – Différents matériaux typiques avec leur module de Young, L'élongation de rupture et les épaisseurs. On observe la spécificité des matériaux 2D qui possèdent à la fois un grand module de Young, donc une très grande rigidité et une très bonne résistance mécanique aux contraintes donc des extensions records pour des cristaux.

La très forte rigidité dans le plan des matériaux 2D est cependant à mettre en perspective avec l'extrême anisotropie des propriétés mécaniques. Hors du plan, la cohérence du matériau est maintenue par les liaisons van der Waals de faibles énergies et les matériaux 2D sont donc très fragiles. Dans cette direction, les régimes élastique et inélastique n'existent quasiment pas à quelques exceptions près, comme pour l'InTe<sup>36</sup>. Cette rupture facile hors du plan est la raison première des techniques expérimentales d'exfoliation mécaniques.

De même, la rigidité flexionnelle d'un matériau 2D reste très faible en raison des épaisseurs extrêmement faibles. C'est pourquoi ces matériaux possèdent à la fois de très grand module de Young et des constantes de raideur extrêmement faibles.<sup>37</sup>



### 1.3. LES MEMBRANES SUSPENDUS 2D ET LES RESONATEURS MECANIQUES

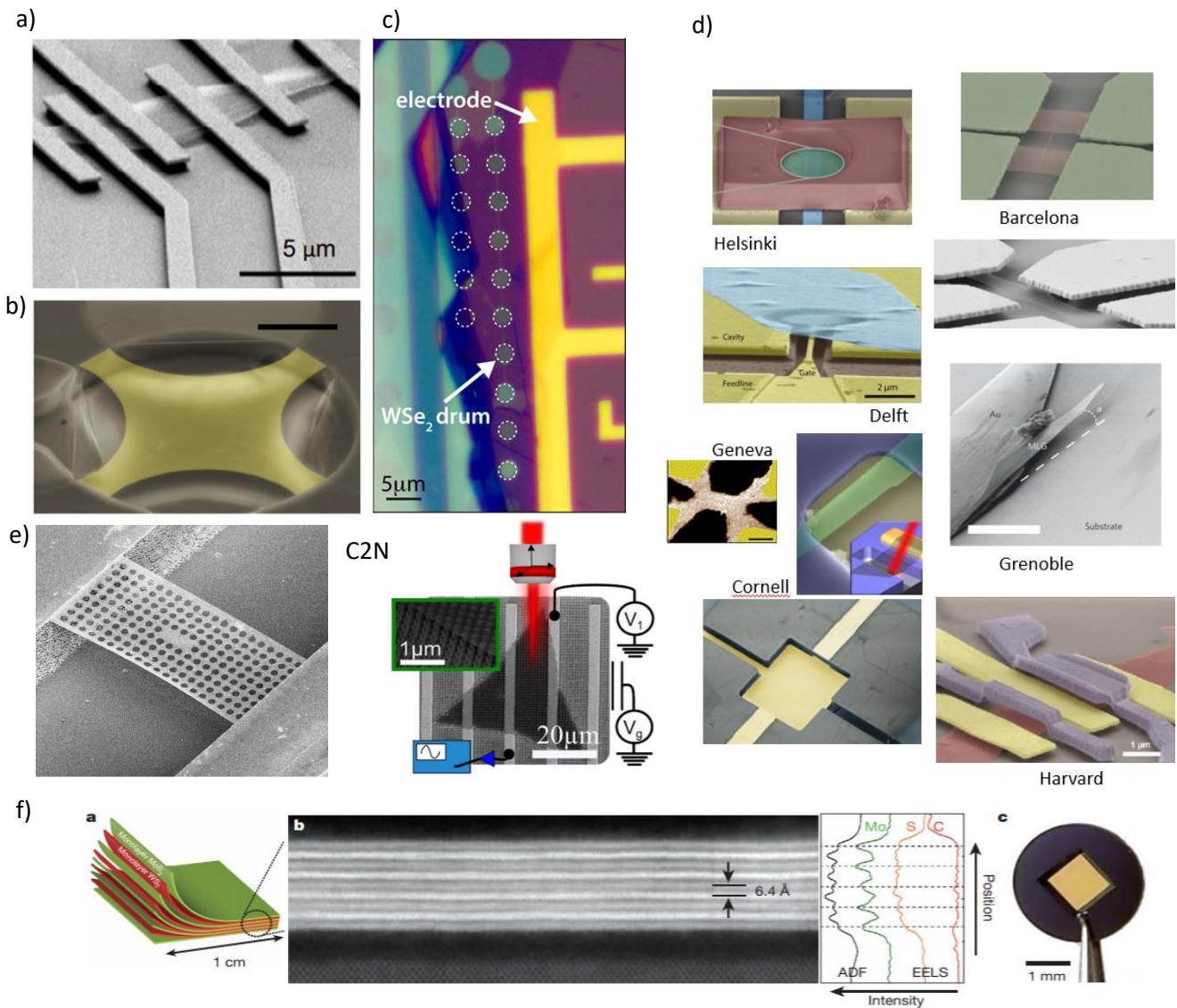


Figure 7 - Exemples de dispositifs 2D suspendus. a) Membranes de graphène reliées à des électrodes (référence <sup>38</sup>) b) Bolomètre en graphène (référence <sup>39</sup>). c) Tambour en  $WSe_2$  présentant un facteur de qualité supérieur à 47000 à température cryogénique (Référence <sup>40</sup>). e) des membranes de graphène et  $MoS_2$  fabriqués au C2N (référence <sup>41</sup> et <sup>7</sup>) d) bien d'autres réalisations de matériaux 2D suspendu dans différents groupes à travers le monde. f) Une très large hétérostructure suspendue faite de  $WSe_2$  et  $MoS_2$  (référence <sup>42</sup>).

Nous allons maintenant discuter des propriétés mécaniques dynamique des matériaux 2D. La communauté a réussi depuis 2009 <sup>38</sup> (Figure 5) à fabriquer des membranes suspendues de matériau 2D et à les faire vibrer, exactement comme des tambours. La



fréquence de ces vibrations est très sensible aux déformations et à l'état de contrainte de la membrane et on peut aisément détecter des transitions de phase cristalline ou la propagation de certains défauts structuraux. L'utilisation de ces vibrations pour sonder la matière condensée est donc un sujet riche, avec de nombreux nouveaux concepts et expériences.

### 1.3.1. DETECTION DE MASSE ET DE FORCE

Les résonateurs mécaniques à l'échelle nanométrique détiennent le record de la détection de masse<sup>43</sup> et de la détection de force<sup>44,45</sup> (Figure 6). Les modes vibrationnels des matériaux 2D sont également très utiles pour concevoir des détecteurs<sup>46,47</sup> ou des bolomètres efficaces ( $\text{pW} / \text{Hz}^{0,5}$ )<sup>39</sup>, sensibles à la température, à la conductivité thermique et à la chaleur spécifique.<sup>48</sup> Il a été démontré que la nanomécanique est un outil puissant pour sonder les transitions de phase dans les matériaux 2D ou d'autres problèmes de matière condensée dans ces systèmes.<sup>7,49</sup>

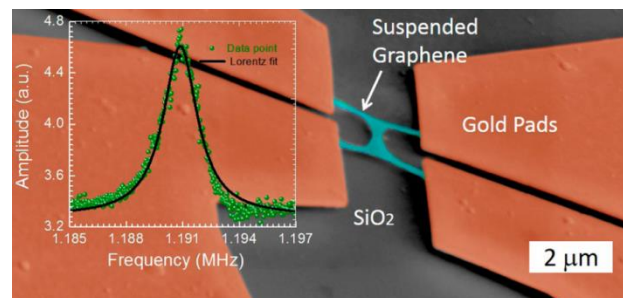


Figure 8 -Exemple de détecteur de force et de masse à base de graphène avec une sensibilité en masse de  $\delta m = 1,41 \cdot 10^{-21} \text{g}$  et en force de  $\delta F = 1,6 \cdot 10^{-17} \text{N}$  pour un facteur de qualité de 1000 à température ambiante. Référence <sup>46</sup>.

## 1.3.2. INGENIERIE DES VIBRATIONS : MODULATION DES RESONANCES, COUPLAGE

### MECANIQUE ET RESEAUX PHONONIQUES

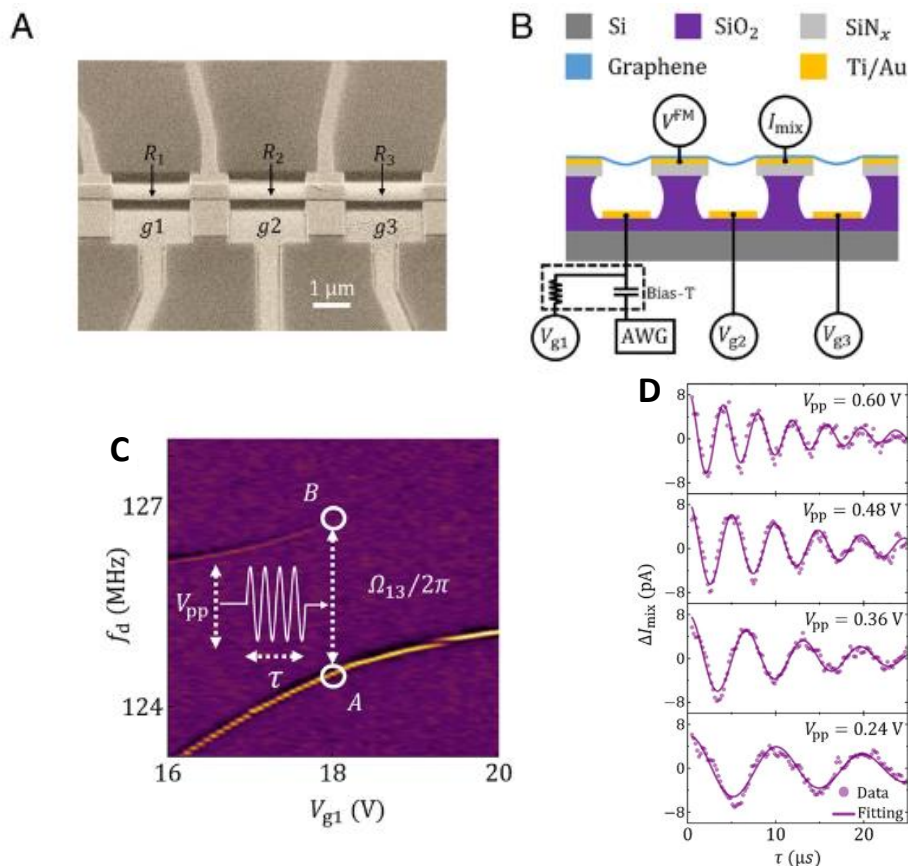


Figure 9 – Mesure du couplage entre plusieurs résonateurs et oscillations de Rabi. a) et b) image au microscope électronique et schéma du dispositif. c) intensité du signal de résonance en fonction de la fréquence de mesure et la tension de grille. On voit l'anticroisement et le couplage cohérent entre les 2 modes mécaniques. d) Mesure temporelle de l'amplitude du mode en fonction du temps, et à différentes tensions de grille. On reconnaît les oscillations de Rabi, relié au transfert d'informations entre les deux modes mécaniques. Tiré de la référence <sup>51</sup>.

Des résonateurs nanomécaniques sont actuellement intégrés dans les téléphones, comme filtres ou accéléromètres. Une des problématiques est qu'il est particulièrement difficile d'accorder efficacement la fréquence de vibration d'un nano-résonateurs, alors qu'il est facile de varier la fréquence sur plus d'une octave de la résonance d'une corde de guitare (macroscopique). Accorder sur une octave revient à doubler la fréquence de résonance. Pour les nano-résonateurs conventionnels basés sur le matériau silicium, les modulations de la fréquence de résonance dépassent rarement 1% de la fréquence. A

l'inverse, nous verrons par la suite que le chauffage thermique peut être une solution fiable pour accorder la fréquence mécanique de résonance d'une membrane de matériau 2D suspendu sur plus d'une octave.<sup>50</sup>

La capacité à moduler et manipuler les vibrations et les modes de résonances peut aussi être abordée par des moyens plus traditionnels. La géométrie des résonateurs est un paramètre extrêmement important dans l'acoustique ou la mécanique. L'optimisation des modes passe par le design des résonateurs 2D.

La géométrie des dispositifs suspendus de matériaux 2D est devenue de plus en plus sophistiquée depuis 2009 et le premier résonateur mécanique suspendu en graphène<sup>38</sup>. Le facteurs de qualité des résonateurs a aussi évolué pour atteindre des valeur qui dépassent  $10^5$  à basse température et  $4 \times 10^4$  pour les TMDs<sup>51-53</sup>. Les facteurs de qualité à l'ambiante peuvent atteindre  $10^3$  à l'heure actuelle, voir quelques  $10^3$  avec les échantillons présentés dans cette thèse. La taille des membranes atteint désormais quelques millimètres même si cela reste difficile à réaliser.<sup>42</sup>

Pour approfondir encore plus l'ingénierie des modes de résonances des matériaux 2D, la communauté s'est tournée vers l'optimisation du couplage entre modes mécaniques en contrôlant les matériaux et la géométrie des résonateurs. D'abord entre les différents modes d'un même résonateur<sup>54,55</sup> puis entre les modes de différents résonateurs séparés spatialement (Figure 7). Des mesures ont été faites dans des régimes de couplage fort et avec des transfert d'énergie ou d'information<sup>51,56</sup> entre des résonateurs séparés spatialement.

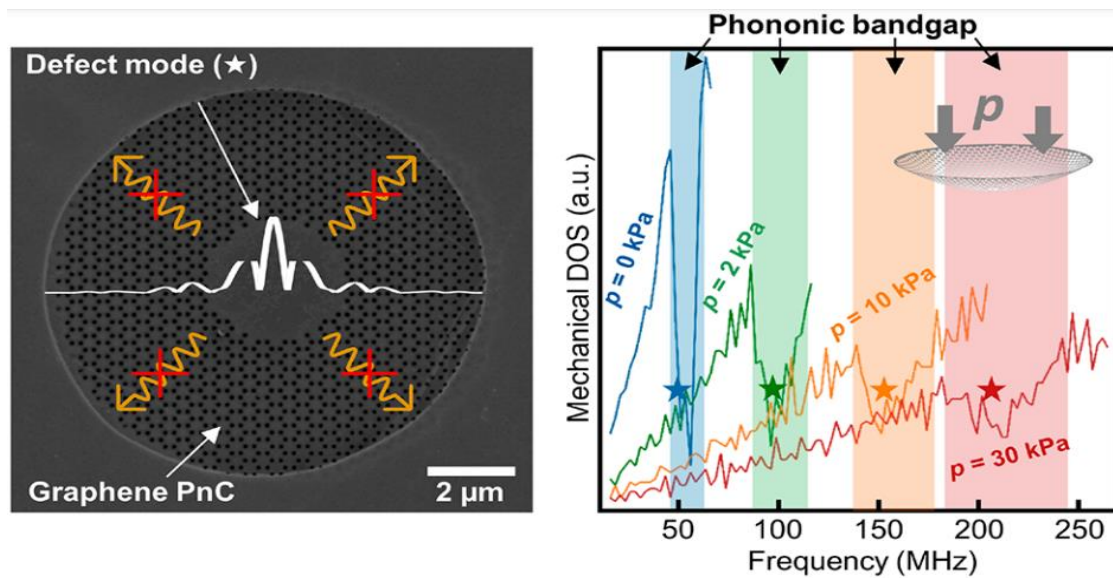


Figure 10 – Membrane de graphene suspendu et nanostructuré pour former un réseau phononique. Mesure de la bande interdite de phonons à différentes pressions appliquées. Référence <sup>57</sup>.

Dans le domaine de la phononique, les motifs périodiques contrôlent les vibrations et donc le flux de chaleur et le transport du son dans la matière. Les bandes interdites qui apparaissent dans les cristaux phononiques (PnC) permettent l'établissement de modes vibrationnels à faible dissipation<sup>58-60</sup> et ce qui ouvre la voie vers applications comme les qubits mécaniques, des guides d'ondes efficaces<sup>61</sup> et la détection de pointe. Dans la référence <sup>57</sup>, l'équipe de Kirill Bolotin a récemment réussi à combiner la phononique et les matériaux 2D (Figure 8).

## CHAPITRE 2 : MODELE MECANIQUE D'UNE MEMBRANE 2D CIRCULAIRE, COUPLAGE ET INDENTATION

---

Dans cette section, nous proposons de décrire les modèles mécaniques qui s'appliquent tambours suspendus de matériaux 2D. Nous allons souvent faire une première approximation consistant à décrire ces systèmes comme des membranes très fines en épaisseur que nous nommerons  $t$  comparativement au rayon  $R$  ( $t \ll R$ ). Cet objet continu présente une très faible rigidité de courbure mais un module d'Young très élevé. Nous décrirons tout d'abord la déformation lorsque cette membrane est soumise à une force électrostatique et à l'indentation d'une pointe. Nous décrirons ensuite les modes de vibration de la membrane, puis les couplages mécaniques qui peuvent exister entre deux membranes juxtaposées. Enfin, nous aborderons ces déformations en régime statique et dynamique.

L'ensemble nous servira de base pour décrire l'interaction entre la mécanique des matériaux 2D et de nombreux autres facteurs comme l'expansion thermique, la modification de la photoluminescence et les couplages mécaniques cohérents, tels qu'abordé plus tard dans les chapitres expérimentaux.

Il existe différentes méthodes pour appliquer des contraintes mécaniques à des matériaux 2D. :

- 1) Il est possible d'étirer un substrat flexible, de déposer le matériaux 2D et de relâcher l'ensemble ; des plissements apparaissent dans le 2D et correspondent à un flambage du matériau. Même si les contraintes sont fortement relâchées, il existe toujours une compression de l'ordre de **2%** dans le matériau 2D. <sup>15</sup>
- 2) Il est possible de fléchir le substrat hôte. Des elongations de l'ordre de **1.5%** ont été mesuré avec cette méthode. <sup>62</sup>
- 3) Il est possible de déposer les matériaux 2D sur des réseaux de piliers verticaux, les elongations typiques obtenus expérimentalement sont de l'ordre de **2%**. <sup>16</sup>

Les élongations obtenues avec cette technique sont du même ordre que celles observées lors des expériences d'indentation mécaniques.

- 4) Il est possible de dilater un substrat en le chauffant. Cette technique permet d'obtenir des élongations de l'ordre de **1%** sur les matériaux 2D.<sup>63</sup>
- 5) Il est possible d'appliquer une force capacitive entre un matériau 2D suspendu et contacté électriquement par rapport à une grille métallique. Cette méthode assez ancienne<sup>38</sup> permet d'atteindre des élongations de l'ordre de **2%**.<sup>64</sup>
- 6) Il est possible de fabriquer des actuateurs mécaniques en formes de peignes et de déposer les matériaux 2D par-dessus pour les allonger<sup>65</sup>. Les élongations mesurées peuvent atteindre **10%** mais nécessitent un collage préalable du matériau 2D avec de l'époxy et une femtopipette.
- 7) Enfin, il existe toutes les variantes par indentation à base de pointes de microscope à force atomique (AFM). Les élongations records ont été obtenues avec ces méthodes de l'ordre de **25%** pour le Graphene et **11%** pour le MoS<sub>2</sub>.

Dans beaucoup d'expériences, la limite physique est en fait reliée à l'ancrage du matériaux 2D sur le support, qui ne permet pas de dépasser plus de 2% d'élongation.

Dans le régime de contraction, il est difficile d'éviter le flambage (plissement) du matériau 2D. Une possibilité est de jouer sur l'empilement des matériaux et un travail précédent effectué par le groupe du C2N a montré qu'il était possible de compresser un 2D jusqu'à 4% avec beaucoup moins de flambage mécanique.<sup>66</sup>

A l'inverse, les techniques d'indentation appliquent une élongation localisée spatialement, loin des ancrages mécaniques, et ce qui permet d'appliquer les contraintes mécaniques les plus extrêmes.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons aborder les méthodes d'indentation, de couplage capacitif et de dilatation thermique.

## 2.1. DEFLECTION MECANIQUE STATIQUE : CAS DE L'INDENTATION PAR UNE POINTE

Les expériences d'indentation d'une membrane constituée d'un matériau 2D suspendu utilisent généralement une pointe Silicium ou métallique pour « appuyer »

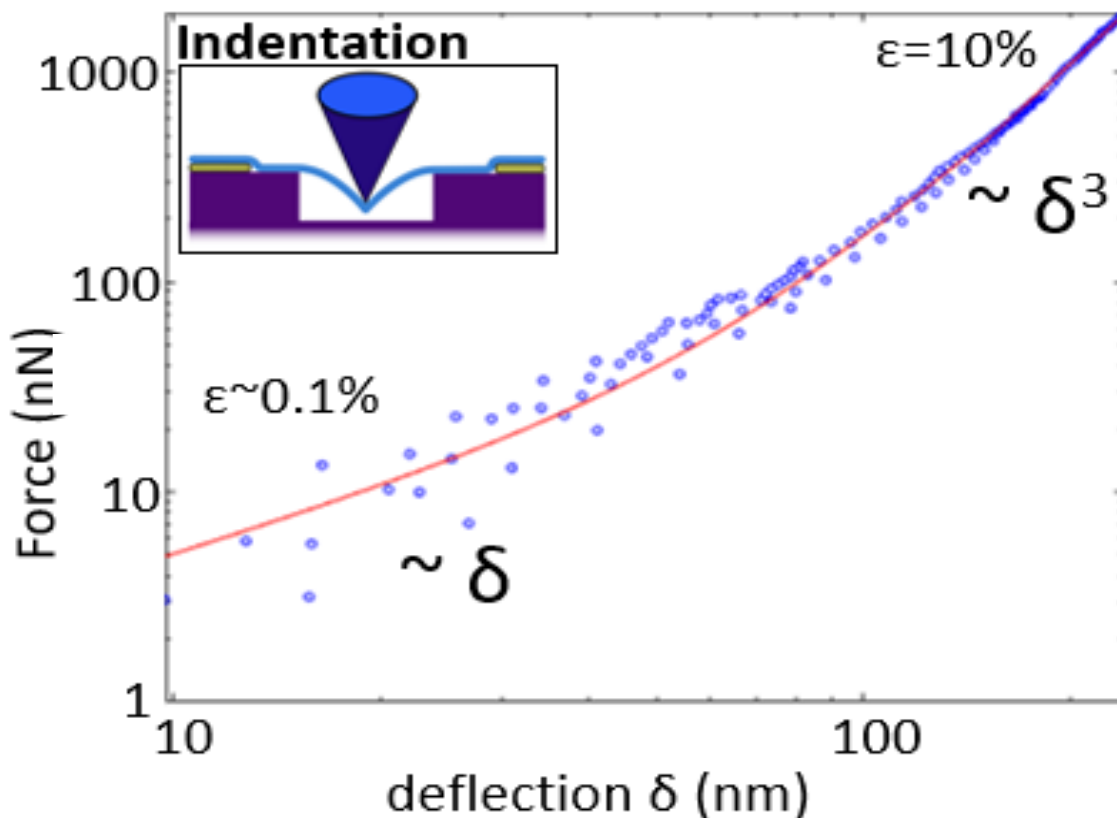


Figure 11 - Indentation d'une pointe AFM sur une membrane de matériaux 2D monocouche. Mesure de la force appliquée  $F$  en fonction de la déflexion  $\delta$  de la membrane. Il est possible d'extraire les elongations  $\epsilon$  au niveau de la pointe. En insert, le schéma de la pointe AFM appuyant sur une membrane 2D et fléchissant cette dernière de manière non uniforme.

localement sur la membrane, en contrôlant la force appliquée  $F$ . Typiquement, les membranes suspendues sont des disques de rayon  $R=2-3$  microns de diamètre et d'épaisseur  $t \sim 1$  nm. La pointe fait typiquement 20-40 nm de rayon  $r_{tip}$  à l'extrémité. Pendant l'indentation, dans un régime limite proche de la rupture mécanique, la déflexion verticale  $\delta$  de la membrane est proche de 200-300 nm.

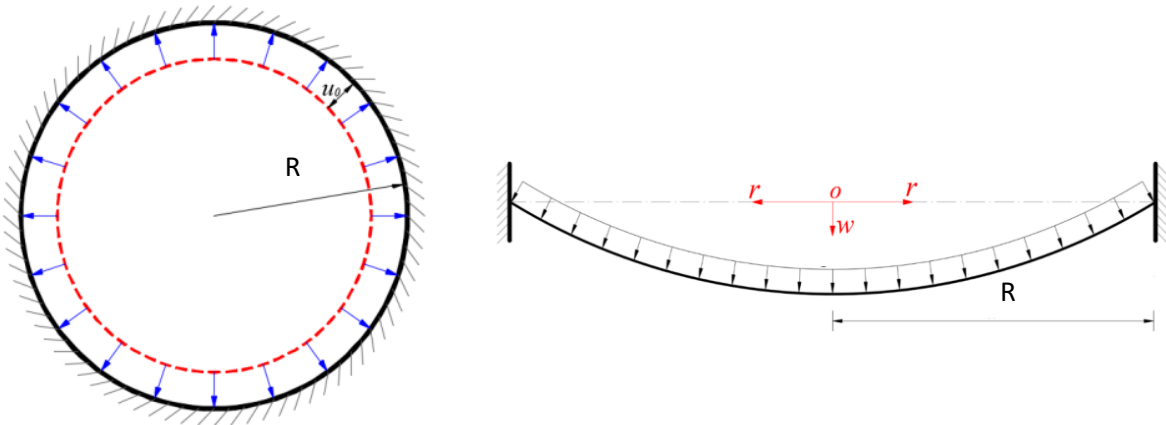


Figure 12 - Schéma des déplacements radiaux  $u$  et latéraux (hors-plan)  $w$  d'une membrane circulaire de rayon  $R$ . Adaptée depuis la référence 67. Sur le schéma la membrane est soumise à un champ de pression continu le long de la membrane.

Pour une première modélisation en géométrie cylindrique, nous considérons une plaque circulaire très mince, entièrement clampée à son périmètre. Nous nous plaçons dans la limite des membranes fines et nous négligeons la rigidité en flexion. En Figure 12, nous définissons  $u$  le champ de déplacement radial et  $w$  le champ de déplacement transverse. Le déplacement transverse au centre de la membrane ( $r=0$ ) est assimilé à la déflexion expérimentale  $\delta$  mesurée par la pointe ( $w(r=0) \sim \delta$ ). Le déplacement radial est dominé par la précontrainte  $u = \varepsilon_0 r$ .

En géométrie cylindrique, la déformation de la membrane  $\varepsilon(u, w)$  s'écrit donc :

$$\varepsilon = \frac{du}{dr} + \frac{1}{2} \cdot \left( \frac{dw}{dr} \right)^2 \quad (3)$$



### 2.1.1. MODELES DE POINTE

On considère ici plusieurs types de pointe appliquant une force sur une membrane (Figure 13). Cette déformation dépend de plusieurs paramètres de la membrane et de la pointe. En effet, le rayon de courbure de la pointe  $r_{tip}$ , la forme de la pointe et plus généralement la forme du point de contact influent sur la déformation globale de la

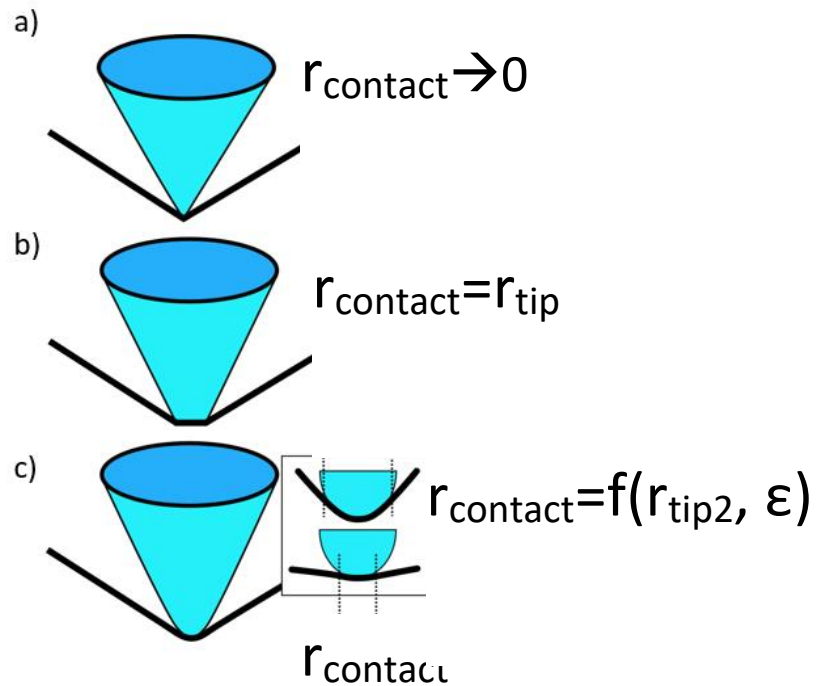


Figure 13 - Différentes formes de pointes. a) En première approximation, le rayon de la pointe est considéré comme très petit par rapport au rayon de la membrane. ( $r_{tip} \sim 0 \ll R$ ), il correspond au modèle standard typique (ou modèle de Schwerin). b) la pointe possède un sommet plat fini de rayon  $r_{tip} = 20\text{nm}$ . La surface de contact est fixe et  $r_{contact} = r_{tip}$ . c) La pointe est une surface ronde avec un certain rayon de courbure. Dans ce modèle, le rayon de la surface de contact,  $r_{contact}$  dépend de la déformation. On définit ici le rayon de courbure de la pointe comme étant  $r_{tip}^2$  pour le différencier de  $r_{tip}$ , et la déformation au niveau de la pointe comme étant  $\epsilon$ .

membrane. Il existe plusieurs modèles considérant différentes formes de pointes, tels que décrit dans la Figure 13.

### 2.1.2. MODELE D'INDENTATION, AU CENTRE, AVEC UNE POINTE INFINIMENT FINE

Le modèle le plus simple est de considérer une pointe infiniment fine à l'extrémité. On voit apparaître le terme sonde à charge ponctuelle dans la littérature. C'est le système

à la base du modèle de Schwerin.<sup>68 30,6365</sup> Ce modèle définit l'indentation d'une membrane avec une petite pointe de rayon zéro  $r_{tip}=0$ . La formule suivante décrit la relation entre la force appliquée  $F$  et la déflexion de la pointe  $\delta$ . C'est le modèle représenté sur la Figure 13-a.

$$F = \sigma_{2D} \cdot \pi \delta + E_{2D} \cdot \frac{q_1^3}{R^2} \cdot \delta^3 \quad (4)$$

$\sigma_{2D}$  est le terme de précontrainte,  $R$  est le rayon de la membrane. Le module de Young en 2D est  $E_{2D} = E \cdot t$  avec  $E$  le module de Young et  $t=0,7\text{nm}$  l'épaisseur de l'échantillon. On définit un paramètre  $q_1 = 1/(1.05 - 0.15 \cdot \nu - 0.16\nu^2)$  avec  $\nu = 0.19$  étant le coefficient de Poisson du matériau.

Sur la Figure 11, nous voyons que la dépendance  $F(\delta)$  est proportionnel à  $\delta$  pour les faibles déflexions puis proportionnel à  $\delta^3$  pour les fortes déflexions, ce qui correspond

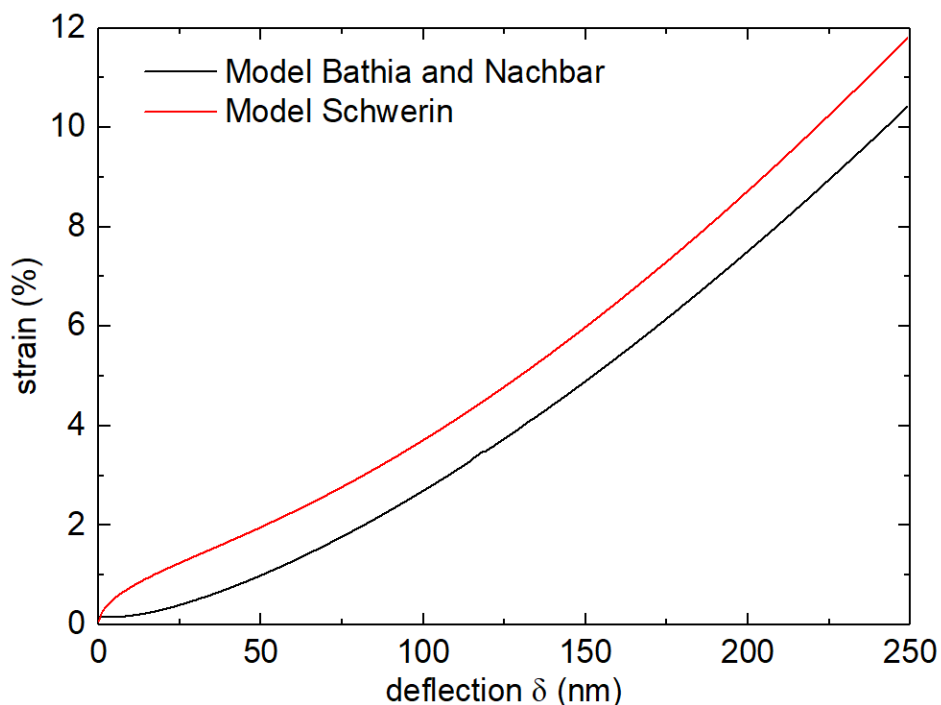


Figure 14- Déformation au centre de la pointe pour différents modèles en fonction de l'indentation. Nous représentons les deux modèles d'indentation : le modèle de Bathia et Nachbar (sonde de taille finie et arrondie)<sup>72</sup> et le modèle standard de type Schwerin.<sup>68</sup> (sonde ponctuelle). Nous en déduisons une déformation maximale de 10,3% au centre de notre membrane dans notre expérience.

bien à la formule de Schwerin. Les contraintes et déformations maximales sont les suivantes

$$\sigma_{max} = \sqrt{\frac{F \cdot Et}{4\pi \cdot r_{tip}}} \quad (5)$$

$$\varepsilon_{max} = \frac{\sigma_{max}}{Et} = \sqrt{\frac{F}{4\pi \cdot r_{tip} \cdot Et}} \quad (6)$$

Ici,  $r_{tip}$  correspond au rayon de la pointe. On comprend bien l'ambiguïté et la limite d'un tel modèle où  $r_{tip}$  tend vers 0 et où les contraintes appliquées divergent totalement si  $r_{tip}$  tend vers 0. La dépendance de l'élongation en fonction de la déflexion centrale de la membrane est représentée sur la Figure 14.

### 2.1.3. MODELE D'INDENTATION EMPIRIQUE DE LA POINTE PLATE

Si l'on considère que la pointe est plate, (modèle b de la Figure 13), une simple approximation, qui a été confirmée expérimentalement, permet de considérer un modèle avec une dépendance en  $1/r$  au-delà du rayon de la pointe<sup>25,73</sup> et constante sur la partie plate. Nous utilisons les déformations  $\varepsilon_{max}$  obtenus dans le modèle de Schwerin pour définir les déformations au niveau de la pointe.

$$\begin{cases} \varepsilon(r) = \varepsilon_{max} \text{ when } r \leq r_{tip} \\ \varepsilon(r) = \frac{\varepsilon_{max} \cdot r_{tip}}{r} \text{ when } r > r_{tip} \end{cases} \quad (7)$$

Cette approximation est de prime abord très simple mais reste correct dans le cadre de faible indentation ne dépassant pas quelques pourcents, comme nous le verrons par la suite.

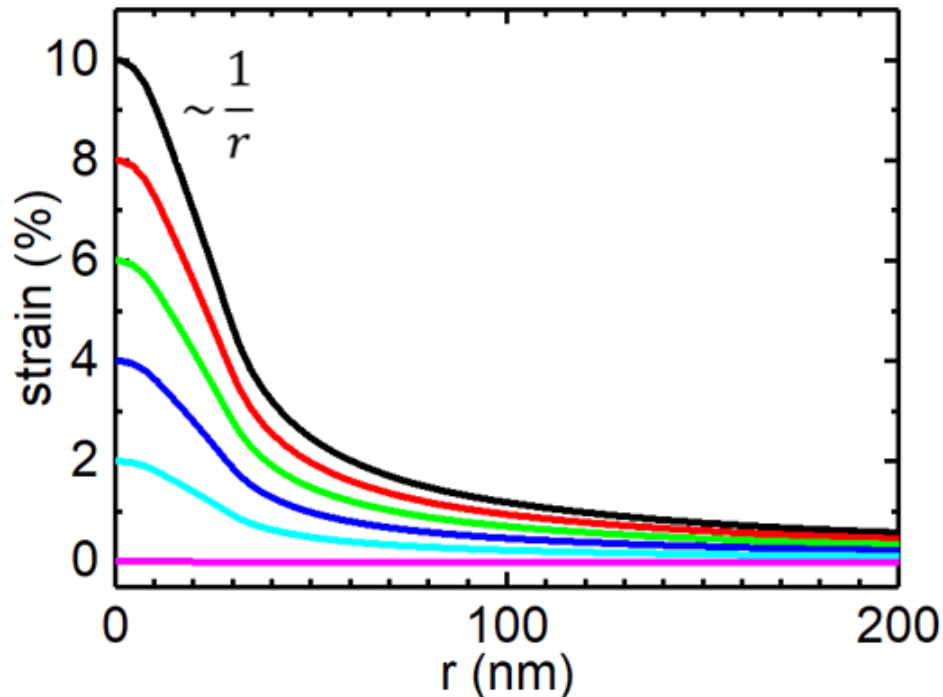


Figure 15- Déformation le long de la membrane. Modèle de déformation le long de la direction radiale de la membrane circulaire pour différentes indentations. Le modèle est une fonction  $\varepsilon \propto 1/r$  qui a été lissée afin d'éviter une certaine divergence dans le calcul de l'effet d'entonnoir. Chaque couleur correspond des elongations ou déflexion différentes à  $r=0\text{nm}$  (de 0 à 10% d'elongation radiale).

#### 2.1.4. MODELE D'INDENTATION AVEC UNE POINTE ARRONDIE

Les pointes AFM sont souvent mieux décrites en tenant compte d'un rayon de courbure au bout de la pointe que nous définissons par  $r_{\text{tip}2}$  pour ne pas confondre avec  $r_{\text{tip}}$ .  $r_{\text{tip}2}$  et  $r_{\text{tip}}$  sont égaux lorsque la déflexion est proche de 0. La problématique de l'indentation d'une membrane a été abordé dans le cadre d'une pointe ronde à l'extrémité et à faible rayon de courbure <sup>72</sup>. C'est le modèle de Bathia et Nachbar à partir des équations de Föppl-von Karman <sup>72</sup>. Ce modèle décrit l'indentation dans la limite où  $0 \ll r \ll R$  et dans le cas d'une indentation importante ( $\delta \gg 1$ ), avec un coefficient de Poisson compris entre  $0 < \nu < 0.5$ .

Nous utilisons des paramètres sans dimension  $\tilde{\delta} = N_{\delta} \cdot \delta$  et  $\tilde{F} = N_F \cdot F$  avec  $N_{\delta} = E_{2D}^{0.5} / (R \cdot \sigma_{2D}^{0.5})$  et  $N_F = E_{2D}^{0.5} / (R \cdot \sigma_{2D}^{1.5})$

$$\frac{\tilde{F}}{\tilde{\delta}^3} = q_2 + \left( \frac{6}{2\pi(1+\nu)} \right)^{\frac{1}{3}} \cdot q_2^{\frac{4}{3}} \cdot \left( \frac{r_{tip2}}{R} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (8)$$

Avec  $q_2 = 0.867 + 0.2773 \cdot \nu + 0.8052 \cdot \nu^2$

Cette formule nous permet de tracer, sur la Figure 16, l'évolution de l'élongation au centre de la membrane en fonction de la déflexion de la membrane au même endroit.

Nous avons tracé la variation de l'élongation

Nous nous sommes intéressés à la déformation engendrée le long de la membrane selon la référence <sup>74</sup>. Cette déformation suit une loi en  $1/\sqrt{r}$  dès lors que nous nous éloignons de quelques dizaines de nanomètre du centre de la pointe comme obtenus sur la Figure 16. D'après nos mesures, ce modèle semble valide même pour des valeurs

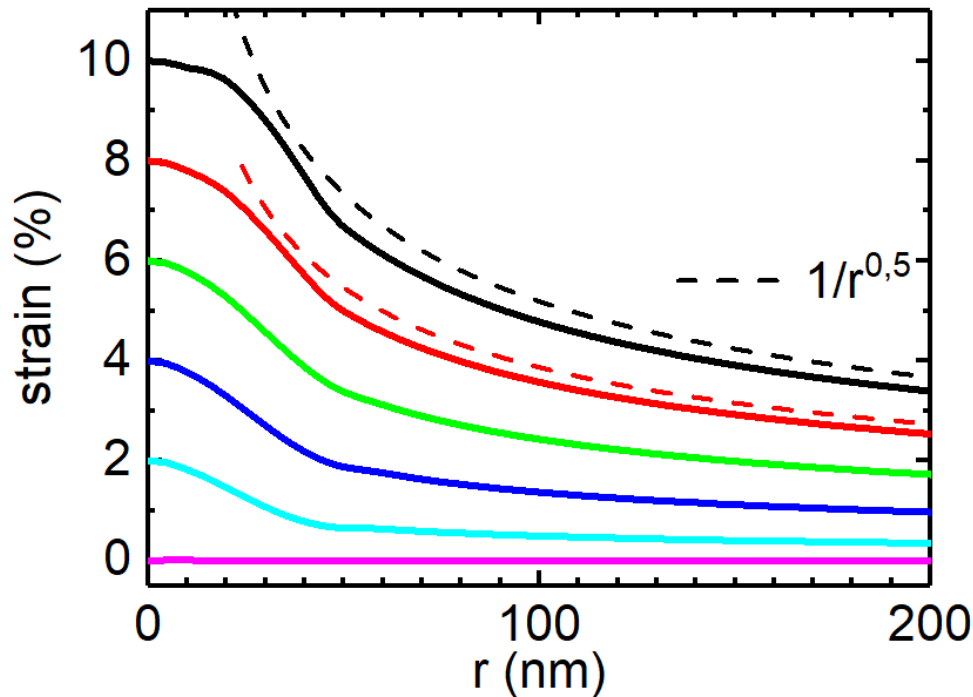


Figure 16 Déformation le long de la membrane. Modèle de déformation le long de la direction radiale de la membrane circulaire pour différentes indentations. La courbe a deux limites, l'une qui concerne la région de contact ( $r < 20\text{nm}$ ) et l'autre pour la partie suspendue ( $r > 40\text{nm}$ ). Chaque couleur correspond des élongations ou déflexion différentes à  $r=0\text{nm}$  (de 0 à 10% d'élongation radiale). En pointillés de la même couleur, la variation  $1/\sqrt{r}$  correspondante.

d'élongations de l'ordre de quelques pourcents. Plus de détails sur le modèle sont indiqués en Annexe B.

## 2.2. DEFLECTION MECANIQUE STATIQUE : CAS DE LA FORCE ELECTROSTATIQUE NON LOCALE

Comme sur la Figure 12 ou décrit sur la Figure 17, nous pouvons définir des champs de déplacement latéraux lorsqu'une membrane suspendue est soumise à un champ de contrainte comme l'effet d'une pression ou une force électrostatique. En coordonnées circulaires, la forme statique  $w(r)$  d'un résonateur à tambour complètement clampé est supposée être une forme parabolique ;

$$w(r) = z \left( 1 - \frac{r^2}{R^2} \right) \quad (9)$$

Avec  $z$  la déviation à  $r=0$  et  $R$  le rayon de la membrane.

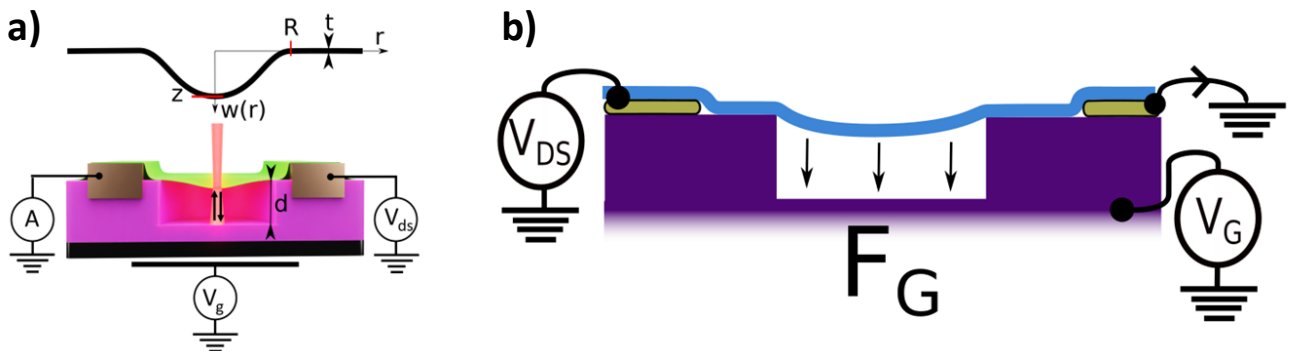


Figure 17 – Schémas de la déflexion de la membrane grâce à une force électrostatique. A) schéma montrant la déflexion de la membrane et les paramètres  $R$ ,  $t$ ,  $z$  et  $w(r)$ . b) L'application d'une différence de potentiel entre la membrane et une grille électrostatique crée une force électrostatique et induit une déflexion de la membrane.

Nous allons définir les énergies en jeu dans un tel système. Les démonstrations des différents termes se retrouveront en Appendice

Il faut considérer **l'énergie élastique  $U_{el}$**  d'un tel système mécanique qui est soumis à une tension dans le plan  $T(z)$ .

$$U_{el} = \frac{1}{2} \cdot z^2 \cdot 2\pi \cdot T(z) \cdot + U_{init} \quad (10)$$

Le deuxième terme est l'énergie initiale  $U_{init}$  résultant de la contrainte initiale ;  $U_{init} = 1/2 \int \sigma_0 \epsilon_0 r dr d\theta$ . C'est l'intégrale sur le volume de la contrainte et de la déformation initiale

$T(z)$  dépend de  $z$  car une déflexion va engendrer forcément une variation de la tension mécanique aux bornes de la membrane. On définit la contrainte total  $T$  pour un petit angle  $d\theta$  appliqué à la membrane comme la somme des contrainte initiaux et de la contrainte due à la déflexion de la membrane pour le même angle, on a ;<sup>75</sup>

$$T(z) = T_0 + \frac{2}{3} \frac{Et}{(1-\nu^2)} \frac{z^2}{R^2} \quad (11)$$

Nous notons également que, avec une notation similaire et une symétrie centrale, **l'énergie de flexion  $U_B$**  est définie comme suit <sup>76</sup>;

$$U_B = \frac{1}{24} \frac{Et^3}{(1-\nu^2)} \int_0^{2\pi} \int_0^R \left( \frac{\partial^2 w}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 w}{\partial \theta^2} \right)^2 r dr d\theta \quad (12)$$

Contrairement au terme  $E_{el}$ , ce terme est en  $t^3$ . Pour cette raison, il sera négligeable la plupart du temps pour des épaisseurs inférieurs à quelques nanomètres.

Quand la membrane est contactée électriquement et suspendu par-dessus un contact métallique, nous avons **l'énergie électrostatique  $U_c$**  qui peut être développée pour des petites variations de la capacité avec la distance entre la grille et la membrane.

$$U_c = \frac{1}{2} \left( \frac{\epsilon_0 \pi R^2}{d^1} \right) V_g^2 + \frac{1}{2} \left( \frac{\epsilon_0 \pi R^2}{2d^2} \right) z V_g^2 + \frac{1}{4} \left( \frac{\epsilon_0 2\pi R^2}{3d^3} \right) z^2 V_g^2 \quad (13)$$

L'équilibre statique de la position d'équilibre  $z$  est atteint lorsque nous avons le minimum d'énergie avec  $\partial(U_{el} + U_C)/\partial z = 0$ .  $U_B$  étant pratiquement négligeable pour des monocouches.

Lorsque la membrane vibre à la fréquence  $\omega$ , les modes de vibrations ont une forme reliée aux déflexions verticales  $w$ . En ce qui concerne la contrepartie dynamique, la forme du mode d'une membrane circulaire peut être exprimée en utilisant  $J_0$ , la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 0<sup>77</sup>. La masse effective peut être obtenue à partir de l'expression de **l'énergie cinétique  $U_{cin}$** ;

$$U_{cin} = \frac{1}{2} m_{eff} \delta z^2 \quad (14)$$

Et aussi

$$U_{cin} = \frac{\rho}{2} \int_0^{2\pi} \int_0^R w(r)^2 r dr d\theta = 2\pi \frac{\rho}{2} \int_0^R \left( \delta z \cdot J_0 \left( 2.405 \frac{r}{R} \right) \right)^2 r dr \quad (15)$$

$$U_{cin} = 0.136\pi\rho R^2 \delta z^2$$

Où  $\delta z_n$  est l'élongation dynamique d'amplitude complexe au centre du mode. Pour le mode fondamental  $\lambda_0 = 2.405$ . Cela donne :

$$m_{eff} = 0.271\rho\pi R^2$$

Il faut noter qu'une modification de la contrainte dans le plan ne modifiera pas la position d'équilibre et ne créera pas de déflexion. En revanche, elle agira sur la fréquence de vibration. Une vibration est une déflexion oscillante ( $w \neq 0$ ) et une tension statique peut venir modifier cette fréquence de résonance.

### 2.3. DYNAMIQUE ET VIBRATION D'UNE MEMBRANE

Dans la thèse, je me suis efforcé de mesurer des vibrations mécaniques sur les mêmes membranes suspendues décrites précédemment. C'est pourquoi, je vais définir ici les



modes de vibrations d'une membrane en tant qu'oscillateur harmonique, les paramètres à retenir, introduire l'effet d'une force capacitive sur les vibrations, l'effet d'un couplage mécanique entre deux harmoniques du même mode, ou de deux résonateurs couplés ou d'un mode avec des harmoniques d'un signal électrique appliqué à la grille sous-jacente.

### 2.3.1. VIBRATION D'UN OSCILLATEUR MECANIQUE SIMPLE

Nous partons de l'équation du mouvement d'un oscillateur simple, comme une balançoire avec un enfant par exemple, avec  $x$  l'amplitude d'oscillation au centre du résonateur. Le régime reste non forcé à ce stade.

$$m\ddot{x} + \gamma\dot{x} + kx = F(t) \quad (16)$$

$$\ddot{x} + \frac{\omega}{Q}\dot{x} + \omega^2x = \frac{F(t)}{m}$$

Il y a 4 termes dont le terme d'accélération de Newton, une force de frottement traduite par un terme de d'amortissement  $\gamma$ , ou une dissipation mécanique, une force de rappel lié à la constante de raideur  $k$  du système et enfin toute forces extérieures appliquées

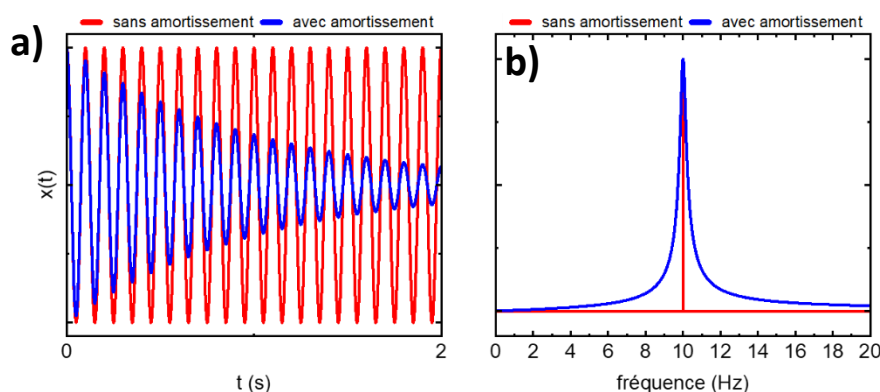


Figure 18 – Vibration mécanique. A) Oscillations autour de la position d'équilibre d'un oscillateur non amorti (en rouge) et d'un oscillateur amorti (en bleu) avec une décroissance exponentielle de l'amplitude de la vibration au cours du temps. B) Forme du spectre de fréquences de vibration d'un oscillateur non amorti (en rouge) qui est représentée par une fonction nulle partout sauf à la fréquence de résonance (ici 10Hz) et d'un oscillateur amorti (en bleu) qui présente un élargissement du pic de fréquence.

au système, ici noté  $F(t)$ . On note que  $k$  et la fréquence  $\omega$  du résonateur sont reliés comme :

$$\omega = \sqrt{\frac{k}{m}} \quad (17)$$

Et que le facteur de qualité d'un tel résonateur se définit comme  $Q = \frac{1}{\gamma} \sqrt{k/m}$ . Il est facile de représenter l'évolution de l'amplitude d'oscillation d'un tel résonateur, avec et sans dissipation, dans le temps et en fréquence.

### 2.3.2. VIBRATION D'UNE MEMBRANE EN SYMETRIE CIRCULAIRE SOUS TENSION ET AVEC UNE FORCE ELECTROSTATIQUE

La géométrie d'une fine membrane circulaire est plus complexe et demande de tenir compte de la déflexion  $w$  en chaque point car la principale différence réside dans la constante du ressort lui-même qui dépend de l'amplitude de la déflexion. Nous transformons la déflexion et la force locale en la somme d'un terme statique et d'un terme dynamique  $w \rightarrow w + w_{AC}$  et  $F_C \rightarrow F_C + F_{AC}$ . Dans cette section, nous oublions pour un temps la dissipation mécanique. L'équation du mouvement dans ce cas, est;<sup>78</sup>

$$\rho \frac{\partial^2 w}{\partial t^2} = -\kappa \nabla^4 w + T \nabla^2 w + \frac{F_C}{\pi R^2} \quad (18)$$

$\rho$  est la densité de masse 2D. Le premier terme à droite renvoie à la rigidité en flexion  $k$ . Nous savons que le terme de flexion est négligeable dans notre cas<sup>79</sup>. Le deuxième terme à la tension en 2D exercé sur la membrane. Le dernier terme renvoie à la pression exercée par la force capacitive  $F_C = dU_C/dz = -1/2 dC_g/dz V_g^2$  par unité de surface. En coordonnées polaires,  $\nabla^2$  s'écrit  $\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial r^2}$ . En considérant les conditions limites de clampage sur la circonférence de la membrane, la forme de mode de la résonance est :

$$w_{AC}(r, t) = \sum_{n=0}^{\infty} \delta z_n \cdot J_0 \left( \lambda_n \frac{r}{R} \right) e^{-i\omega_n t} \quad (11)$$

Lors de la vibration de cette membrane, la fréquence d'oscillation  $f_0$  peut à nouveau être décrite par un oscillateur harmonique avec une constante de ressort  $k$  et une masse effective  $m$  ;

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m_{eff}}} = \frac{2.405}{2\pi R} \sqrt{\frac{T_2}{\rho}} \quad (2)$$

$T_2$  est une tension renormalisé par rapport à la tension dans le résonateur et définie en Annexe C.

La constante de ressort peut être obtenue par la dérivation au second ordre de l'énergie potentielle totale. La constante de raideur est définie par  $k = \partial^2(U_{el} + U_C + U_{cin} + U_B)/\partial z^2$ .

Nous pouvons écrire l'équation complète de la fréquence de résonance du mode fondamental comme suit

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{2.405^4 \frac{Et^3}{12(1-\nu^2)R^4\rho} + 2.405^2 \frac{T_0}{R^2\rho} + 2.405^2 \frac{12}{3} \frac{Et}{(1-\nu^2)R^4\rho} z^2 - 1.23 \frac{\epsilon_0 V_g^2}{d^3\rho}} \quad (3)$$

Conclusion ; L'équation 24 à l'élégance de montrer qu'une élongation dans le plan de la membrane ne tient qu'à un seul terme, les autres étant relié à la déflexion ou à la rigidité de flexion. La démonstration montre aussi de manière claire, comment peut-on faire apparaitre le terme de « capacitive softening ».

## 2.4. COUPLAGE MECANIQUE

Dans la partie précédente, nous nous sommes intéressés à définir la mécanique d'une membrane de matériaux 2D, l'effet de la déflexion par la force capacitive et les vibrations mécaniques. La force capacitive n'est pas la seule responsable d'un effet sur la mécanique d'un 2D, nous allons ici, introduire le couplage entre deux membranes juxtaposées ou deux modes mécanique d'une seule membrane ou bien encore entre un couplage électromécanique entre une pompe qui est un signal électrique et la vibration mécanique. La nature du couplage n'est pas précisée ici mais elle peut être capacitive, optique comme purement mécanique, se sera d'ailleurs le cas dans le chapitre dédié (chapitre 6).

### 2.4.1. COUPLAGE MECANIQUE COHERENT

Le modèle qui suit est emprunté aux deux références <sup>80,81</sup>. On considère deux oscillateurs avec deux différents modes de vibrations et des amplitudes de déplacements  $x_1$  pour l'oscillateur 1 et  $x_2$  pour l'oscillateur 2 avec respectivement des fréquences de résonances  $\omega_1$  et  $\omega_2$  et des amortissements  $\gamma_1$  et  $\gamma_2$ . Les 2 oscillateurs sont connectés et couplés par un lien physique qui a pour intensité  $j$ . On applique une force périodique  $f_d$  de fréquence  $\omega_d$  sur l'oscillateur 1 qui initie le mouvement. Quand  $\omega_d = \omega_1$ , il y a résonance et l'amplitude de vibration de l'oscillateur 1 est maximale. L'oscillateur 1 vibre grâce à la force  $f_d$  et communique avec l'oscillateur 2 grâce au terme de couplage  $j$ . Toutes les paramètres des équations suivantes sont normalisés par les masses des oscillateurs. Dans ces conditions, l'équation de mouvement devient :

$$\begin{cases} \ddot{x}_1 + \gamma_1 \dot{x}_1 + \omega_1^2 x_1 = jx_2 + f_d \cos(\omega_d t) \\ \ddot{x}_2 + \gamma_2 \dot{x}_2 + \omega_2^2 x_2 = jx_1 \end{cases} \quad (22)$$

Cette équation peut être résolue analytiquement. La forme de la vibration en fonction de la fréquence  $f_d$  dépend de la position de la mesure (oscillateur 1 ou oscillateur 2). Les solutions possibles sont comme suit :

$$\begin{cases} A_1 = \frac{f_d \sqrt{\delta_1^2 + 1}}{\gamma_1 \omega_d \Delta} \\ A_2 = \frac{f_d |j|}{\gamma_1 \gamma_2 \omega_d^2 \Delta} \end{cases} \quad (22)$$

Avec  $A_1$  et  $A_2$  la forme des modes couplés mesurés sur l'oscillateur 1 et l'oscillateur 2 respectivement. Avec les termes :  $\delta_{1,2} = \frac{\omega_{1,2}^2 - \omega_d^2}{\gamma_{1,2} \omega_d}$ ,  $\Delta = \sqrt{(\Lambda + 1 - \delta_1 \delta_2)^2 + (\delta_1 + \delta_2)^2}$  et  $\Lambda = \frac{j^2}{\gamma_1 \gamma_2 \omega_d^2}$ . On notera que si le terme de couplage  $j = 0$ , le terme  $A_2 = 0$ , donc on ne peut rien mesurer sur l'oscillateur 2 s'il n'est pas excité par une autre force à une fréquence proche de  $\omega_2$ .

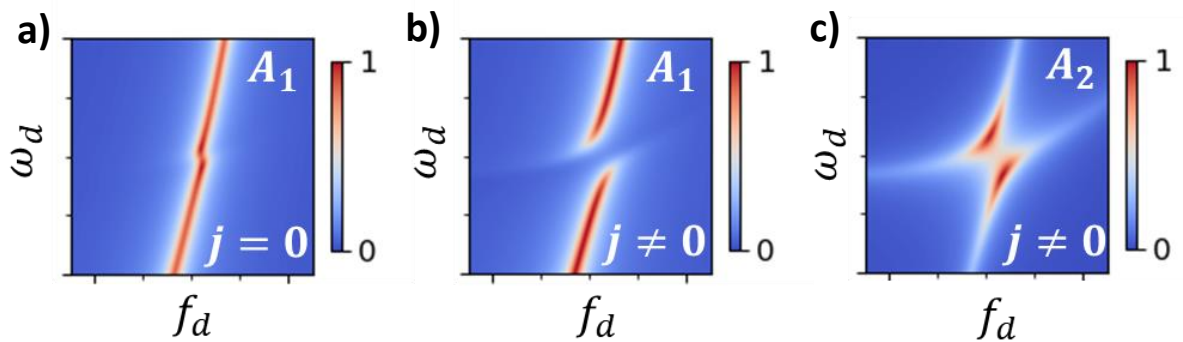


Figure 19 – Couplage mécanique entre 2 modes. a) Pas de couplage, les deux modes se croisent. b) Cas de couplage et de mesure de  $A_1$ . On observe l'apparition d'un anticroisement. c) Cas de couplage et de mesure de  $A_2$ .

#### 2.4.2. COUPLAGE MECANIQUE COHERENT ET RAIDEUR PARAMETRIQUE<sup>82</sup>

Considérons dans le cas d'un enfant sur une balançoire, si on le pousse avec une force périodique, l'oscillation de la balançoire continue avec la même amplitude. On parle d'un résonateur forcé qui apparaît comme non amorti avec un facteur de qualité apparent comme infini. Dans le cas où il n'y a personne pour le pousser, si l'enfant balance lui-même ses jambes à l'aller et au retour, il modifie périodiquement la constante de raideur de la balançoire, on parle alors d'oscillateur paramétrique. Dans ce cas aussi le système apparaît comme possédant un temps de vie infinie. Une tension de grille modifie la fréquence de nos membranes 2D et peut agir de la même manière que le mouvement des jambes sur une balançoire. Suivant la référence <sup>82</sup>, nous

considérons maintenant le même système mais en appliquant une force paramétrique avec la fréquence  $\omega_p$ . Nous allons aussi considérer le couplage intermode  $j$  entre les 2 modes  $\omega_1$  et  $\omega_1$  ainsi que le couplage intramode  $\Gamma$  au sein d'un même mode avec des fréquences qui sont induites par la pompe. L'équation du mouvement devient donc :

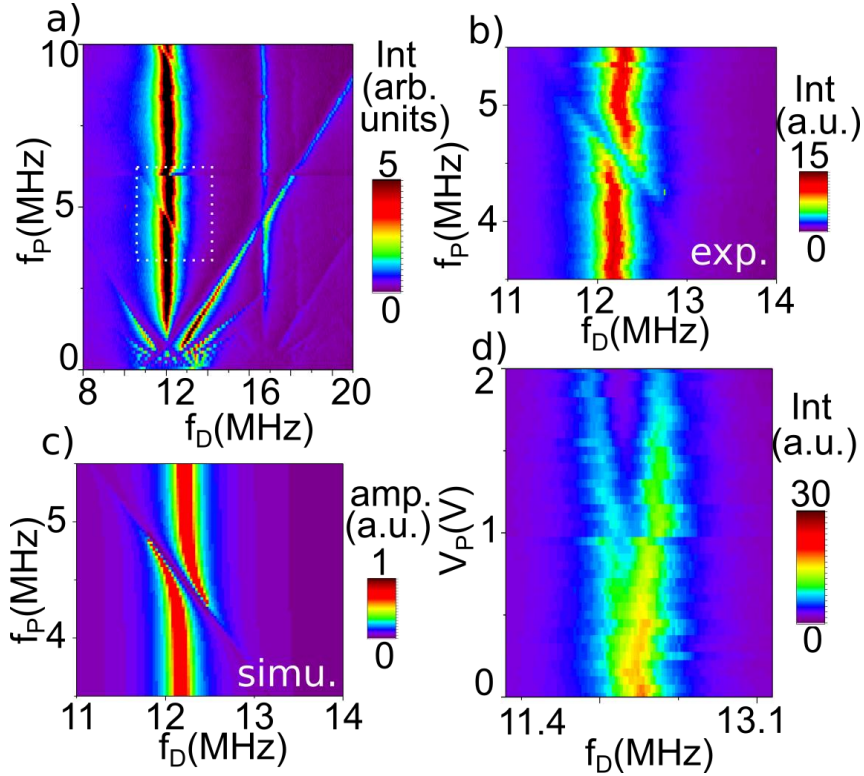


Figure 20- Couplage mécanique entre deux modes à  $f_1 = 12,2$  MHz et  $f_2 = 16,7$  MHz, a) couplage mécanique expérimental de 2 résonances en fonction de la fréquence de pompe  $f_p$  et de la fréquence de mesure  $f_D$  à  $V_G = 4$  V,  $V_{ds} = -5$  V,  $V_D = 10$  mV,  $V_p = 1.5$  V. b) Zoom du diagramme précédent à une tension d'excitation plus faible ( $V_D = 1$  mV) près de l'anti-croisement. c) La simulation correspondante du couplage intermode qui s'accorde parfaitement avec l'expérience. Un croisement est observable lorsque  $f_p \approx f_2 - f_1$  avec un zoom en c. Un autre croisement peut être observé à  $f_p = 9,5$  MHz entre  $f_1$  et un troisième mode à  $f_3 = 22$  MHz. d) Division du mode principal en fonction de  $V_p$  ( $V_D = 1$  mV,  $f_p = 4,5$  MHz) et de la fréquence de pompe  $f_p$ .  $f_1$  correspond au mode fondamental  $(n,m)=(0,1)$  d'une membrane circulaire. Tiré de la référence <sup>83</sup>

$$\begin{cases} \ddot{x}_1 + \gamma_1 \dot{x}_1 + (\omega_1^2 + \Gamma_1 \cos(\omega_p t))x_1 + j \cos(\omega_p t) x_2 = f_d \cos(\omega_d t + \phi) \\ \ddot{x}_2 + \gamma_2 \dot{x}_2 + (\omega_2^2 + \Gamma_2 \cos(\omega_p t))x_2 + j \cos(\omega_p t) x_1 = 0 \end{cases} \quad (23)$$

Nous écrivons explicitement les termes de couplage ici ;

$$\Gamma_{1,2} = \Gamma \left( 1 \pm \omega_1 \Delta\omega / \sqrt{c^2 + \omega_1^2 \Delta\omega^2} \right) \quad (25)$$

$$j = \Gamma \left( c/2\sqrt{c^2 + \omega_1^2 \Delta\omega^2} \right) \quad (26)$$

La résolution analytique de ces équations couplées est très compliquée mais on peut résoudre ces équations numériquement. Toutefois, de premières approximations peuvent être introduites. On considère les déplacements en fonction du temps des deux oscillateurs comme des séries de fonctions périodiques avec des fréquences qui sont des multiples de la fréquence de pompe avec des amplitudes  $a_m$  et  $b_m$ :

$$x_1(t) = Re \left[ \sum_{m=-\infty}^{+\infty} a_m e^{i(\omega \pm m\omega_p)t} \right] \quad (27)$$

$$x_2(t) = Re \left[ \sum_{m=-\infty}^{+\infty} b_m e^{i(\omega \pm m\omega_p)t} \right] \quad (28)$$

Les équations couplées du système deviennent en négligeant les dérivées secondes des amplitudes :

$$\begin{aligned} (2i(\omega + m\omega_p) + \gamma_1)\dot{a}_m + (-(\omega + m\omega_p)^2 + i\gamma_1(\omega + m\omega_p) + \omega_1^2)a_m + \frac{\Gamma_1}{2} \cdot a_{m+1} \\ + \frac{\Gamma_1}{2} \cdot a_{m-1} + \frac{j}{2} \cdot b_{m+1} + \frac{j}{2} \cdot b_{m-1} = f_d \cdot e^{i\delta} \cdot \delta_{m,0} \end{aligned} \quad (29)$$

$$\begin{aligned} (2i(\omega + m\omega_p) + \gamma_2)\dot{b}_m + (-(\omega + m\omega_p)^2 + i\gamma_2(\omega + m\omega_p) + \omega_2^2)b_m + \frac{\Gamma_2}{2} \cdot b_{m+1} \\ + \frac{\Gamma_{12}}{2} \cdot b_{m-1} + \frac{j}{2} \cdot a_{m+1} + \frac{j}{2} \cdot a_{m-1} = 0 \end{aligned} \quad (30)$$

Ces équations ne considèrent que les amplitudes de vibrations des oscillateurs 1 et 2. Les couplages intramodes sont représentés par les termes de couplages entre le mode  $m$  et  $m \pm 1$  induit par la pompe. Il crée des modes secondaires autour du mode principal. Le couplage intermode est représenté par les termes liant les amplitudes  $a_m$  aux amplitudes  $b_m$ . Ces équations introduisent les peignes de fréquence pour le couplage intramode dans les matériaux 2D, comme illustré en Figure 20, où dans la section appropriée (chapitre 6). Dans le cas où la fréquence de pompage  $\omega_p = 0$ , et que le couplage intramode  $\Gamma = 0$ , ces équations se simplifient et on retrouve les équations de la section précédente.





## CHAPITRE 3 : PREPARATION DES ECHANTILLONS ET METHODES EXPERIMENTALES

---

### 3.1. METHODES DE FABRICATION DES MATERIAUX 2D

Il existe différentes méthodes de fabrication de matériaux 2D mais on peut globalement les ranger dans deux catégories : les méthodes passant d'un cristal en 3 dimensions à un cristal 2D en séparant mécaniquement les différentes couches (Approche « Top-Down ») ou les méthodes de croissance à partir d'atomes et de molécules (Approche « Bottom-Up »), cette dernière synthèse peut être faite par voie purement chimique comme purement physique. Dans cette thèse, les matériaux utilisés ont été fabriqués exclusivement par une approche bottom-up spécifique. C'est la déposition chimique en phase vapeur (CVD), faites par différentes équipes : le MoS<sub>2</sub> par le groupe de A.T. Charlie Johnson à l'université de Pennsylvanie aux Etats-Unis, le WSe par le groupe d'Anlian Pan à l'université de Hunan en Chine et le WSe<sub>2</sub> fabriqué au C2N dans notre équipe par Fabrice Oehler.

Dans ce chapitre nous allons voir un exemple de méthode de fabrication pour chaque approche : l'exfoliation mécanique et la CVD. Pendant ma thèse, j'ai eu l'occasion de travailler et de réaliser des échantillons à partir de feuillets fabriqués par exfoliation comme le hBN, le WSe<sub>2</sub>, l'IrTe<sub>2</sub> ou l'InTe.

### 3.1.1. APPROCHE TOP-DOWN (EXFOLIATION)

L'exfoliation mécanique consiste en la séparation des différentes couches d'un cristal 3D. Grâce aux liaisons Van der Waals entre les couches des matériaux 2D, les différentes couches peuvent être séparées à l'aide d'un adhésif (marque scotch 3M Magic tape)<sup>84-86</sup>. Cette méthode a permis l'isolation des premiers matériaux 2D connus<sup>84</sup>.

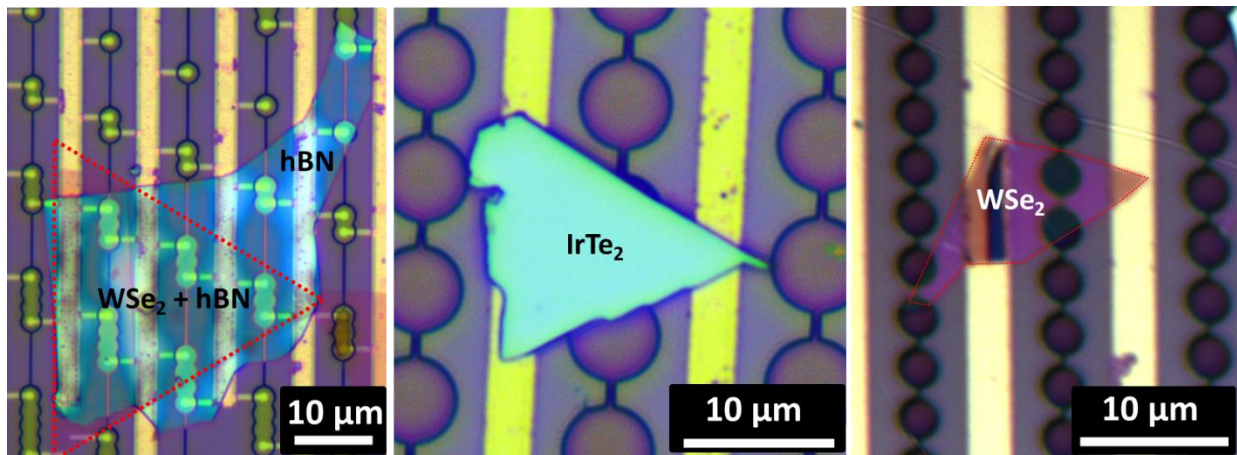


Figure 22 – Dispositifs fabriqués avec des feuillets exfoliés. a) Hétérostructures hBN exfolié sur WSe<sub>2</sub> fait par CVD et suspendue sur de multiples trous. b) IrTe<sub>2</sub> exfolié suspendus sur des trous circulaires. c) WSe<sub>2</sub> exfolié suspendu sur des trous circulaires réalisés en collaboration avec le groupe TELEM du laboratoire MPQ à l'université Paris Cité.

On dépose d'abord un cristal millimétrique sur un morceau d'adhésif. Ensuite, on colle un autre ruban adhésif et on les sépare doucement. Cette première séparation devrait couper en deux le morceau de cristal. Ensuite, on répète cette opération plusieurs fois. En théorie, certaines phases de collage diminuent l'épaisseur jusqu'à atteindre la monocouche. En pratique, atteindre la monocouche ne nécessite seulement que plusieurs cycles. Cette méthode permet d'obtenir à la fois des feuillets multicouches épais (100nm) allant jusqu'à une centaine de micromètres de large et des feuillets monocouches de quelques dizaines de micromètres de large. Il est assez difficile d'obtenir des monocouches avec cette méthode. Ensuite, il faut déposer le matériau 2D sur un substrat. Pour cela, on prépare au préalable un substrat de Silicium oxydé ou un substrat paterné. Il faut généralement le chauffer ou fonctionnaliser la surface avec un traitement ozone ou en utilisant un délaqueur. Nous collons l'adhésif sur le substrat, on chauffe sur plaque à 110°C puis on le retire. Les feuillets de matériaux 2D se

retrouvent sur le nouveau substrat. Il reste normalement des traces d'adhésifs, le substrat est nettoyé. Nous le passons dans l'acétone pendant plusieurs heures puis le chauffons sous vide à 350°C.

Dans la Figure 22, nous avons quelques exemples de dispositifs réalisés avec des matériaux 2D multicouches exfoliés. On observe, en Figure 22-b et c, des feuillets d'IrTe<sub>2</sub> et de WSe<sub>2</sub> exfoliés suspendus sur des trous circulaires. Dans la Figure 22-a, c'est une image d'une hétérostructure hBN/WSe<sub>2</sub> qui est suspendue sur des trous multiples avec des grilles locales. Dans ce dernier cas, le hBN a été exfolié mécaniquement tandis que le feuillet de WSe<sub>2</sub> a été fabriqué par CVD et transféré. Nous allons aborder le transfert des matériaux 2D obtenus par CVD.

### 3.1.2. APPROCHE BOTTOM-UP (CROISSANCE CVD)

La croissance par dépôt chimique en phase vapeur consiste à faire évaporer des précurseurs à haute température qui vont se déposer sur un substrat et réagir chimiquement pour former le matériau qu'on souhaite faire croître couche par couche. Deux exemples sont montrés sur la Figure 23. Comme je travaille principalement sur les métaux de transitions dichalcogènes, TMDs, nous allons prendre l'exemple des TMDs.

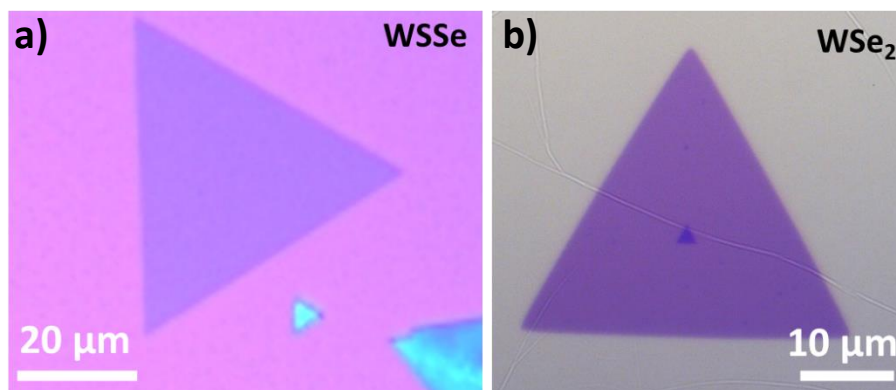


Figure 23 – a) Feuillet de WS2e monocouche provenant de Chine. b) Feuillet de WSe2 monocouche fait par CVD par Fabrice Oehler dans notre groupe MAT2D.

La croissance CVD de ces matériaux fait intervenir un gaz neutre comme un mélange argon/hydrogène (Ar/H<sub>2</sub>), un chalcogène (S, Se ou Te) et un oxyde de métal de transition (MoO<sub>3</sub>, WO<sub>3</sub> ... etc). Le chalcogène est chauffé jusqu'à évaporation puis

transporté avec le flux de gaz neutre sur le substrat où il va se déposer. L'oxyde est déposé plus près du substrat et est chauffé à une température plus élevée pour s'évaporer aussi. Le métal de transition et les chalcogènes se recombinent à la surface du substrat, qui se trouve à une troisième température et le matériaux 2D va croître latéralement à partir d'un point, le nucléus, puis couche par couche.

On obtient ensuite des feuillets de matériaux 2D d'épaisseur uniforme, de forme triangulaire, de plusieurs dizaines de micromètres de largeur. La Figure 23 représente des images de feuillets monocouches de matériaux 2D réalisées par CVD.

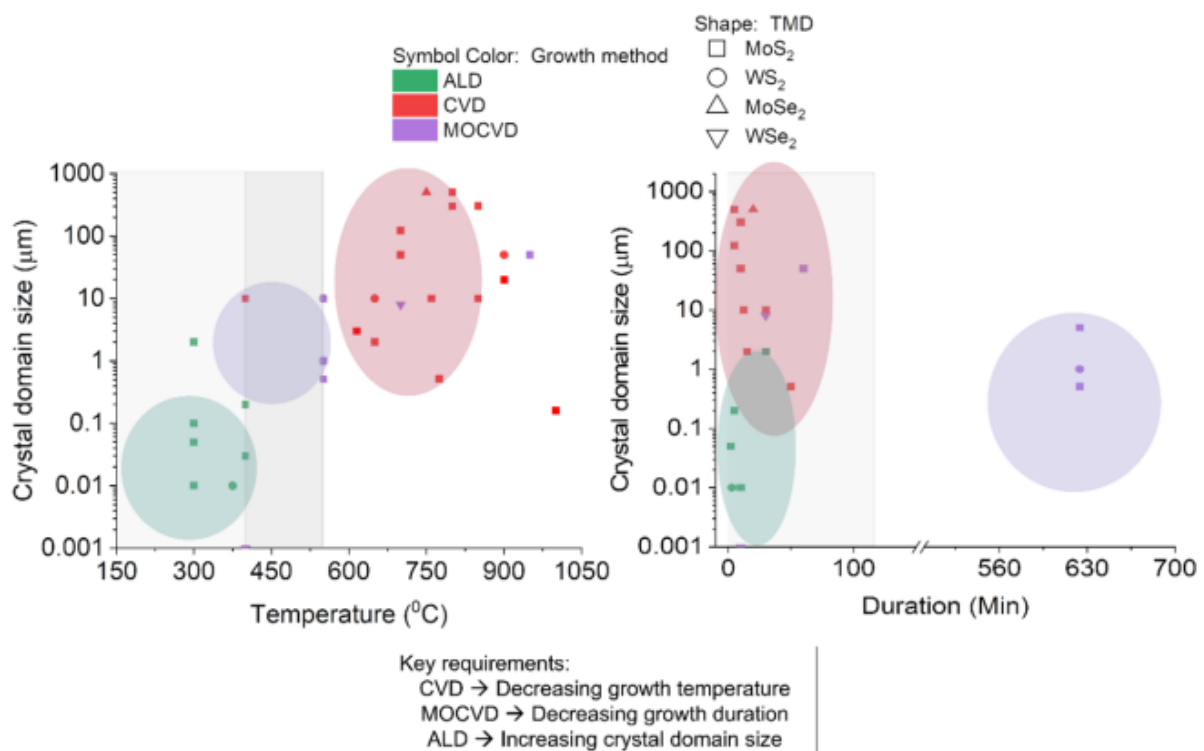


Figure 24 - Taille des domaines cristallins en fonction de la température et de la durée de la synthèse pour diverses méthodes de synthèse de certains TMDs : La déposition par couche atomique ALD, la croissance en phase vapeur CVD et la croissance en phase vapeur avec des précurseurs métalorganiques MOCVD. Provient de la référence<sup>18</sup>

La technique CVD est vraiment une technique à part dans le spectre des techniques de croissance des matériaux 2D avec de très grandes tailles de monocristaux comme on peut le voir en Figure 24.

## 3.2. METHODES DE TRANSFERT

Une des problématiques majeures des matériaux 2D est le transfert depuis leur substrat original au substrat d'intérêt pour la réalisation de dispositifs. Ce transfert peut être réalisé de différentes manières selon la méthode de croissance et l'objectif à atteindre avec un dispositif utilisant des 2D. Dans le contexte de cette thèse, nous allons principalement nous intéresser aux techniques de transfert assistées par polymère. Le principe général de ces techniques est le même<sup>87</sup> : les feuillets 2D sont recouverts d'une couche de polymère, souvent du Poly Méthyle Méthacrylate (PMMA) ou du Poly Propylène Carbonate (PPC) puis sont décollés de leur substrat suivant différentes méthodes. On peut utiliser des solutions humides pour permettre la délamination du polymère avec les 2D du substrat original. On peut aussi utiliser des méthodes sèches<sup>88-93</sup>.

### 3.2.1. METHODE HUMIDE

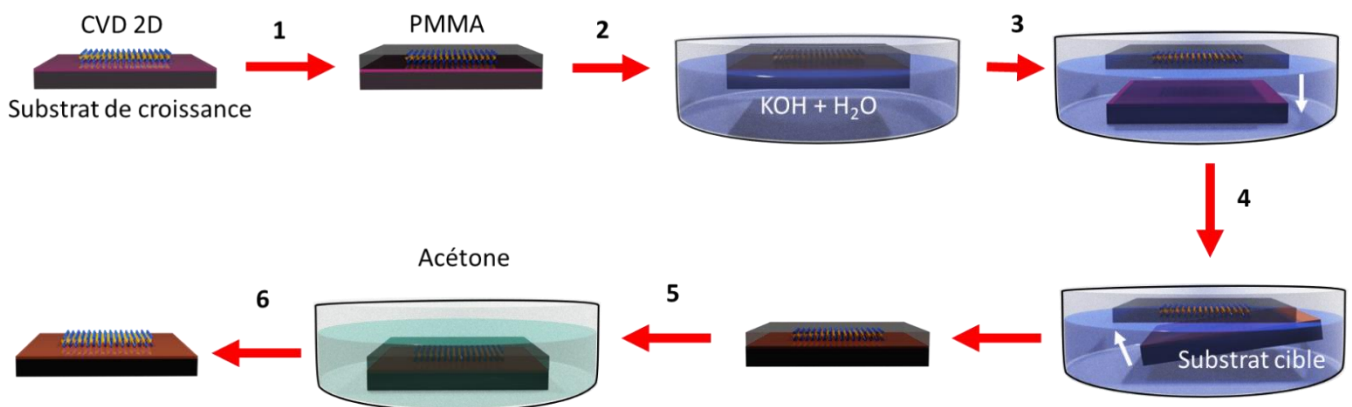


Figure 25 – Les différentes étapes du transfert humide. Etape 1 : dépôt de PMMA sur le substrat de croissance. Etape 2 : Préparation de la solution de KOH et transfert de l'échantillon qui flotte à la surface. Etape 3 : Gravure du substrat et séparation du PMMA du substrat. Etape 4 : « Pêchage » du PMMA avec le substrat cible. Etape 5 : Nettoyage du dispositif avec de l'acétone pour enlever le PMMA. Etape 6 : Séchage de l'échantillon et fin du transfert.

Cette méthode consiste à graver le substrat de croissance ( $\text{SiO}_2/\text{Si}$ ) avec de l'hydroxyde de potassium (KOH) pour en détacher les matériaux 2D.<sup>94,95</sup> C'est une méthode simple à mettre en pratique, qui est beaucoup utilisée dans le groupe, compatible avec des mesures de photoémission par exemple, mais qui présente plusieurs désavantages. On note que nous pouvons transférer un morceau de quelques mm avec de nombreux feuillets de matériau 2D mais que nous ne pouvons pas positionner un feuillet en particulier à un endroit spécifique sur le nouveau substrat. Cette technique est aussi chimiquement active et peut accélérer le processus d'oxydation. Il faut donc bien veiller à ce que les matériaux à transférer soient résistants au KOH comme c'est globalement le cas pour le  $\text{MoS}_2$  ou  $\text{WSe}_2$ . Il faut aussi que le transfert reste le plus rapide possible.

Pour arriver à détacher les matériaux du substrat sans les perdre dans la solution de KOH, il est nécessaire de recouvrir préalablement l'échantillon avec une fine couche de résine hydrophobe (PMMA dans notre cas) par dépôt sur tournette. On laisse ensuite le solvant s'évaporer naturellement pendant 30min pour que la couche de plastique se solidifie. Ensuite, on prépare une solution de KOH dilué dans l'eau à 13% et on y place l'échantillon. Il doit rester flottant à la surface grâce à l'hydrophobie du PMMA. La solution est chauffée par bain-marie à  $60^\circ\text{C}$ . Il faut ensuite attendre de 10 minutes à quelques heures jusqu'à ce que la résine se détache complètement du substrat avec les feuillets. La résine flotte à la surface pendant que le substrat  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  coule au fond du bécher. Le temps, dépend de la qualité de la résine, du taux de recouvrement de 2D sur la surface et de la qualité du matériaux 2D.

L'étape suivante consiste à nettoyer le film de PMMA avec les 2D en les passant dans plusieurs bains d'eau, au moins trois (en veillant à ne pas détruire le film et qu'il reste flottant à la surface pendant tout le processus) pour diluer fortement le KOH. Il est ensuite possible de repêcher le film avec un autre substrat. Il faut laisser sécher une heure puis retirer le PMMA avec un bain d'acétone et nettoyer avec de l'isopropanol (IPA). La Figure 25 décrit le processus de transfert humide.



Cette méthode permet le transfert rapide de grandes surfaces de matériaux 2D (des morceaux de galette de silicium allant de quelques millimètres à quelques centimètres). Elle préserve la qualité de la plupart des matériaux transférés mais elle peut laisser des résidus d'eau, de poussière et de cristaux de KOH à la surface.

Pour illustrer le transfert humide, la Figure 26 montre les résultats de chaque étape de transfert. La Figure 26, montre une image optique d'un substrat de croissance par CVD de  $WSe_2$  réalisé dans notre laboratoire par Fabrice Oehler. Le substrat est un substrat  $Si/SiO_2$  permettant de réaliser des transferts humides. L'échantillon fait quelques millimètres de long et il fallait le transférer sur un substrat de graphène sur SiC pour réaliser des hétérostructures  $WSe_2$ /graphène pour pouvoir les étudier avec différentes méthodes. Après le passage au KOH et le « pêchage » du PMMA contenant les 2D, on laisse sécher, comme dans l'image optique de la Figure 26. On voit clairement la couche de PMMA et les 2D sur le substrat de graphène. Enfin, la couche de PMMA est retirée pour ne laisser que les feuillets 2D sur le substrat. On remarque quelques imperfections sur les bords de l'échantillon mais la majorité de la surface est propre et le transfert n'a pas abîmé les matériaux 2D.

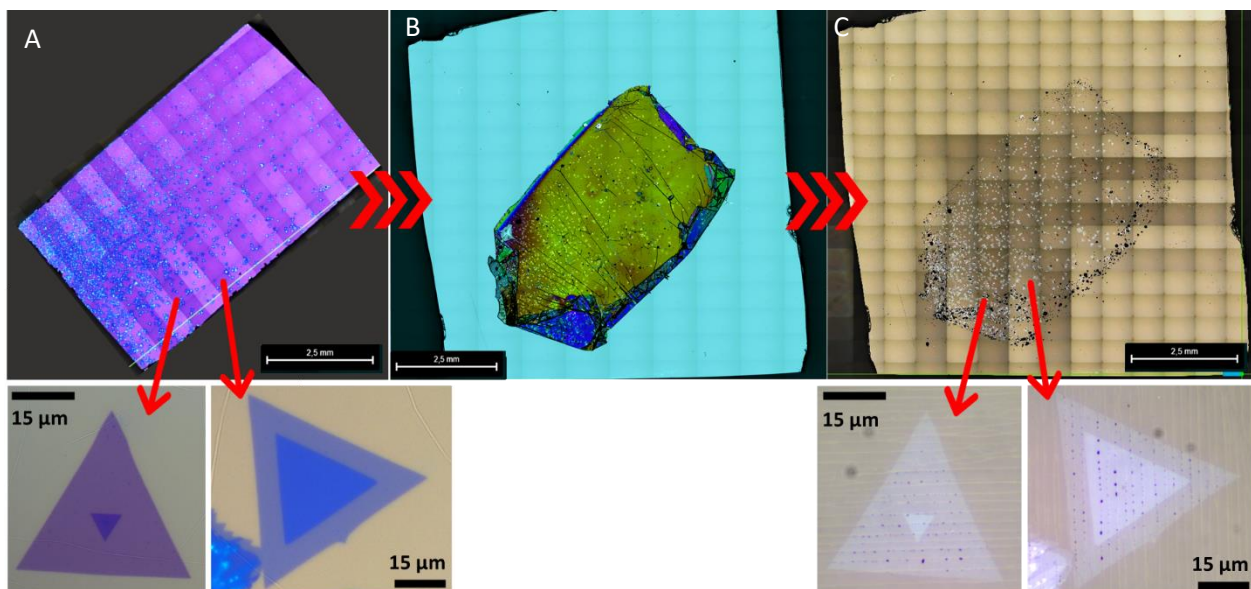


Figure 26 - Images optiques du transfert humide. A) Feuillet 2D de  $WSe_2$  (zone bleuté) sur le substrat de croissance (zone rosée). B) Matériaux 2D accrochés à la couche de PMMA déposée sur le substrat cible. C) Echantillon après rinçage et nettoyage du PMMA.

### 3.2.2. METHODE SEMI SECHE

La méthode humide a des avantages mais aussi des inconvénients. Pour pouvoir déposer un feuillet 2D, fait par CVD, à un endroit bien précis, il faut développer une autre méthode de transfert. Notre solution est le transfert que nous avons appelé transfert semi sec.

Notre méthode s'inspire des transferts secs ou « hot-pick up »<sup>88,89,96</sup> consistant à détacher le 2D avec un gel de PPC sur PDMS<sup>97</sup>, c'est nécessaire pour transférer les flakes individuellement avec une précision micrométrique. Pour cela, on utilise une goutte de PDMS solide sur laquelle on vient déposer une résine avec un pouvoir adhérent plus fort (PPC). Grâce à la courbure de la goutte, on est capable d'avoir une zone de contact restreinte au feuillet à transférer. Pour s'aligner entre la goutte et l'échantillon, nous utilisons une station de transfert (HQ graphene) munie d'un microscope et de vis micrométriques permettant une grande précision. La goutte de PDMS est accrochée à une plaquette en verre et l'alignement s'effectue avec les vis. Nous utilisons cette pratique pour transférer des matériaux exfoliés comme du hBN mais malheureusement, cette technique est insuffisante pour transférer des feuillets obtenus par CVD car l'interaction avec le substrat est beaucoup plus forte. Nous avons dû élaborer, à partir des résultats de la littérature, notre propre technique de transfert dédié aux matériaux CVD et en partie tiré de la référence<sup>92</sup>.

Cette méthode exploite la dilatation thermique des matériaux en plongeant l'échantillon dans l'azote liquide<sup>92</sup>. La dilatation thermique du silicium ( $2,5 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$  à 300K) et des matériaux 2D ( $6 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$  à 300K pour le  $\text{MoS}_2$ ) sont différentes. Par conséquent, avec un tel changement de température, des contraintes vont apparaître entre le substrat et les 2D réduisant leur adhésion. Pour protéger l'échantillon pendant cette procédure, nous le recouvrons d'une couche de PMMA. On pense que la présence du PMMA amplifie les contraintes pendant le refroidissement et aide à mieux dissocier les 2D du substrat. L'échantillon est plongé dans un bain d'azote liquide pendant 15 min. Il faut ensuite retirer le PMMA en plongeant l'échantillon dans l'acétone pendant



1h puis dans un bain d'IPA et le sécher. Cette première étape permet de pouvoir séparer les flakes du substrat sans avoir recours à la gravure de ce dernier et convient à tous les matériaux même les plus fragiles.

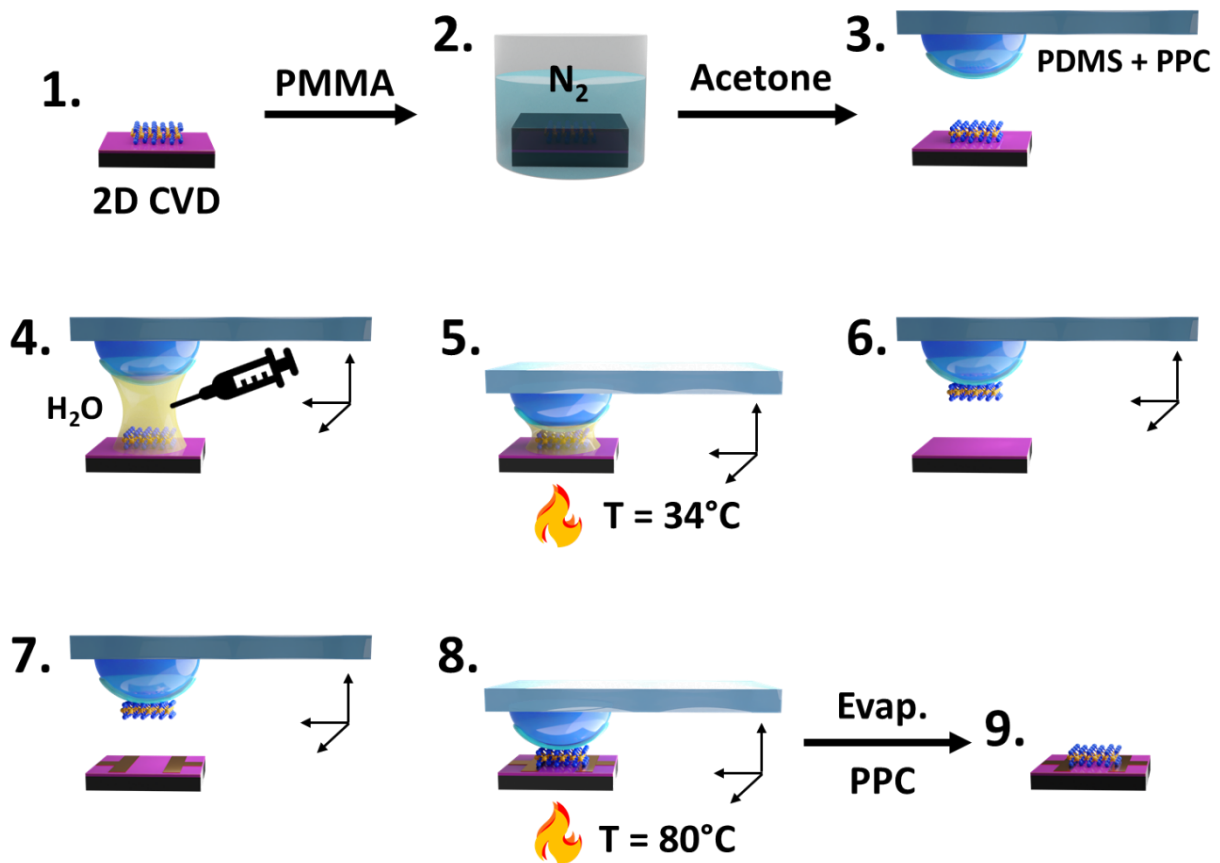


Figure 27 - Transfert semi sec. Etape 1 : dépôt de PMMA avec une tournette sur le substrat de croissance. Etape 2 : Immersion dans l'azote liquide pendant 15 min. Etape 3 : Nettoyage du PMMA avec de l'acétone puis Alignement de la goutte de PDMS recouverte de PPC avec le feuillet 2D à prendre. Etape 4 : Placer une goutte d'eau entre le 2D et la plaque de verre à l'aide d'une micropipette. Etape 5 : Mise en contact du PPC avec le 2D et chauffage. Etape 6 : prendre le 2D. Etape 7 : Alignement avec le substrat cible. Etape 8 : Mise en contact avec le substrat cible, chauffage et dépôt. Etape 9 : nettoyage de la résine sur les 2D

Ensuite, on utilise le transfert « hot-pick up » mais modifié comme indiqué sur la Figure 27 de l'étape 3 à 9. On ajoute une goutte d'eau pour exploiter la tension de surface du liquide pour accroître l'adhésion avec le PPC présent sur le PDMS<sup>98</sup> car l'adhésion entre les matériaux faits par CVD et leur substrat est encore trop forte pour pouvoir les détacher directement avec du PPC, il faut utiliser l'effet de capillarité et les tensions de

surface entre l'eau et le matériaux 2D pour outrepasser l'interaction van der Waals du 2D avec le substrat. On approche le PPC jusqu'au contact avec le 2D. On chauffe légèrement à 34°C pour améliorer le contact. Après avoir refroidi, on sépare la bulle de PDMS recouverte de PPC et le substrat. Le feuillet se détache et reste collé au PPC.

Maintenant, il faut déposer le matériau à la position d'intérêt. Il faut d'abord aligner les 2D avec la cible, puis les déposer délicatement. Pour le dépôt, on met en contact la goutte avec le substrat sur une petite zone et on chauffe jusqu'à 80°C. Le PPC va se liquéfier et rester sur le substrat avec les feuillets 2D. Ensuite, selon l'application, le PPC est retiré soit avec un bain d'acétone, soit par recuit à 300°C pendant 4h sous vide.

L'ensemble de la procédure est schématisé sur la Figure 27 et nous avons illustré avec différentes images optiques les différentes étapes de la procédure en Figure 28.

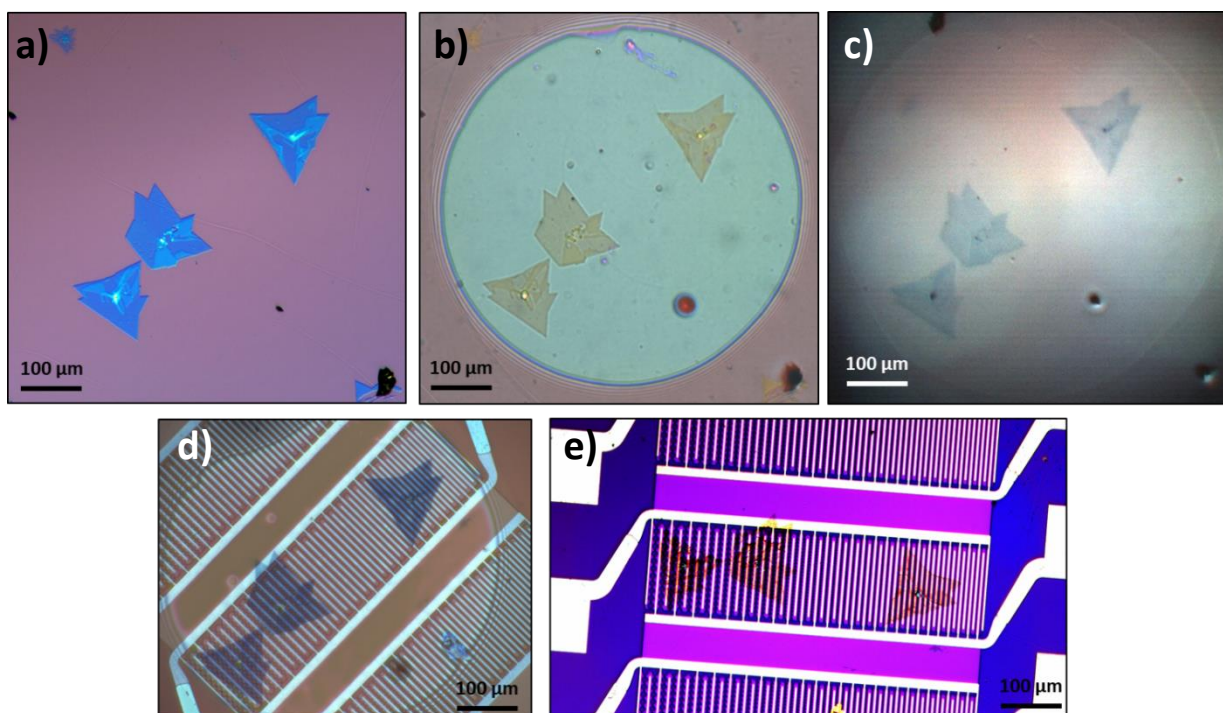


Figure 28 - Images optiques du processus de transfert. A) Image optiques de feuillets 2D sur leur substrats de croissance. B) La goutte de PDMS + PPC touche l'échantillon et forme un cercle autour des matériaux 2D à transférer. C) Les feuillets 2D ont été pris par la goutte et sont détachés du substrat d'origine. D) Début du dépôt des feuillets sur nos microstructures. Ils y sont déposés avec une fine couche de PPC. E) Résultat du transfert après évaporation du PPC.

### 3.3. MESURE OPTO-ELECTRO-MECANIQUES

Pour pouvoir étudier les vibrations et les autres propriétés des matériaux 2D, avons installé un banc d'étude optique et électrique qui nous permet d'exciter et induire des contraintes mécaniques sur les membranes à travers des effets électrostatiques, grâce à des tensions de grille ou des contacts source-drain métalliques, et de mesurer les vibrations optiquement par interférométrie en exploitant la cavité optique Fabry Péroit présent naturellement entre le 2D suspendu et le substrat silicium.

#### 3.3.1. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

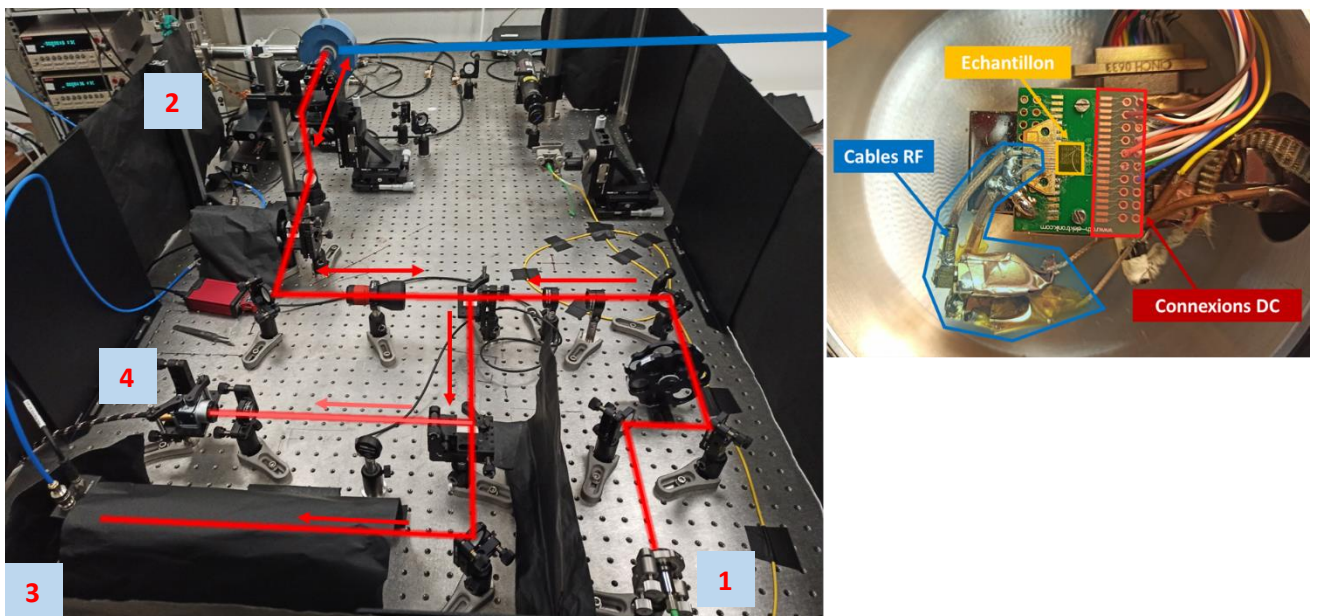


Figure 29 -Image du montage optique permettant de mesurer les vibrations mécaniques des matériaux 2D présents dans la chambre à vide et connectés à des sources de tension et de courant. La ligne rouge montre le chemin optique du laser avec 1. La sortie collimatée du laser rouge. 2. La chambre contenant l'échantillon sous vide. 3. Le photodétecteur permettant de mesurer les variations d'intensité du faisceau laser réfléchi par l'échantillon et la cavité Fabry Perot s'y trouvant. 4. Caméra permettant de voir le dispositif et la position du laser.

Notre banc opto-électro-mécanique se compose de deux parties : optique et électrique. Plusieurs versions ont existé pendant ma thèse. Initialement, le montage était en salle blanche, avec certaines contraintes sur les vibrations de l'environnement. J'ai tout réinstallé dans une salle dédiée, sur une table optique. Nous avons aussi remplacé la gamelle à vide avec un doigt froid d'Hélium (Figure 29) par un cryostat à circuit fermé d'Hélium (Mycryofirm).

La partie optique se compose d'un laser Hélium Néon stabilisé de  $\lambda = 633\text{nm}$  qui est focalisé sur l'échantillon d'un objectif x100 à longue distance focale (Mitutoyo). Le faisceau laser va être ensuite réfléchi vers un photodétecteur (Thorlabs) qui mesure l'intensité du faisceau réfléchi et qui converti le signal optique en signal électrique. La Figure 29 représente la table optique avec le chemin suivi par le laser en rouge. Les flèches indiquent le sens de propagation du faisceau.

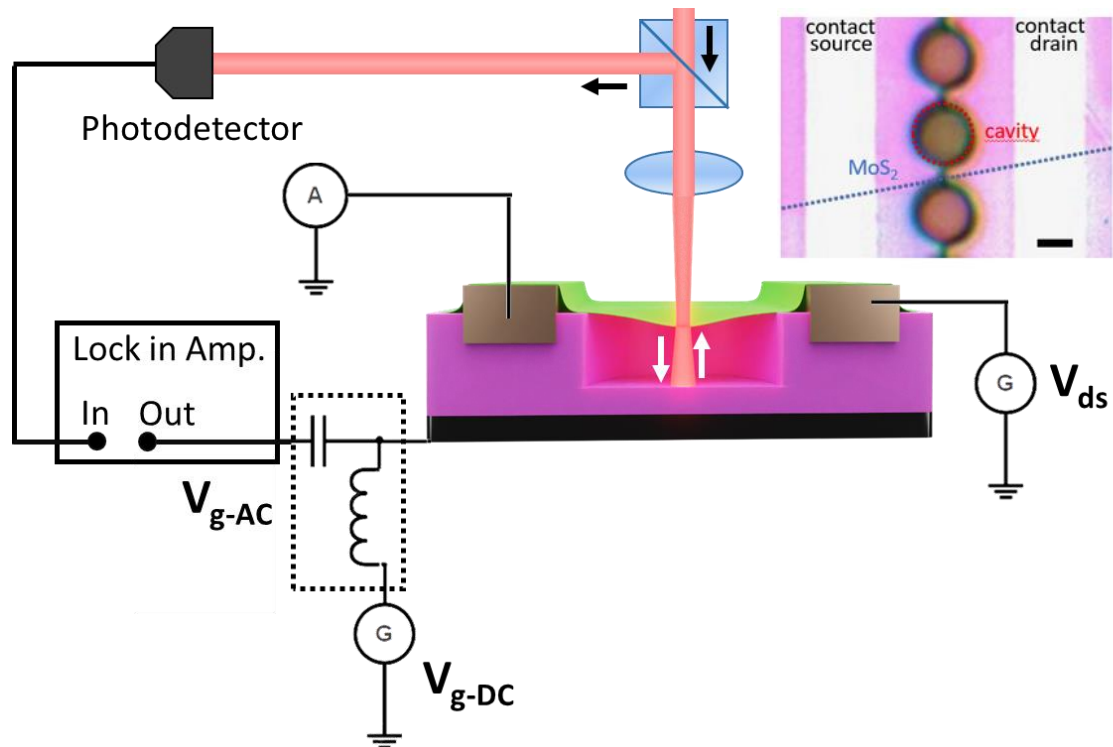


Figure 30 - Schéma électrique de l'excitation de la membrane 2D. La membrane est connectée à deux électrodes, servant de source et drain, permettant d'appliquer une tension et de mesurer le courant passant à travers l'échantillon. Le feuillet 2D est excité par une tension alternative (AC) pour activer les vibrations de la membrane. Une tension continue (DC) permet de varier la tension mécanique interne de la membrane grâce à la force capacitive et la présence de la capacité entre la grille et la membrane. A droite, on voit une image optique d'un échantillon.

L'échantillon est placé sous vide dans chambre avec un accès optique, transparent dans le visible. L'échantillon est placé sur deux circuits imprimés (A&PLithos et RS) relié aux composants électriques par des câbles coaxiaux pour appliquer des tensions continues (DC) et alternative (AC).

Les échantillons étudiés dans cette thèse, sont des membranes 2D suspendues sur une cavité et contacté par 2 électrodes métalliques. Les contacts Source et drain permettent

de faire passer des courants dans le 2D et la grille complète le schéma de type transistor. Cette grille peut être délocalisée sur tout l'échantillon si la tension est appliquée sur tout le substrat de Silicium. Elle peut être locale si on applique la tension sur des électrodes métalliques lithographié sous les membranes.

La tension DC est générée par des générateurs de tension (Keithley 2400, Yokogawa 7651, iTest) et les tensions AC sont générées par une détection synchrone (Zurich Instrument) capable de générer des signaux sinusoïdaux avec une fréquence allant jusqu'à 50 MHz et un bruit de  $5\text{nV}/\text{Hz}^{0.5}$  en entrée. Le photodétecteur est relié à l'entrée de l'amplificateur à détection synchrone qui compare le signal du laser réfléchi au signal généré.

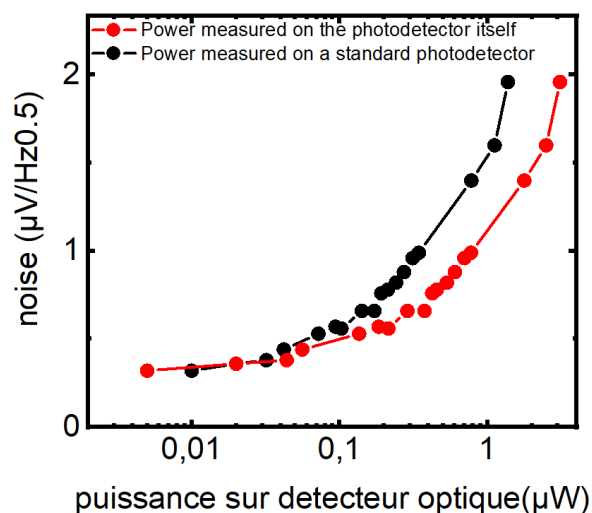


Figure 31 - Calibration du bruit du photodétecteur (Thorlab-APD120A(/M) en fonction de la puissance du laser à 633nm. La courbe rouge correspond à la puissance mesuré par le photodétecteur et la courbe noire par un puissance mètre standard (Thorlab) placé sur le chemin optique. Le bruit à basse puissance correspond bien aux caractéristiques de bruit quantique du photodétecteur. Un amplificateur (Minicircuit), avec un gain de 10, placé derrière le photodétecteur permet de dépasser le bruit en entrée de la détection synchrone ( $5\text{nV}/\text{Hz}^{0.5}$ ) lorsque la puissance laser est très faible ( $< 1\mu\text{W}$ ).

Pour filtrer la tension AC et DC et respectivement éliminer les composantes constantes et alternatives, nous relient le générateur AC et DC à un té de polarisation. Un té de polarisation est composé de composants électriques passifs (inductances et condensateurs). Les inductances sont reliées au générateur DC et servent à filtrer les



fréquences hautes et le condensateur est relié au générateur AC pour filtrer les basses fréquences. Nous avons construit un té de polarisation capable de résister à des tensions AC et DC allant jusqu'à 100V composé de plusieurs inductances en séries avec des résistances en parallèle et des condensateurs qui servent à l'isolation de la terre et à filtrer les basses fréquences. La Figure 32 représente le schéma électrique du té de polarisation avec la transmission des fréquences émises par le générateur. On voit que le dispositif présente une excellente transmission qui est supérieure à 90% à 50MHz et supérieure à 95% jusqu'à 40 MHz.

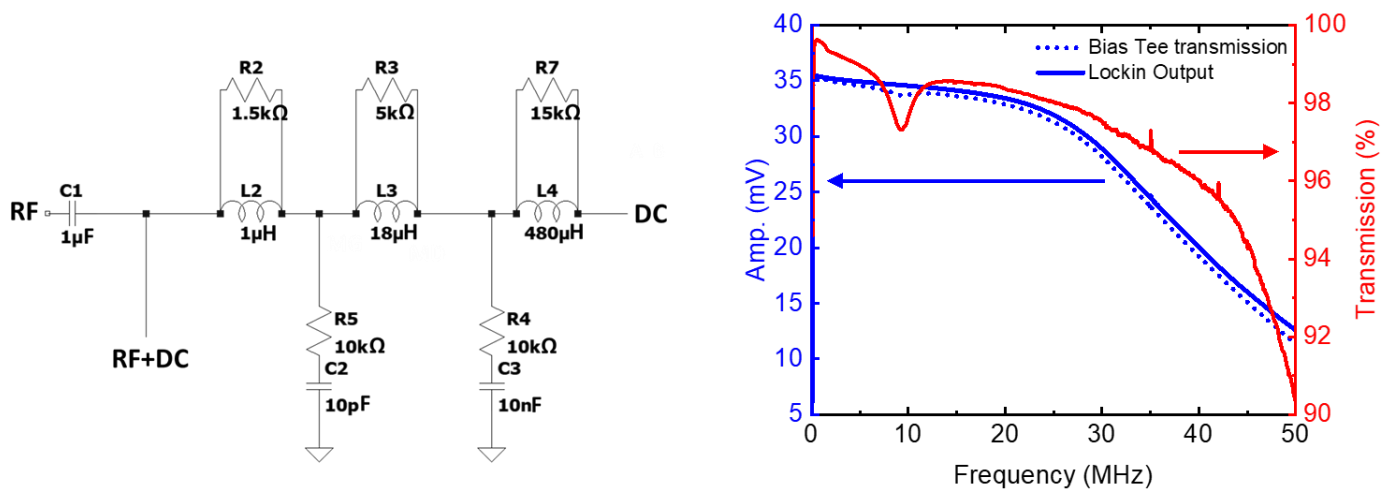


Figure 32 – Caractérisation du té de transmission. A gauche, un schéma électrique du Té utilisé pendant ma thèse. La tension DC est appliquée du côté des inductances qui filtre les hautes fréquences et la tension AC est appliquée du côté de la capacité qui filtre le signal à très basse fréquence. A droite, la mesure de la tension émise par le générateur de fréquences brute (ligne bleue) et avec le Té (en pointillés). La courbe rouge représente la transmission du bias tee en fonction de la fréquence. On observe une excellente transmission (> 90 %) entre 100KHz et 50MHz qui est la plage de fréquence d'intérêt pour nos expériences.

Récemment, nous avons fait l'acquisition d'un nouveau cryostat de chez MyCryofirm refroidi à l'hélium et capable d'atteindre des températures inférieures à 3K. Pour ce nouveau dispositif, nous avons placé l'objectif (x60-Edmund optics) à l'intérieur de la chambre vide avec un vide pouvant aller jusqu'à  $10^{-8}$  mbar. L'échantillon est désormais placé sur un circuit imprimé (PCB) à moitié rigide et à moitié flexible (Or sur Kapton) (PCB-SAFE). Les déplacements sont quant à eux assurés par des micro-positionneurs

(Attocube, ANP-x101). La partie flexible permet un minimum d'encombrement devant l'objectif, un poids minimum et de ne pas forcer mécaniquement sur les Attocubes.

Les lignes d'amenés coaxiales, pour le DC, ont une d'impédance environ  $30\Omega$ , et on utilise des câbles semirigides SMA pour la RF (mini circuit modifiés). Les câbles coaxiaux cryogéniques en alliage (beryllium-copper) agissent comme des circuit LC et permettent de filtrer les fréquences au-delà de quelques dizaines de MHz et d'isoler la platine des photons chaud à 300K dans les lignes. Pour la thermalisation des pistes électriques à 3K, nous avons choisi une solution drastique ; toutes les connexions électriques passent par des pistes en or photolithographiées sur un wafer de saphir. Le saphir (A cut) étant un très bon isolant électrique et très bon conducteur thermique ( $>500W/m^{-1}/K^{-1}$ ) même à basse température, ce qui permet une très bonne thermalisation sans introduire de nouveau filtre LC ni d'impédance sur la ligne. Le substrat saphir et la partie flexible du PCB possèdent aussi deux lignes coplanaires pour les signaux AC. La Figure

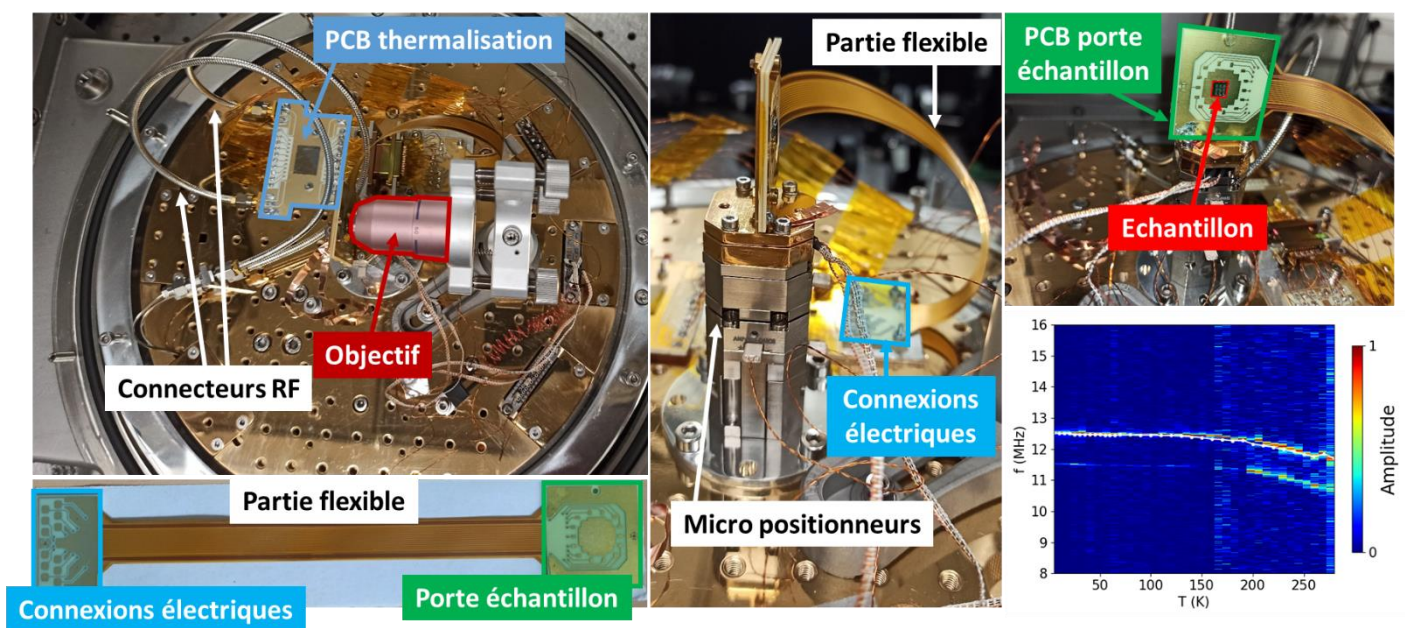


Figure 33 – Images du cryostat et de sa table optique. L'objectif x60 est monté face à l'échantillon et dans le cryostat. Concernant l'échantillon, il est fixé sur un PCB flexible monté sur un porte échantillon supporté par des micropositionneurs Attocube. La partie flexible du PCB relie l'échantillon au reste du circuit électrique à travers un autre PCB permettant de bien thermaliser le système à la température du cryostat notamment grâce au saphir. Le tout est connecté au monde extérieur à travers des câbles RF et DC nous permettant de faire des mesures mécaniques à des températures variant de 3K à 290K (Mesures dans le carré bleu).

33 montre l'intérieur du cryostat avec l'agencement des circuits imprimés, de l'objectif et de l'échantillon.

Avec ce montage, nous sommes capables de mesurer des vibrations mécaniques à toutes les températures allant de 3K à la température ambiante. A titre d'exemple, une mesure de vibration de l'IrTe<sub>2</sub> entre 4K et 290K est montrée dans la Figure 33. Les mesures à basses températures permettent d'avoir de meilleurs facteurs de qualité et de plus grands rapports signal/bruit. Dans la Figure 34, le facteur de qualité d'un résonateur passe de 90 à l'ambiante à 16000 à basse température.

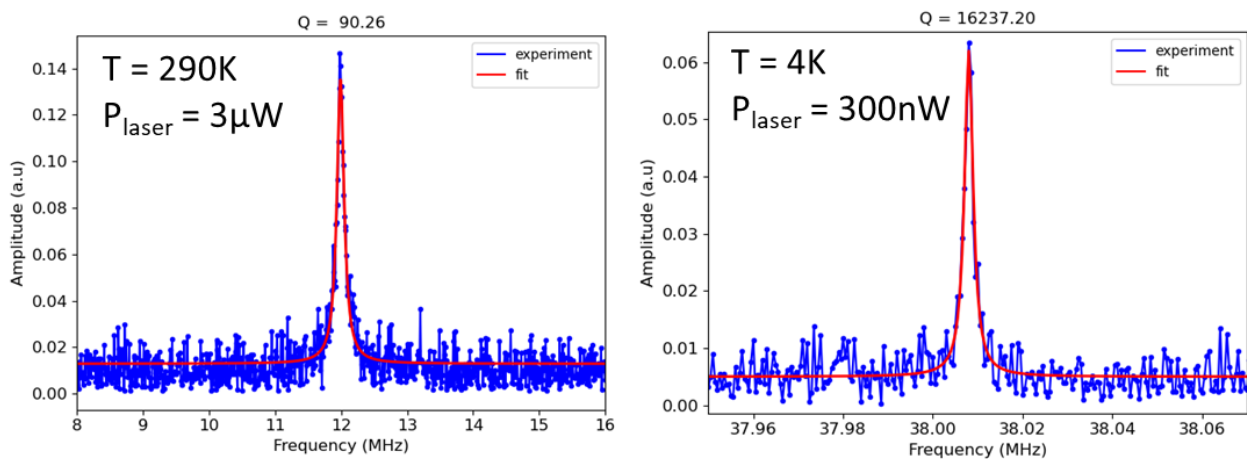


Figure 34 – Comparaison des facteurs de qualité et intensité du signal entre  $T = 4K$  et  $T = 290K$ . Ici avec le  $WSe_2$  exfolié, le facteur de qualité à température ambiante est d'environ  $Q = 90$  alors qu'à basse température, avec une puissance laser pouvant atteindre la centaine de nW, nous avons mesuré un facteur de qualité  $Q = 16237$  ce qui est 180 fois la valeur à température ambiante.

Il faut noter qu'une boucle de rétroaction sur la position en z a été implémentée pour corriger en temps réel les dérives dues aux dilatations thermiques de l'objectif, de la platine et des attocubes. La boucle peut optimiser l'amplitude du signal de la fréquence de résonance ou optimiser la focalisation de l'image optique de l'échantillon. Il a fallu mesurer la fréquence de résonance afin de rester focaliser pendant les phases de changement de température. La correction en xy de la position du laser par rapport à l'échantillon est toujours en cours.



### 3.3.2. INTERFEROMETRIE, REFLECTIVITE DU LASER ET CAVITE FABRY PEROT

La détection de la vibration de la membrane s'effectue optiquement grâce à l'interférométrie laser. Dans cette partie, nous allons voir comment l'interférométrie Fabry Perot permet effectivement de mesurer des mouvements subnanométriques et permet de mesurer les vibrations des matériaux<sup>99-101</sup>.

Nous avons d'abord installé un interféromètre de Michelson avec une lame séparatrice et deux miroirs, l'un des miroirs étant notre matériaux 2D mobile. L'intensité du signal est alors reliée à la différence de distance  $d$  entre les deux chemins optiques, oscillant périodiquement à chaque fois que  $d$  change de  $\lambda/2$ . Nous avons souvent utilisé cette méthode pour mesurer les vibrations. Toutefois, l'utilisation de la cavité Fabry Pérot entre le 2D et le substrat créer aussi des interférences optiques et de mesurer les vibrations mécaniques. Le Fabry-Perot permet de réduire le bruit car la cavité est sur l'échantillon et les vibrations de la table optique ne sont pas mesurées, son désavantage est de devoir optimiser la cavité optique pendant la fabrication de l'échantillon.

La membrane 2D possède un indice de réfraction différent du substrat  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  et du vide. Ce qui permet la transmission partielle de la lumière incidente par les différents milieux traversés (vide, 2D,  $\text{SiO}_2$  et Si) En lumière blanche ou monochromatique, cette empilement de plusieurs matériaux avec différents indices optiques permet d'augmenter le contraste des matériaux d'une épaisseur atomique sur substrat malgré leur très faible absorption et réflexion de la lumière<sup>100</sup>. C'est pour cette raison que les substrats standards non suspendus utilisés dans la communauté des 2D, ont environ 90nm ou 285nm de  $\text{SiO}_2$  sur Si. Ce sont les épaisseurs pour lesquelles le contraste optique, pour la plupart des 2D, est maximisé.

Dans la suite nous allons noter  $d_1$  l'épaisseur du 2D,  $d_2$  celle du vide séparant la membrane du substrat, et  $d_3$  l'épaisseur du  $\text{SiO}_2$ . Les indices de réflexion du matériau 2D, vide,  $\text{SiO}_2$  et Si seront notés respectivement  $n_{2D}$ ,  $n_{vide}$ ,  $n_{\text{SiO}_2}$ ,  $n_{\text{Si}}$ . Nous utilisons un faisceau laser incident rouge ( $\lambda = 633\text{nm}$ ) qui traverse le matériau 2D, puis la cavité vide puis la couche  $\text{SiO}_2$  présente sur le substrat pour finalement atteindre le Si, comme indiqué sur la Figure 35. Chaque matériau traversé induit un léger déphasage de la lumière réfléchi par rapport à la lumière réfléchi par le milieu suivant (ce déphasage sera noté  $\phi_i$  en fonction de la couche  $i$  qui en est responsable). La réflexion totale  $R$  du faisceau laser pourra ainsi être exprimée comme suit<sup>99</sup>

$$R = \left| \frac{r_1 + r_2 e^{-2i\phi_1} + r_3 e^{-2i(\phi_1+\phi_2)} + r_4 e^{-2i(\phi_1+\phi_2+\phi_3)} + r_1 r_2 r_3 e^{-2i\phi_2} + r_1 r_3 r_4 e^{-2i\phi_3} + r_1 r_2 r_4 e^{-2i(\phi_2+\phi_3)} + r_2 r_3 r_4 e^{-2i(\phi_1+\phi_3)}}{1 + r_1 r_2 e^{-2i\phi_1} + r_1 r_3 e^{-2i(\phi_1+\phi_2)} + r_1 r_4 e^{-2i(\phi_1+\phi_2+\phi_3)} + r_2 r_3 e^{-2i\phi_2} + r_3 r_4 e^{-2i\phi_3} + r_2 r_4 e^{-2i(\phi_2+\phi_3)} + r_1 r_2 r_3 r_4 e^{-2i(\phi_1+\phi_3)}} \right|^2 \quad (31)$$

avec

$$r_1 = \frac{n_{vide} - n_{2D}}{n_{vide} + n_{2D}} , \quad r_2 = \frac{n_{2D} - n_{vide}}{n_{2D} + n_{vide}} , \quad r_3 = \frac{n_{vide} - n_{SiO_2}}{n_{vide} + n_{SiO_2}} , \quad r_4 = \frac{n_{Si} - n_{SiO_2}}{n_{Si} + n_{SiO_2}}$$

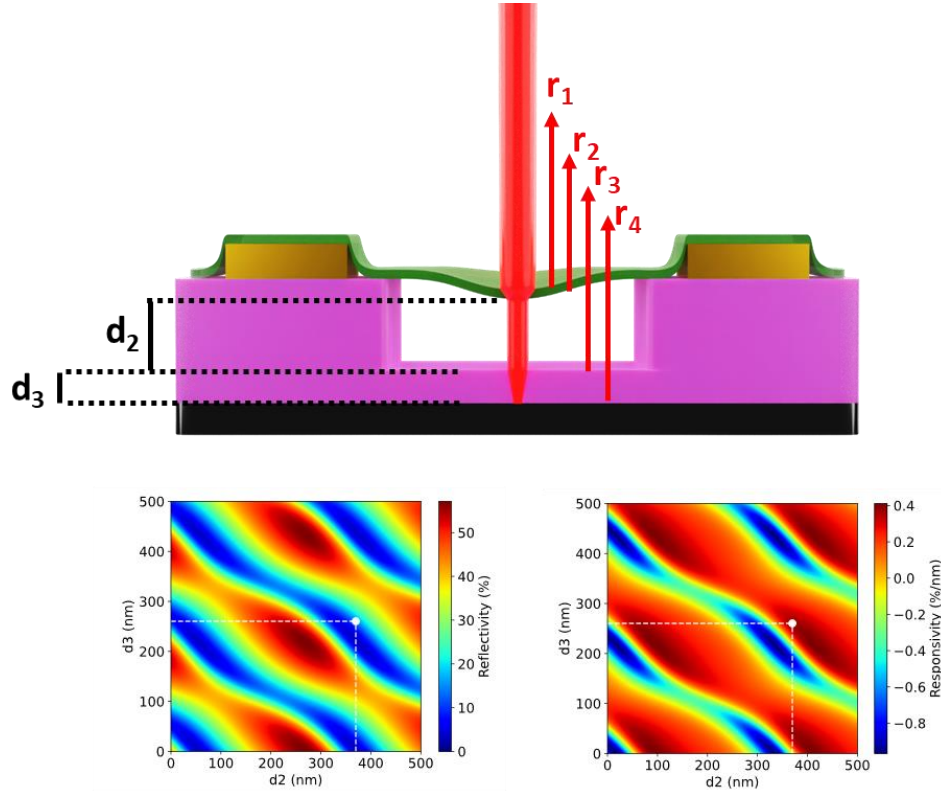


Figure 35 - Cavité Fabry Perot. Schémas de la cavité Fabry Perot montrant le fonctionnement de l'interféromètre et Réflectivité totale et réponse optique ( $dR/dz$ ) en fonction de des distances  $d_2$  et  $d_3$  calculés pour du  $MoS_2$  multicouches. Le point blanc représente les paramètres de notre dispositif expérimental.

$$\phi_1 = \frac{2\pi n_{2D} d_1}{\lambda} , \quad \phi_2 = \frac{2\pi n_{vide} d_2}{\lambda} , \quad \phi_3 = \frac{2\pi n_{SiO_2} d_3}{\lambda}$$

La réflexion totale dépendra donc des indices de réfractons, de l'épaisseur de chaque couche ainsi que de la longueur d'onde du faisceau laser. Sur la Figure 35, nous souhaitons optimiser  $R$  ainsi que la variation de l'intensité en fonction de la distance entre la membrane et le  $SiO_2$  aussi appelée responsivité ( $dR/dz$ , avec  $z$  la variation de la distance  $d_2$  par rapport à la position d'équilibre) pour permettre d'avoir une bonne sensibilité sur la détection du mouvement de la membrane. En prenant des valeurs

d'indices de réfraction pour chaque matériau, nous sommes capable de décrire les variations de hauteurs des membranes à travers la réflexion comme dans la Figure 36.

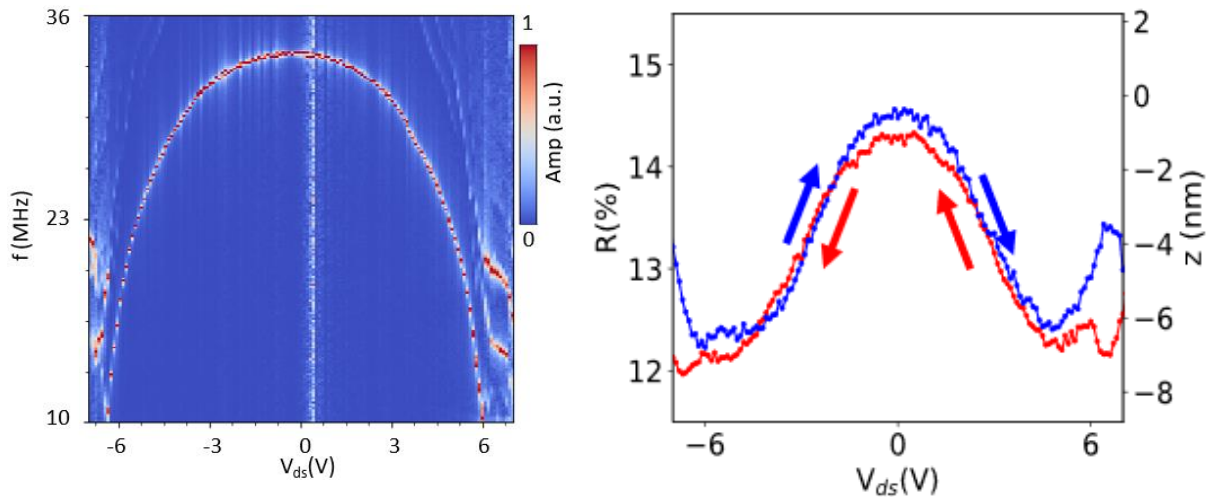


Figure 36 - Le chauffage par effet Joule d'une membrane  $\text{MoS}_2$  induit une variation des fréquences de vibrations (voir chapitre 4). (gauche) Variation de la fréquence en fonction de  $V_{ds}$  ( $V_g = 1\text{V}$ ) pour un résonateur mécanique en  $\text{MoS}_2$ . Il montre une très grande accordabilité de la fréquence de 34 à 10 MHz pour une variation de  $V_{ds}$  de 7V. Un fort ramollissement de la fréquence est observé. (à droite) Réflectivité ( $R$ ) et variation de la déviation verticale ( $\Delta z$ ) de l'échantillon en fonction de  $V_{ds}$  ( $V_g = 1\text{V}$ ). La mesure est effectuée au milieu de la membrane. Nous fixons arbitrairement  $\Delta z=0\text{nm}$  à  $V_{ds}=0\text{V}$  (rouge et bleu pour les mesures d'aller/retour). Cette mesure quantitative de la réflectivité nous a permis d'établir que le ramollissement n'est pas majoritairement dû à la déflexion hors plan de la membrane mais à une tension dans le plan due à la dilatation thermique.

### 3.3.3. MESURES OPTIQUES

Dans cette partie, nous allons illustrer les principes de base des mesures de spectroscopie de photoluminescence et Raman. Dans les matériaux 2d, des variations de propriétés affectent fortement les spectres obtenus. Cela nous permet d'obtenir des informations sur les contraintes mécaniques ou, la température dans nos échantillons

#### Photoluminescence

Dans les semi-conducteurs, les structures de bande électroniques présentent une bande interdite pour les électrons niveau de l'énergie de Fermi. La bande d'énergie

inférieure du gap est la bande de valence (VB) et ne présente pas d'états libres (à  $T = 0K$ ) car les électrons occupent tous les états disponibles dans cette bande contrairement à la bande supérieure appelée bande de conduction (CB) qui est vide. Pour qu'un électron puisse transiter d'une bande à une autre, il faut lui apporter une énergie équivalente au moins à l'énergie du gap ( $E_g$ ) défini par la différence entre le minimum de la bande de conduction ( $E_{CBmin}$ ) et le maximum de la bande de valence ( $E_{VBmax}$ ) :  $E_g = E_{CBmin} - E_{VBmax}$ .

Dans les matériaux 2D, les paires électrons-trou sont fortement couplées, on appelle cela des excitons. Ceci est dû au confinement 2D d'une part et à la réduction de l'écrantage coulombien car il n'y a pas de matériaux de part et d'autre du plan atomique d'autre part. La particularité des matériaux 2D est que pour appairer une paire électron trou il faut « payer » une énergie supplémentaire correspondant à l'énergie de liaison de l'exciton  $E_l$ . Cela étant dit un photon incident de fréquence  $\nu_0$  et d'énergie correspondant à la bande interdite optique (énergie de la bande interdite électronique réduite par l'énergie de liaison des excitons)  $E_0 = h\nu_0 > E_g - E_l$  peut, s'il est absorbé par le cristal, créer un exciton. L'exciton va finir par se désexciter et émettre un photon correspondant au gap optique. Le photon ainsi réémis nous informe sur la

bande interdite optique du matériau étudié. Ce gap étant lié à d'autres propriétés physiques, il représente une mesure indirecte de ces dernières.

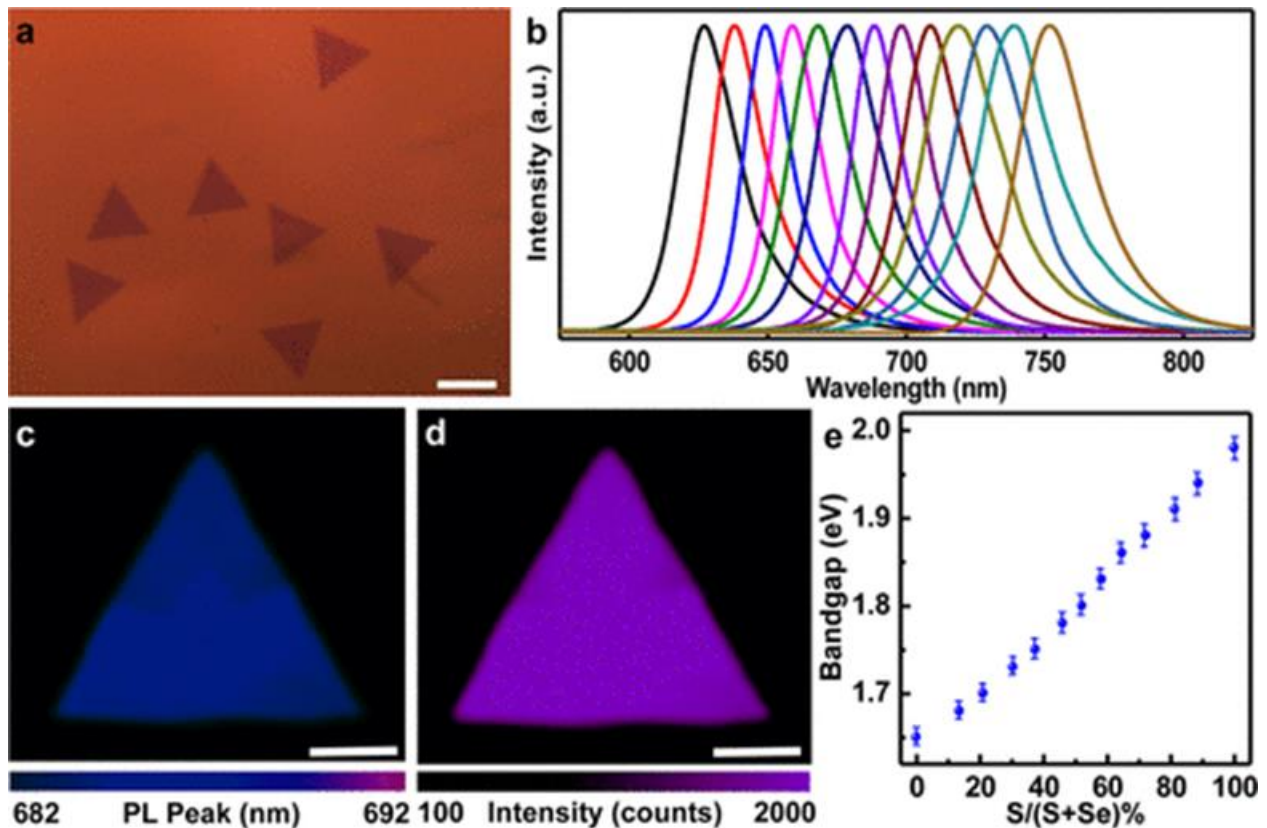


Figure 37 – Photoluminescence du WSSe en fonction de la proportion de Souffre (S) contenu dans le feuillet. Figure tirée de la référence <sup>102</sup>.

La Figure 37 est extraite du travail de Duan et al<sup>102</sup>, elle représente des mesures de photoluminescence à température ambiante qui ont été effectuées sur un matériaux ternaire, le  $WS_{2x}Se_{2-2x}$  avec différentes proportions de soufre (S) et sélénium (Se)<sup>102</sup> allant de  $x = 1$  à  $x = 0$ . Les mesures ont été effectuées en excitant avec un laser de longueur d'onde  $\lambda = 532\text{nm}$  d'énergie supérieure au gap du  $WS_2$  (Le  $WSe_2$  possède un gap d'énergie plus grande que le  $WSe_2$ ). La Figure 37– b montre les différentes longueurs d'onde de photoluminescence allant de 620 nm pour  $x = 1$  à 760 nm pour  $x = 0$ . Les pics présentent un élargissement principalement dû à la température. Nous pouvons observer l'évolution de ce gap optique en fonction de la concentration de soufre dans le matériau allant de 1,65 eV pour  $x = 0$  à 2 eV pour  $x = 1$ . La photoluminescence dépend donc des atomes composant un matériau et de leurs interactions entre eux.

Dans la suite du manuscrit, nous allons étudier l'effet de la variation des contraintes sur un composé de  $WS_{1.3}Se_{0.7}$  à travers des mesures de photoluminescence.

**La spectroscopie Raman** sonde les propriétés des phonons du réseau cristallin. Comme pour la photoluminescence, on envoie un laser monochromatique sur un matériau mais cette fois, nous regardons les interactions avec les phonons du cristal. Les photons incidents vont être diffusés de différentes manières. Dans le cas le plus probable, le photon va être diffusé sans changement de sa longueur d'onde et de son énergie, c'est la diffusion Rayleigh. Dans le cas de la diffusion Raman, le photon est absorbé puis réémis à une autre énergie. La différence en énergie correspond à l'énergie de vibration d'un mode de phonon du cristal.

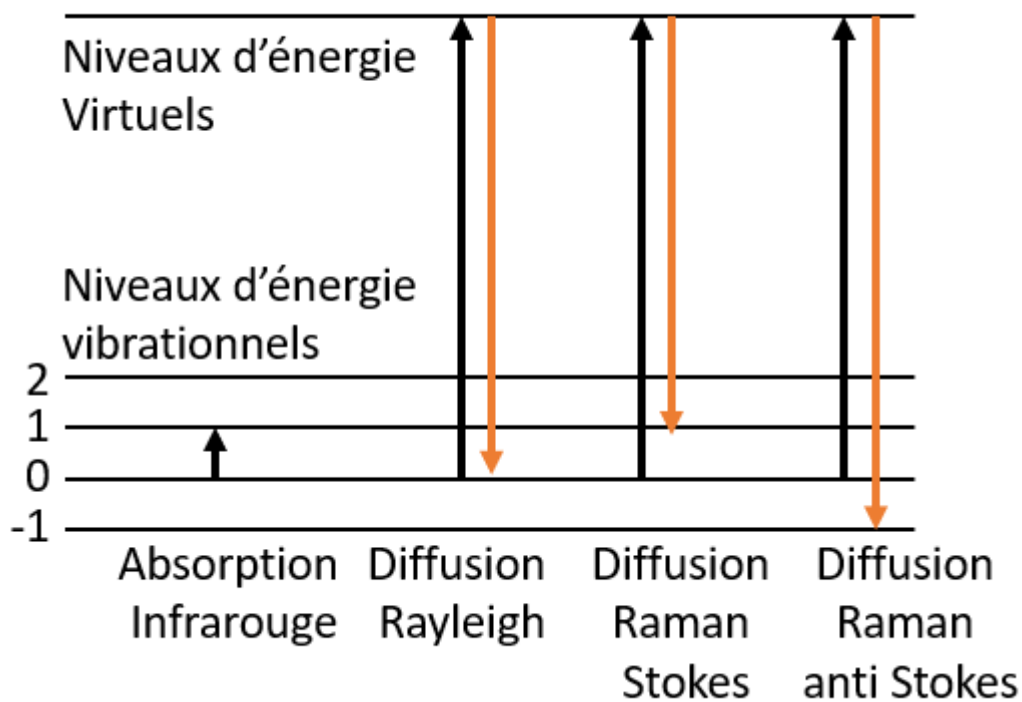


Figure 38 – Principe des diffusion infrarouge, Rayleigh et Raman.

Il existe deux possibilités, le phonon absorbe une partie de l'énergie du photon incident et l'énergie du photon diffusé est plus faible que celle du photon incident, c'est la diffusion Stokes du Raman. Ou bien l'énergie du photon diffusé est plus élevée que

celle du photon incident et le phonon cède son énergie au photon (diffusion Anti-Stokes). Dans cette thèse, nous mesurons principalement la diffusion Stokes (voir Figure 38). Comme la spectroscopie Raman mesure les modes de vibrations du cristal à travers les phonons optiques, cette méthode est sensible à la nature du matériau, aux nombres de couches atomiques et aux contraintes mécaniques d'un matériau. Comme les phonons optiques interagissent avec les phonons acoustiques du cristal à travers le potentiel de confinement anharmonique de ces phonons, cette méthode est aussi sensible aux variations de températures. En effet, la température ainsi que l'élongation en augmentant peuvent diminuer l'énergie des phonons optiques (et vice versa). Le dopage possède aussi un effet sur les pics Raman mais plus difficile à interpréter.<sup>94</sup>

Dans la Figure 39, nous avons un exemple de spectres Raman dans le MoS<sub>2</sub> et le WSe<sub>2</sub> multicouches. Comme ces matériaux partagent une structure cristalline similaire, ils possèdent tous les deux des modes de vibrations dans le plan atomique (Le mode E) et hors plan (Le mode A) qui sont similaires mais à des énergies différentes. Pour le MoS<sub>2</sub>, les pics E et A sont apparissent respectivement à 384 cm<sup>-1</sup> et 407 cm<sup>-1</sup> et ceux du WSe<sub>2</sub>, ces pics plus rapprochés et sont à 247cm<sup>-1</sup> et 252cm<sup>-1</sup>.

Dans la suite du manuscrit, nous allons nous servir de la spectroscopie Raman pour établir des mesures de température sur des échantillons de MoS<sub>2</sub> suspendu.

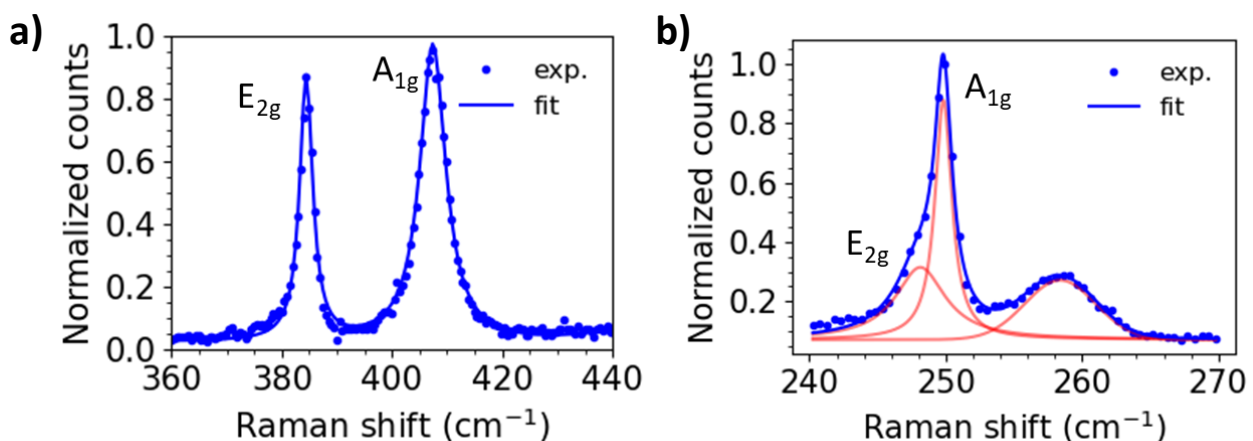


Figure 39 – Spectroscopie Raman typique du MoS<sub>2</sub> (a) et WSe<sub>2</sub> (b).



la Figure 40, nous avons mesuré la résolution spatiale du montage expérimental. Nous avons utilisé du Silicium sur lequel a été déposé un carré d'or de 10 $\mu$ m de large.

Nous avons tracé l'intensité du pic Raman perpendiculairement au bord de marche (voir l'image optique dans la Figure 40). Ensuite, considérant que le laser est de forme gaussienne circulaire, nous simulons le résultat en convoluant un bord de marche avec une gaussienne 2D et effectuons un ajustement de l'intensité du pic Raman en fonction

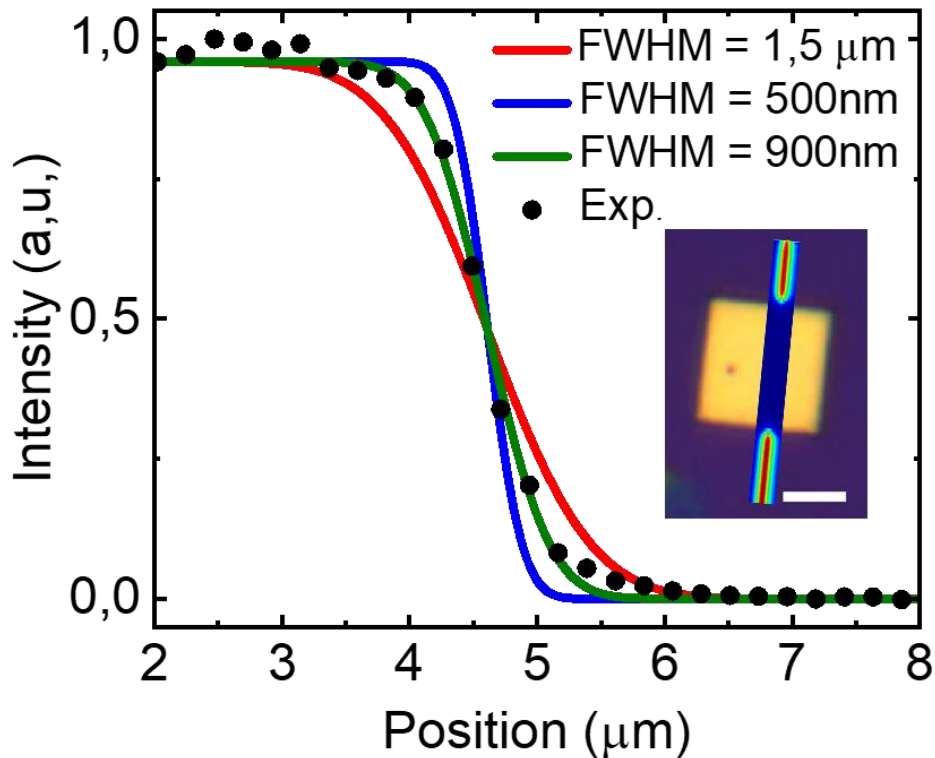


Figure 40 - Caractérisation de la taille du faisceau laser utilisé pour la spectroscopie Raman et la PL avec un objectif x50. L'intensité du pic Si a été mesurée le long d'un carré d'or. Nous observons la disparition du pic Si totalement quand l'objectif passe au-dessus de l'or nous permettons ainsi d'estimer la largeur à mi-hauteur du faisceau laser (532 nm) à environ 900 nm. Echelle : 5 $\mu$ m.

de la largeur à mi-hauteur du faisceau. Dans ce cas précis, la largeur à mi-hauteur du laser est de 900nm.

## CHAPITRE 4 : UNE NANOGUITARE THERMIQUE EN $\text{MoS}_2$ <sup>103</sup>

---

Les nano et micro résonateurs mécaniques sont de plus en plus présents dans nos technologies actuelles et dans une grande variété d'instruments tels que les téléphones et les accéléromètres mais il est difficile de modifier les propriétés mécaniques de ces dispositifs. Les filtres acoustiques sont, par exemple, des micro résonateurs mécaniques fixés en fréquence, une fréquence accordable permettra d'avoir une bien meilleure versatilité sur les dispositifs. A l'échelle macroscopique, une corde de guitare est facilement accordable et sa fréquence de vibration peut être modifiée simplement en changeant le point d'appuie sur la corde ou en tournant la cheville au bout de la guitare et ce sur au moins une octave. Une octave est la multiplication par deux de la fréquence fondamentale. A l'échelle d'un nano résonateur, c'est évidemment impossible d'utiliser ses mains pour faire varier la fréquence de vibration d'un tambour mais il est possible d'agir autrement. La fréquence de résonance est dépendante de la raideur  $k$  de l'oscillateur et de sa masse  $m$  ( $f = \sqrt{k/m}$ ). Le changement de fréquence peut agir sur l'un ou l'autre des paramètres ; soit on ajoute une masse, soit on applique une force. En l'occurrence, on parle de force électrostatique comme gravitationnelle, ou une contrainte mécanique interne.

Les résonateurs mécaniques à l'échelle nanométrique détiennent le record de la détection de masse<sup>43</sup> et de la détection de force<sup>44,45</sup>. Les modes vibrationnels des matériaux 2D sont également très utiles pour concevoir des bolomètres efficaces ( $\text{pW/Hz}^{0,5}$ ),<sup>39</sup> sensibles à la température, à la conductivité thermique et à la chaleur spécifique.<sup>48</sup> Le chauffage thermique semble être une solution fiable pour améliorer l'accord de la fréquence mécanique des matériaux 2D, de plus d'une octave. En revanche, l'effet de la contrainte sur le transport thermique et réciproquement sont loin d'être compris.<sup>50</sup>

Dans ce chapitre nous allons explorer les différentes méthodes permettant de modifier la fréquence de résonance d'un nano résonateur 2D. En particulier nous allons nous

focaliser sur une méthode exploitant le chauffage électrothermique, c'est-à-dire par effet Joule. Nous allons voir que cette méthode est très efficace. Pour cette étude nous avons comparé les performances d'accordabilité des fréquences de résonance de plusieurs dispositifs dans la littérature (une liste exhaustive d'environ 50 références) utilisant des matériaux 2D de différentes natures : le graphène<sup>44,104-107,38,108-121,39,122-127</sup>, les TMDs et hétérostructures<sup>40,128-138</sup> 2D ainsi que des nanotubes de carbones (matériau 1D)<sup>139-145</sup>. Un papier très récent avec des nanorésonateurs de silicium indique qu'il est possible d'avoir une variation de 70 % de la fréquence de résonance initial électrostatiquement ( $\sim 7 \text{ \%} \cdot \text{V}^{-1}$ ) sur des matériaux plus conventionnels mais que cela reste un défi technique.

#### **4.1. CARACTERISATION DU TAMBOUR EN MoS<sub>2</sub>**

L'échantillon est constitué d'un substrat SiO<sub>2</sub> préstructuré avec des cavités circulaires et électrodes en or (Figure 41). Ces structures sont ensuite recouvertes de quelques couches de MoS<sub>2</sub> déposées par la technique de transfert humide. Le MoS<sub>2</sub> est en contact avec des électrodes en or afin d'appliquer une tension source drain ( $V_{ds}$ ). Le substrat de silicium est utilisé comme grille arrière pour une configuration de type transistor. Sur l'image optique en Figure 41, nous voyons que la cavité centrale est entièrement couverte par le monocristal de MoS<sub>2</sub>, de sorte que le matériau 2D est suspendu au-dessus du trou circulaire et forme un tambour. Pour confirmer la planéarité et la qualité de surface de notre membrane suspendue, nous avons procédé à une caractérisation par microscopie à force atomique, sur la Figure 41-c, qui montre que la membrane recouvre uniformément la cavité et qu'elle ne contient pas de défauts. La déflexion verticale de la membrane est inférieure à 1nm.

Nous avons utilisé le dispositif expérimental décrit dans le chapitre 3, fonctionnant sous vide ( $10^{-5}$  -  $10^{-6}$  mbar) et à température ambiante, pour mesurer les vibrations de la membrane de MoS<sub>2</sub> suspendue. Nous excitons électriquement le mouvement du tambour et mesurons la vibration avec une réflectométrie laser. La résonance

mécanique de ce tambour à une fréquence de résonance  $f = 35.6$  MHz et un très bon facteur de qualité supérieur à 1000 à température ambiante. Ce dernier point indique la bonne qualité des transferts effectués ici. Nos mesures optomécaniques sont typiquement effectuées à  $1,5 \cdot 10^4$  W.cm<sup>-2</sup> densité optique incidente (633nm, 30μW, taille du spot ~500nm).

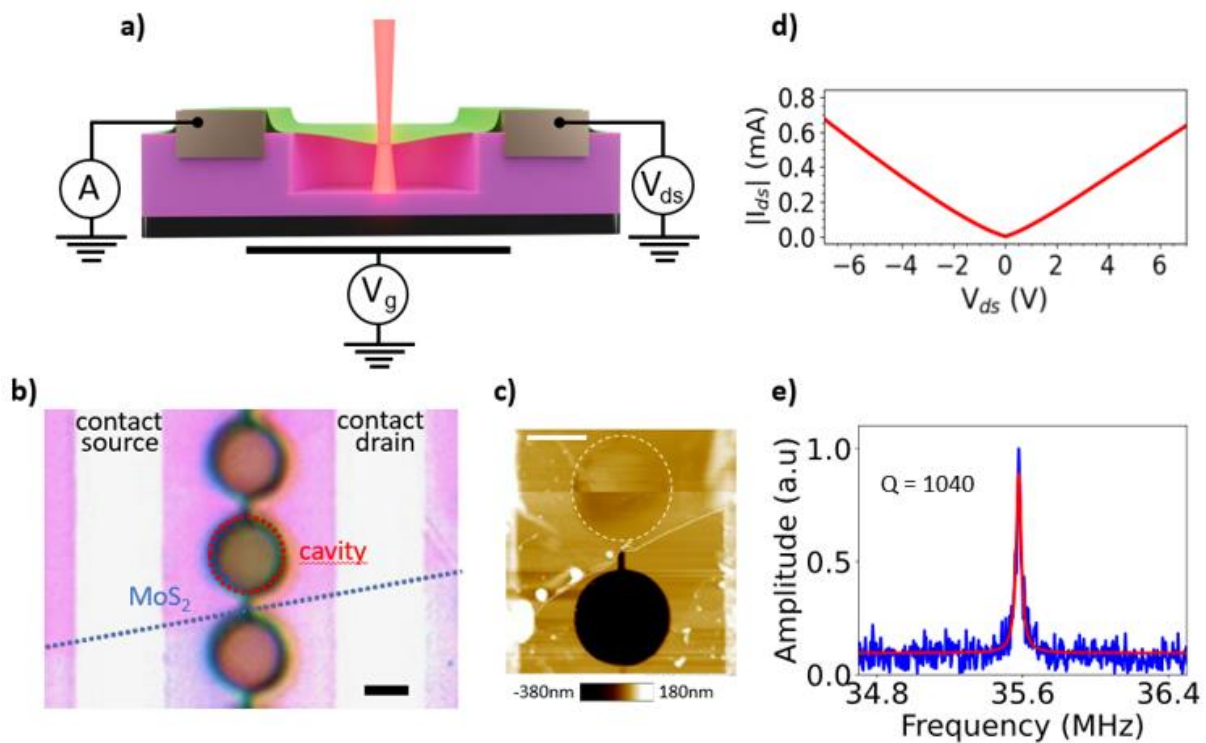


Figure 41 - Caractérisation du tambour. a) schémas du dispositif expérimental utilisé pour étudier les nano résonateurs avec un dispositif de type transistor pour l'excitation électrique et des mesures optiques. b) image optique d'un échantillon type de MoS<sub>2</sub> suspendu. Le MoS<sub>2</sub> est suspendu sur la cavité circulaire sombre (au milieu de l'image) et posé sur des électrodes. Echelle : 2 μm. c) Image AFM d'un échantillon type où la membrane circulaire est visible, en haut et contraste très bien avec la cavité circulaire non recouverte, partie noire en bas. La membrane ne présente pas de plis et elle est plate et sans imperfections. Echelle : 2μm. d) Mesure tension courant de l'échantillon à travers le MoS<sub>2</sub>. e) Mesure type de vibration de cet échantillon avec un facteur de qualité supérieur à 1000 à température ambiante.

Dans un premier temps, nous allons commenter et analyser quelques mesures optiques et électroniques. Nous savons que le matériau 2D MoS<sub>2</sub> est un semi-conducteur dont les propriétés dépendent de l'épaisseur. En effet, la structure de bande présente une

bande interdite indirect de 1,3 eV dans le bulk et présente une bande interdite directe de 1,8 eV au niveau de la monocouche<sup>146,147</sup>.

Sur la Figure 42, nous avons confirmé la nature multicouche du MoS<sub>2</sub> par des mesures AFM au bord de notre feuillet de MoS<sub>2</sub>. Cette mesure donne une épaisseur d'environ 5.8 nm. Le spectre Raman et PL sont mesurés pour nous assurer de la nature du matériau. Nous observons les pics A<sub>1g</sub> et E<sub>2g</sub> du MoS<sub>2</sub> à, respectivement, 408 cm<sup>-1</sup> et 385cm<sup>-1</sup>. La PL montre le spectre d'émission typique des excitons du MoS<sub>2</sub>, ici l'exciton A et B du MoS<sub>2</sub>, avec des énergies d'émission de 1.82eV et 1.96eV (Figure 42).

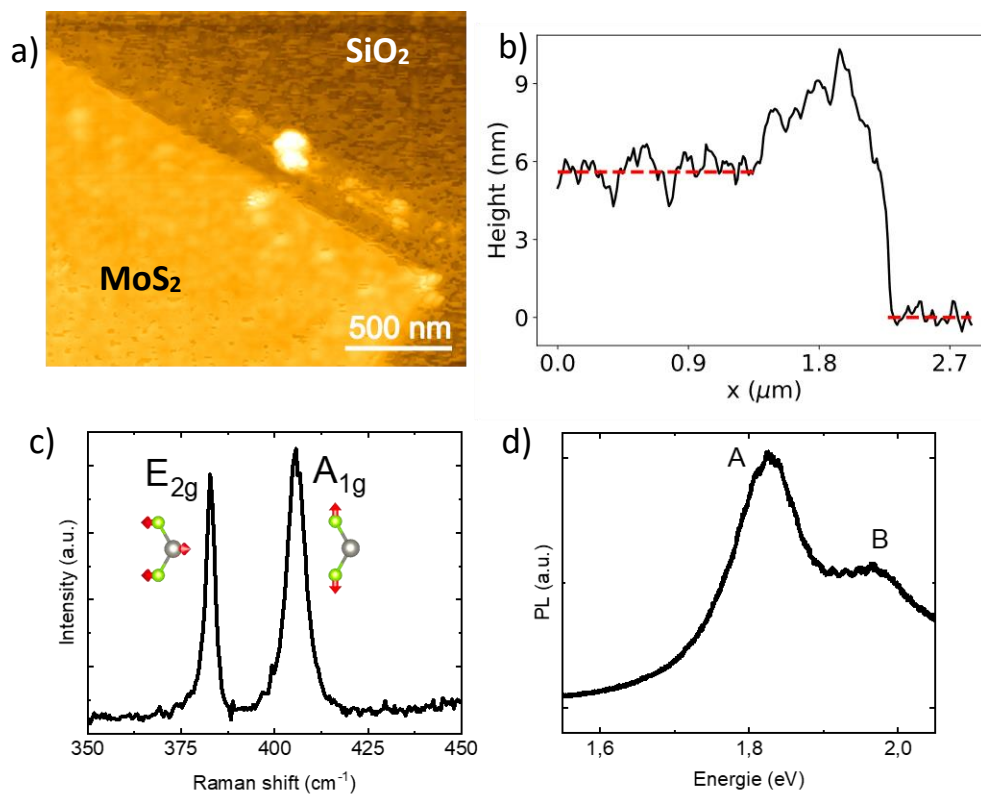


Figure 42 - Epaisseur et propriétés opto électronique du MoS<sub>2</sub>. a) Image AFM du bord d'un feuillet de MoS<sub>2</sub> déposé sur nos structures. b) Coupe longitudinale du feuillet de MoS<sub>2</sub>. L'épaisseur de ce feuillet est d'environ 5,8nm (ce qui correspond à 7 ou 8 couches). c) Spectre Raman du MoS<sub>2</sub>. d) Photoluminescence du MoS<sub>2</sub>.

Expérimentalement, la conductivité électrique de la membrane dépend fortement de la puissance laser incidente. A partir de travaux précédents à ma thèse<sup>94,95</sup> et confirmés depuis, nous nous sommes rendu compte que des pièges photo activés viennent fortement doper le matériau. Ces pièges sont les lacunes de soufre présentes nativement dans le MoS<sub>2</sub>.<sup>6,95,103</sup> Ces pièges possèdent une dynamique de relaxation

extrêmement lente ( $> 1000s$ ), permettant d'obtenir des courant persistants dans nos échantillons. Ce phénomène a perturbé les mesures mais a aussi permis de doper facilement le  $MoS_2$  et augmenter le courant à travers le  $MoS_2$ . Le résultat direct est qu'il est possible de chauffer l'échantillon avec une puissance électrique de l'ordre de 5 mW (Figure 41-d).

## 4.2. VARIATION ELECTROTHERMIQUE DE LA FREQUENCE DE VIBRATION

Les résonateurs mécaniques constitués de TMD ou d'hétérostructures 2D présentent une accordabilité de fréquence significative avec la variation de la tension électrique. Généralement, la fréquence de résonance est modifié par la force électrostatique induite par un tension de grille<sup>148–152,52,153–155,53,156,48</sup>. Même si la fréquence peut est fortement modulable de cette manière dans les matériaux 2D et nanotube de carbone, cela implique d'avoir une grille extrêmement proche du 2D (distance  $< 50nm$  pour une membrane de plusieurs microns de diamètre), ce qui est très difficile en pratique.<sup>110</sup>

Dans ce travail nous avons étudié la variation de la fréquence mécanique  $f_0$  en fonction de la tension source drain de notre résonateur  $MoS_2$  et du chauffage par effet Joule. La tension  $V_{ds}$  génère un courant  $I_{ds}$  passant par le  $MoS_2$ , la puissance électrique  $P = V_{ds}I_{ds}$  permet de chauffer la membrane de 90 degrés environ. Ce chauffage permet de dilater le matériau et ainsi, faire varier sa fréquence de vibration mécanique.

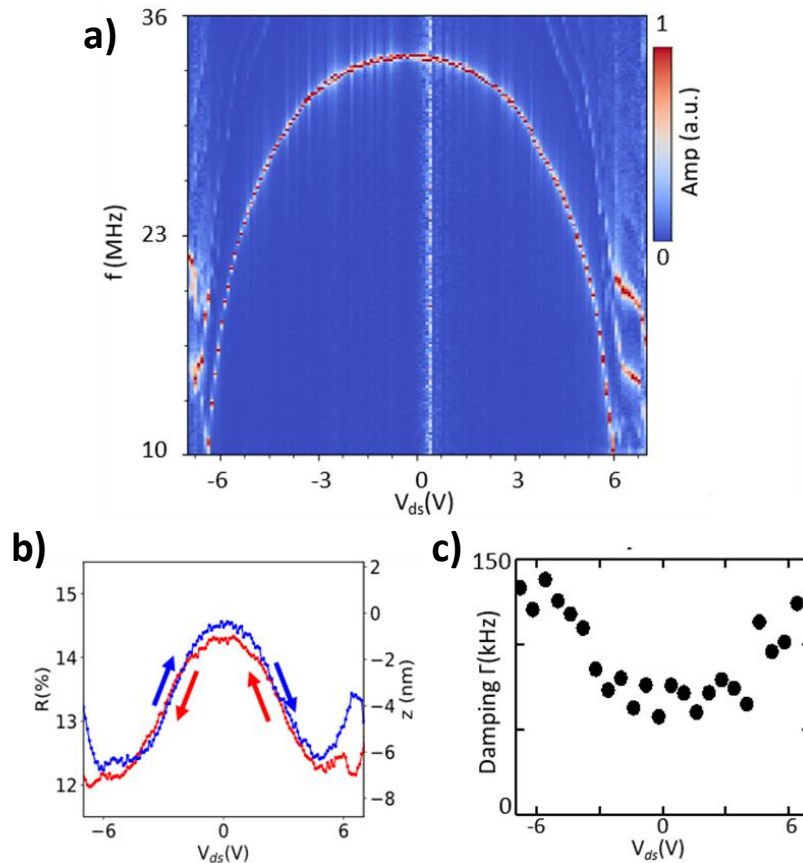


Figure 43 - Accordabilité électrothermique. a) Mesure de la fréquence en fonction de  $V_{ds}$ . La fréquence chute de 25 MHz en 6V de tension  $V_{ds}$  passant de 35 MHz à 10 MHz ce qui correspond à un facteur 3.5 entre la plus grande et plus basse fréquence. b) Mesure de réflexion de l'échantillon en fonction de  $V_{ds}$ . Cette méthode permet de calculer la déflexion  $z$  par rapport au niveau d'équilibre sans tension  $V_{ds}$ . c) Mesure de l'amortissement des vibrations en fonction de  $V_{ds}$ . Le facteur de qualité diminue quand la valeur du chauffage augmente dû aux dissipations thermiques plus importantes.

En effet, expérimentalement, le tambour présente une très grande modification de la fréquence de vibration en fonction la tension drain-source  $V_{ds}$ , avec un décalage de fréquence maximum  $\Delta f = f_{\max} - f_{\min}$  de 24 MHz, entre la fréquence maximum ( $f_{\max}$ ) et minimum ( $f_{\min}$ ). C'est une accordabilité sur 1,4 octave de la fréquence minimale (10MHz). Ici,  $f_{\max}$  est obtenue à  $V_{ds} = 0$ V tandis que  $f_{\min}$  utilisée  $V_{ds} = 6$ V sous une tension de grille continue  $V_g = 1$ V. Nous rajoutons que l'efficacité d'une telle variation est telle que nous modifions la fréquence de 123% par Volt appliqué.

Le ramollissement de la membrane est lié au chauffage par effet Joule de la membrane. Le tambour 2D est chauffé localement, dans la partie suspendue pour une puissance électrique appliquée de quelques mW. Ceci sera confirmé plus tard dans le manuscrit par des mesures de spectroscopie Raman. Pour caractériser le maximum de l'efficacité d'accord en fréquence (TE – Tuning efficiency) pour chaque dispositif, nous définissons une figure de mérite qui se base sur la pente maximale de la variation de la fréquence  $f_0$  ( $V_{ds}$ ) avec une tension électrique. L'accordabilité en fréquence observée via la tension source-drain  $Tf_V = 1/f_0 \cdot (\partial f_0 / \partial V_{ds})_{max}$  est très grande dans notre expérience (123%/V). C'est presque un ordre de grandeur plus grand que les travaux précédents, voir la Figure 44<sup>148-152,52,153-155,53,156,48</sup> sur des matériaux 2D semi-conducteurs (Figure

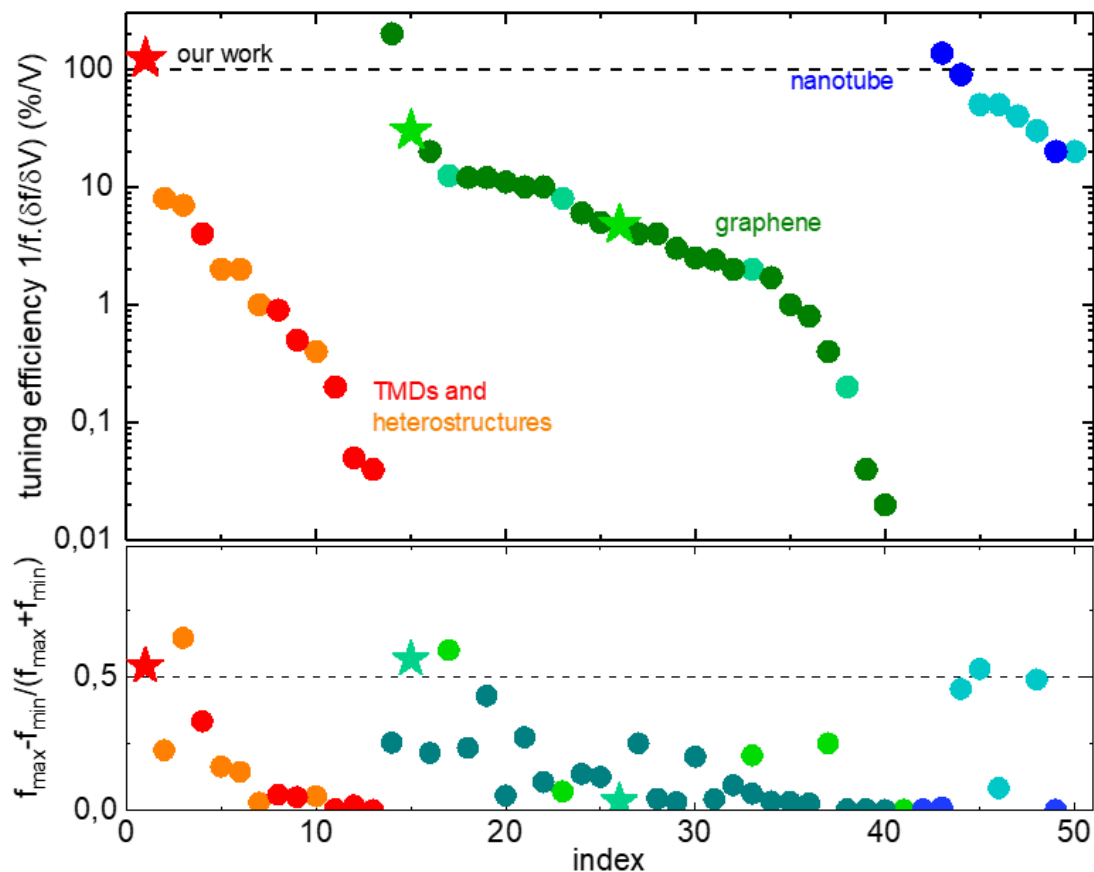


Figure 44 - Résumé des performances des différents dispositifs dans la littérature scientifique. L'étoile rouge représente les performances de notre étude. Les couleurs représentent les différents matériaux utilisés indiqués dans le graphe. Les étoiles indiquent les dispositifs utilisant l'actuation électrothermique. Pour les détails, voir l'annexe A.



44, rouge-orange) et conducteurs (Figure 44, bleu-vert). Un résultat précédent, basé sur une membrane de graphène, a obtenu une modulation de la fréquence comparable.<sup>44,157</sup> Ceci est dû principalement à une distance très courte entre la membrane et la grille métallique (33-85nm) et reste difficile à réaliser expérimentalement. L'actionnement électrothermique avec une modification importante de la fréquence  $Tf_V \sim 30\%/V$  a été rapportée pour des membranes de graphène<sup>104,114</sup>. Cela confirme l'efficacité d'une telle méthode d'ajustement de fréquence. Une valeur élevée de  $Tf_V$  a été obtenue pour des nanotubes de carbone en suspension dans des conditions extrêmes,<sup>139,140</sup> ceci est dû au couplage électron-phonon mais dans ce cas la variation de fréquence n'est que de 1MHz au maximum. Ce qui nous amène à définir une seconde figure de mérite, liée à la définition de l'octave.

L'accordabilité absolue de la fréquence  $Tf_A$  définie comme  $Tf_A = (f_{max} - f_{min}) / (f_{max} + f_{min})$  définit l'amplitude de la plage de fréquences accordable et la différence entre la fréquence la plus haute et la plus basse obtenue, étroitement liée à la plage dynamique  $DR = f_{max} / f_{min}$ . Nous avons atteint une valeur de 54%, ce qui est parmi les meilleures valeurs rapportées jusqu'à présent et sachant que 50% représente une variation d'une octave. Pour tous les dispositifs étudiés, notre travail est le seul à avoir à la fois  $Tf_V$  et  $2Tf_A$  supérieures à 100%. L'actionnement électrothermique est donc un moyen très simple et efficace d'ajuster la fréquence d'un nanorésonateur avec une simple tension.

Pour comprendre l'origine exacte et avoir une description quantitative de ce phénomène, nous passons en revue les contributions de chacune des sources possibles de ramollissement mécanique. On a vu dans le chapitre 2 que, pour une membrane circulaire fixé aux bords, la fréquence du mode fondamental  $f_0$  se décompose comme suit :

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{f_m^2 + f_B^2 + f_z^2(z) - f_s^2(V_g)} \quad (32)$$

$$f_m^2 = \frac{2.405^2}{R^2} \frac{\gamma_0 + \gamma_T(T)}{\rho t}$$

$$f_B^2 = 2.405^4 \frac{Et^3}{12(1-\nu^2)} \frac{1}{R^4 \rho}$$

$$f_z^2(z) = 2.405^2 \cdot 12/3 \cdot Et/(1-\nu^2) \cdot z^2/R^4 \rho$$

$$f_s^2(V_g) = 1.23 \epsilon_0 V_g^2 / d_0^3 \rho$$

Le premier terme  $f_m^2$  est strictement mécanique et détaillé dans l'équation ci-dessus. Il relie la tension mécanique dans le plan ( $\gamma_0$ ) aux considérations géométriques de la membrane ( $R$  est le rayon,  $t$  est l'épaisseur et  $\rho$  est la densité du matériau). Nous remarquons que  $f_m$  dépend de la température puisque la dilatation du matériau varie  $\gamma_0$  comme  $\gamma_0(T)$ . Dans notre expérience, la température de la membrane  $T$  est principalement contrôlée par le chauffage par effet Joule. Nous allons établir par la suite le profil de température de long de la membrane.

Le second terme  $f_B$  est détaillé dans l'équation (3), concerne la rigidité en flexion et est proportionnel au cube de l'épaisseur de la membrane  $t^3$ . Comme notre membrane est presque atomiquement mince,  $t = 5.8$  nm pour 5 couches environ,  $f_B$  est petit et vaut environ 4MHz. On peut le considérer comme négligeable à l'image des travaux précédents sur les matériaux 2D.<sup>7</sup> Par contre, ce terme domine l'équation du mouvement pour les couches de quelques dizaines de nm d'épaisseur.

Le troisième terme,  $f_z(z)$  relie le déplacement vertical relatif du centre de la membrane ( $z$ ), mesuré par rapport à sa position de repos ( $z_0 = 0$  à  $V_{ds} = 0V$  dans la Figure 43-b), avec le Module d'Young ( $E$ ) et le coefficient de Poisson ( $\nu$ ) du matériau 2D, respectivement. Ici, le terme de déflexion vertical comprend bien sûr la déviation due à la force capacitive statique  $F_C$  appliquée sur la membrane mais aussi les forces photothermiques et les pressions de radiation. Nous avons  $F_C = dC/dz \cdot (\bar{V}_g - V_{ds}/2)^2$  dans un régime diffusif et ohmique, avec  $C$  la capacité locale. Comme  $f_z$  ne dépend que

de la tension de grille  $V_g$  et de la distance ( $d_0-z$ ), nous pouvons quantifier sa valeur par une détermination indépendante de  $z$ . A cette fin, nous étudions in-situ la variation de la réflectance du laser ( $R$ ) en fonction de la tension de la source du drain ( $V_{ds}$ ) à une tension de gain fixe ( $V_g=1V$ ). Sur la Figure 43-b, en modélisant la membrane 2D et la surface  $SiO_2$  sous-jacente comme une cavité optique, nous obtenons une expression quantitative de la réflectance du laser qui dépend de la longueur de la cavité ( $d=d_0+z$ ) et donne ainsi une valeur de  $z$ .  $z$  est la déflexion au centre ce qui est différent de la déflexion  $w(r)$  le long de la membrane,  $z=w(0)$ . Nous mesurons une déflexion maximale  $z=-6$  nm lorsqu'une tension latérale  $V_{ds}=6V$  est appliquée à l'échantillon. Nous pouvons évaluer le terme  $f_z$ .

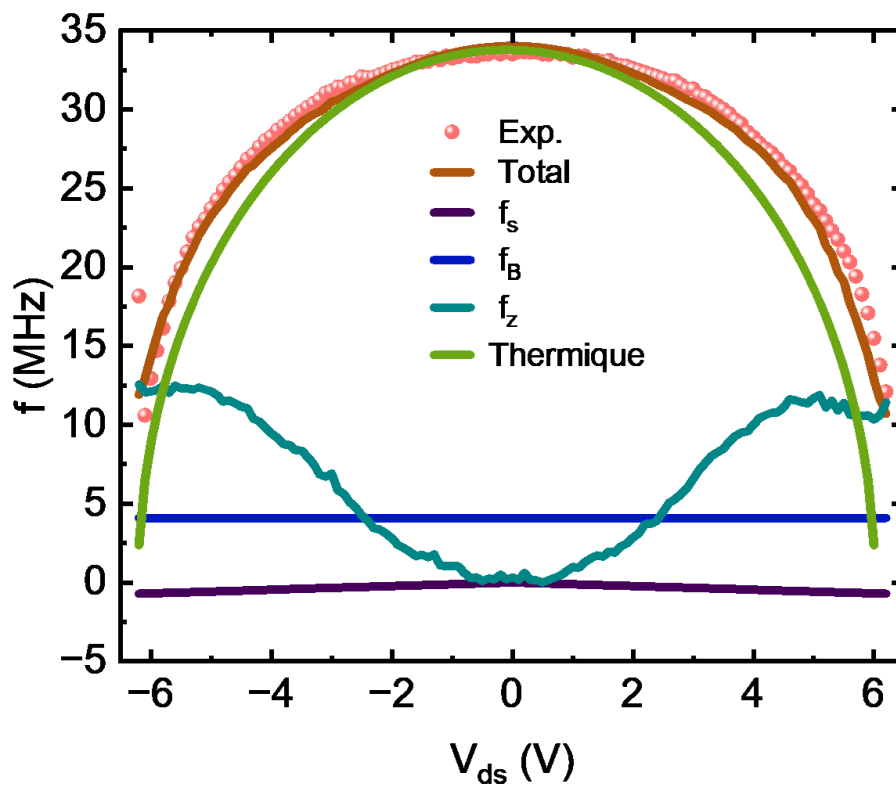


Figure 45 – Contribution à la fréquence de résonance de chaque terme dans l'équation 32 ; le terme de rigidité ( $f_B$ ), le terme de ramollissement capacitif ( $f_s$ ), le terme de flexion dépendant de  $z$  ( $f_z$ ), et enfin le terme qui correspond à la dilatation thermique (Thermique ou  $f_m$ )

Le dernier terme  $f_s$  est la contribution liée au ramollissement de la membrane par des effets capacitifs et détaillée dans l'équation 4. Il relie la permittivité du vide ( $\epsilon_0$ ) avec la tension de grille ( $V_g$ ) et la distance verticale ( $d_0$ ) entre la position de repos de la membrane ( $z_0$ ) et la surface inférieure de la cavité.

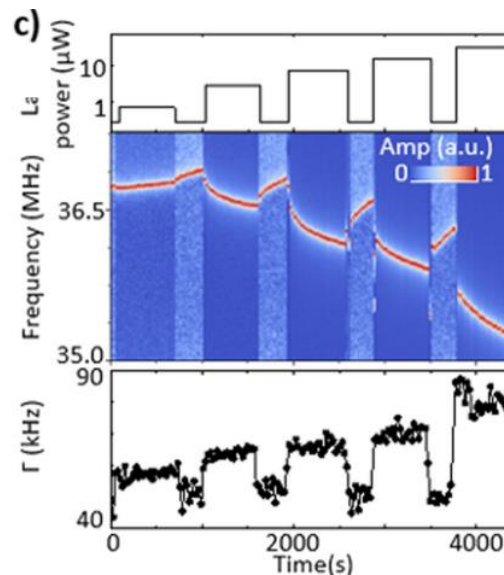


Figure 46 - Mesure de la réponse du signal mécanique et du taux d'amortissement  $\Gamma$  en fonction du temps pour différentes valeurs de la puissance laser entrante, de  $3\mu\text{W}$  à  $30\mu\text{W}$  comme indiqué sur la figure du haut. Pour la puissance minimale, à  $3\mu\text{W}$ , l'amplitude du signal a été augmentée pour plus de clarté. On observe que pour chaque puissance, la fréquence converge lentement vers une valeur spécifique. Après un certain temps sans lumière, la fréquence initiale est retrouvée

Pour exclure toute problème, en particulier une contribution dû au laser nous utilisons une puissance laser constante ( $30\mu\text{W}$ ) et la membrane est illuminée en continu pendant 30 min avant l'acquisition des données. L'effet du laser est mesuré indépendamment dans la Figure 46. Nous avons procédé à la mesure du signal mécanique en fonction du temps pour différentes puissances laser, de  $3\mu\text{W}$  à  $30\mu\text{W}$ , dans la Figure 46. Avec une puissance de  $30\mu\text{W}$ , il y a une diminution de la fréquence de la vibration de 1,5 MHz et le taux d'amortissement augmente de 50 kHz à 90 kHz, le taux d'amortissement est relié à la dissipation,  $\Gamma = 1/2Q$ ,  $Q$  étant le facteur de qualité. Cet effet photoinduit est très similaire au chauffage par effet Joule ; lorsqu'une tension d'environ 3 V est appliquée au résonateur, la fréquence diminue de près de 2 MHz et l'amortissement passe de 60 kHz à 90 kHz. Cette similitude suggère fortement un chauffage

photothermique de la membrane. L'augmentation de température correspondante est d'environ 10 °C, ce qui est tout à fait raisonnable si l'on considère une puissance laser de quelques dizaines de  $\mu\text{W}$  sur un matériau 2D en suspension. Les temps longs de la variation de la fréquence suggèrent aussi un effet lié au dopage et au déplacement des pièges électroniques dans le  $\text{MoS}_2$  (lacunes de soufre).

Dans la Figure 45, nous avons évalué chaque terme indépendamment. Connaissant  $f_z$ ,  $f_B$  et  $f_s$ , le terme dominant qui détermine le modèle de la fréquence mécanique en fonction de  $V_{ds}$  est le terme  $f_m$ . Comme  $f_m$  ne dépend de  $V_{ds}$  que par le biais de la dilatation thermique et de la baisse de la tension de la membrane dans le plan  $\gamma_0$  nous pouvons obtenir une mesure de la variation  $\gamma_0(V_{ds}, I_{ds})$ . Cette variation correspond parfaitement au modèle de chauffage électrothermique approprié de notre membrane, voir Figure 45 .

### 4.3. BOLOMETRIE EN SPECTROSCOPIE RAMAN ET EN MECANIQUE

Pour étudier expérimentalement le profil de température de notre membrane in-situ, nous utilisons la spectroscopie Raman. Dans un premier temps, nous avons effectué une calibration pour pouvoir connaître la température en fonction de la position des

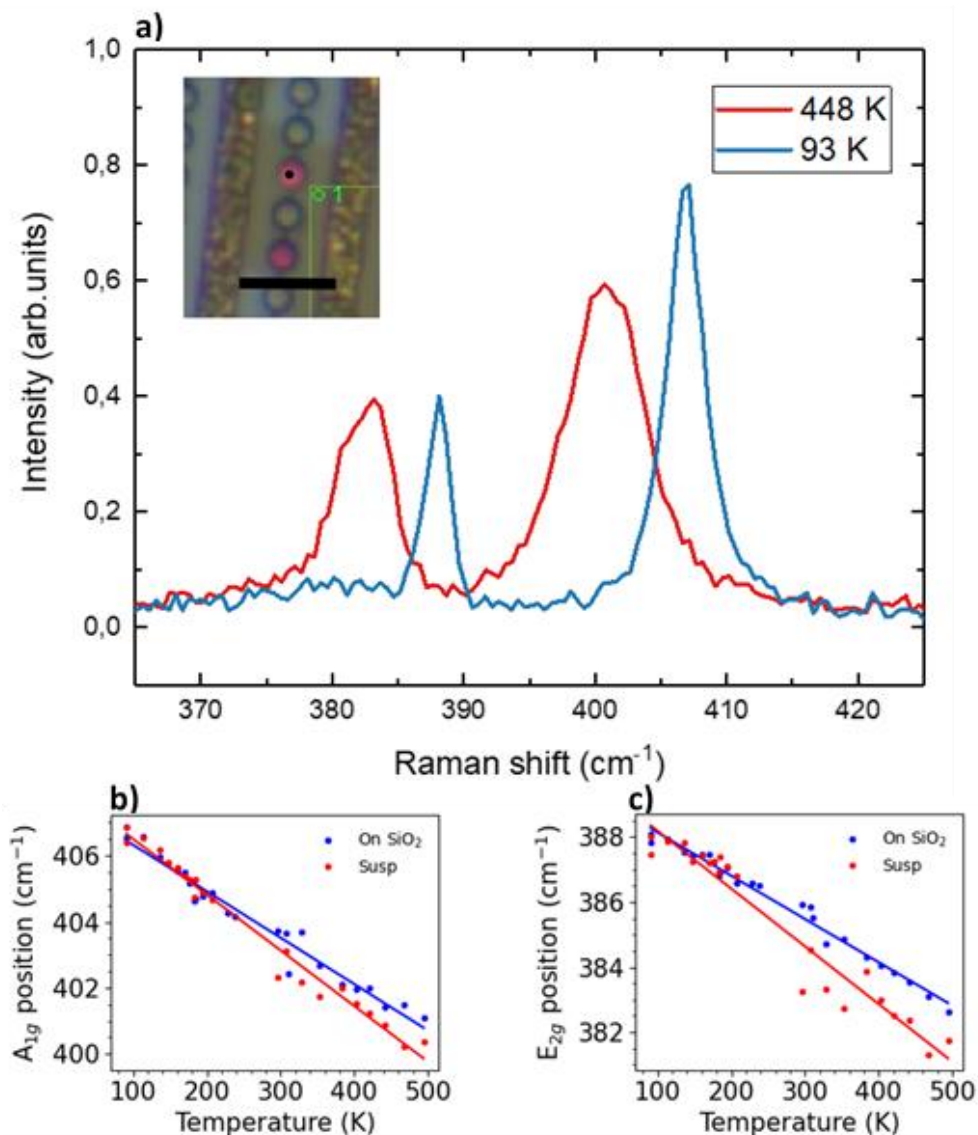


Figure 47 - Calibration des positions des pics Raman du MoS<sub>2</sub> en fonction de la température. La mesure est faite dans une cellule Linkam sous vide primaire et la température est celle de l'ensemble du substrat a) Mesures des pics Raman à différentes températures. b) Variation de la position du pic A<sub>1g</sub> en fonction de la température. Le pic présente une variation de  $-1,40 \text{ cm}^{-1}/100\text{K}$  sur substrat et  $-1,33 \text{ cm}^{-1}/100\text{K}$  pour la partie suspendue. c) Variation de la position du pic E<sub>2g</sub> en fonction de la température. Le pic présente une variation de  $-1,68 \text{ cm}^{-1}/100\text{K}$  sur substrat et  $-1,77 \text{ cm}^{-1}/100\text{K}$  pour la partie suspendue.

pics Raman. Pour cela, nous avons utilisé une cellule Linkam et un Spectromètre Raman Horiba HR evolution. Dans la Figure 47, nous avons mesuré les spectres Raman en variant la température de l'ensemble de l'échantillon. Nous observons un fort décalage en position entre les basses températures et hautes températures. Ce décalage présente une relation linéaire avec la température. Nous en déduisons la variation  $dA_{1g}/dT$  et  $dE_{2g}^1/dT$  qui sont respectivement de  $-1,4 \text{ cm}^{-1}/100\text{K}$  et  $-1,69 \text{ cm}^{-1}/100 \text{ K}$  pour le matériau sur substrat et  $-1,33 \text{ cm}^{-1}/100 \text{ K}$  et  $-1,77 \text{ cm}^{-1}/100 \text{ K}$  pour le matériau suspendu. Dans la littérature nous trouvons des valeurs similaires à  $-1,6 \text{ cm}^{-1} /100 \text{ K}$  et  $-1,3 \text{ cm}^{-1} /100 \text{ K}$  pour un feuillet monocouche, et de  $-1,3 \text{ cm}^{-1} /100\text{K}$  et  $-1,5 \text{ cm}^{-1} /100\text{K}$  pour une multicouche<sup>17</sup>.

Ensuite, avec le même montage, nous avons chauffé la membrane en appliquant des puissances électriques à travers le MoS<sub>2</sub>. Dans la Figure 48, nous avons mesuré les variations des deux principaux modes Raman A<sub>1g</sub> et E<sub>2g</sub> de la membrane MoS<sub>2</sub> pour différentes puissances électriques injectées. A température ambiante, la position de référence du pic A<sub>1g</sub> est de  $408 \text{ cm}^{-1}$  et le pic E<sub>2g</sub><sup>1</sup> est de  $385 \text{ cm}^{-1}$ . Les deux principaux pics Raman A<sub>1g</sub> et E<sub>2g</sub><sup>1</sup> sont décalés avec la puissance électrique appliquée à l'échantillon. Le rapport des décalages entre les deux pics est presque égal à 1, c'est la preuve expérimentale que nous mesurons une variation de température de la membrane suspendue.<sup>17,158</sup> Nous calculons la température de la membrane comme suit ;  $T = 24^\circ\text{C} + \Delta E_{2g}^1 \cdot dE_{2g}^1/dT$ , la salle étant à  $24^\circ\text{C}$ . En procédant de manière similaire pour toutes les tensions  $V_{ds}$ , nous combinons dans la Figure 48 la variation de la température dérivée par Raman et le chauffage par effet Joule ( $P_{ds} = I_{ds} \cdot V_{ds}$ ). La température de la membrane s'élève de plus de  $300^\circ\text{C}$  à  $P_{ds} = 18\text{mW}$ . Nous observons également une dépendance linéaire, du au chauffage de la membrane dans le vide.

La Figure 48 présente des pics supplémentaires dont la position ne change pas avec la température et la puissance électrique injectée. Ces pics supplémentaires proviennent de la partie non suspendue et thermalisée par le substrat. C'est le diamètre du faisceau laser,  $900\text{nm}$ , qui ne permet pas de séparer complètement les contributions des parties

suspendu et non suspendu. Pour confirmer cette hypothèse, nous avons effectué des mesures Raman supplémentaires sur une seconde membrane (Figure 49). Nous avons mesuré le profil du spectre Raman le long d'une ligne contenant une partie non suspendue et une partie suspendue. L'effet du chauffage est clair sur la partie

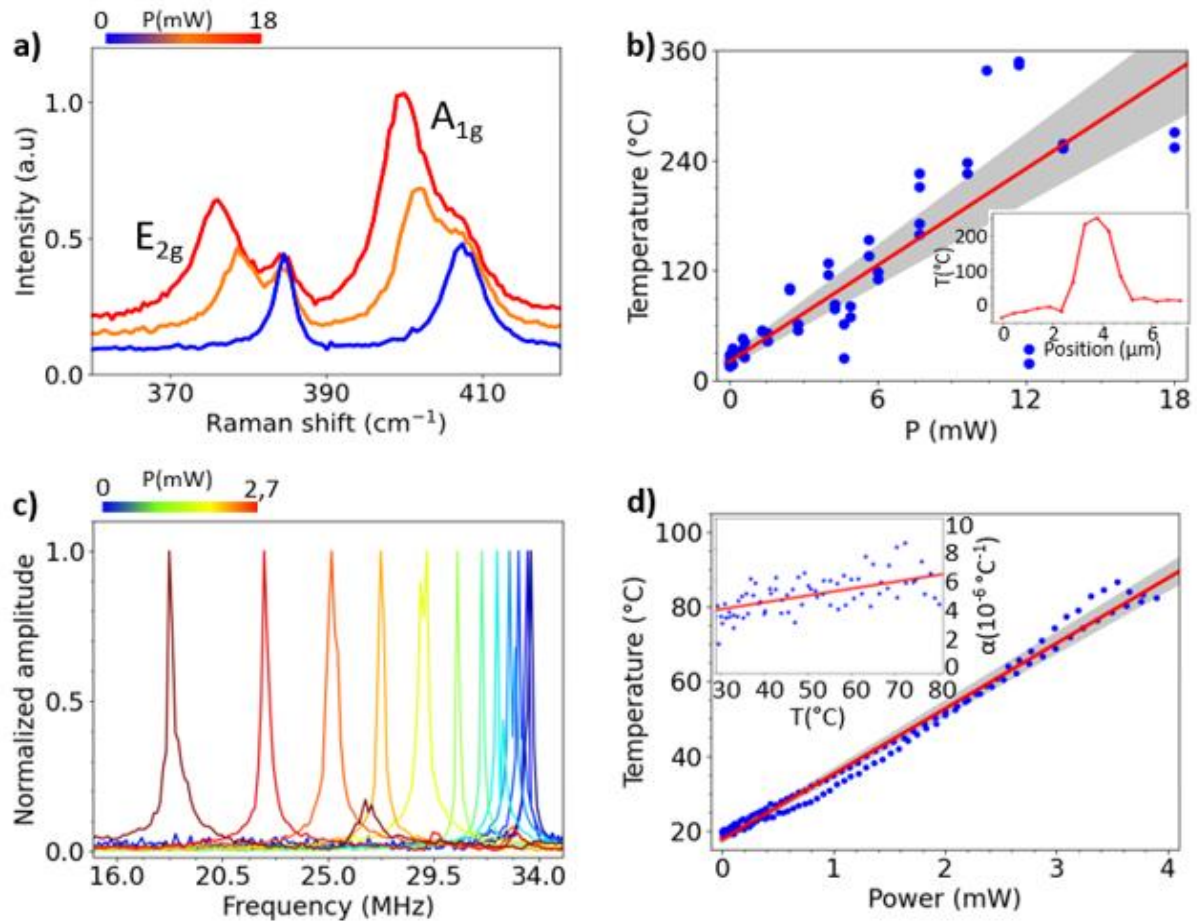


Figure 48 - Mesure du transport thermique : Raman et optomécanique (a) Spectroscopie Raman de la membrane MoS<sub>2</sub> à différentes puissances de chauffage joule (P). Ligne bleue : aucune polarisation appliquée, la membrane n'est pas chauffée. Orange et rouge : nous avons appliqué différentes polarisations source-drain et obtenu une puissance de chauffage de P = 8 mW et P = 19 mW. (b) Température, obtenue par Raman, du matériau 2D en fonction de la puissance appliquée. La ligne rouge est une régression linéaire de la courbe et la zone grise l'incertitude de la pente. En insert, la distribution spatiale de la température mesurée par Raman lors d'un chauffage par effet Joule de 1 mW le long du centre d'une membrane MoS<sub>2</sub> à 3.5 μm le long de l'axe du champ électrostatique (c) Fréquence de résonance de la membrane MoS<sub>2</sub> à différentes puissances de chauffage par effet Joule (P) de P = 0 mW (courbe bleu) à P = 2.7 mW (courbe rouge) (V<sub>g</sub> = 1V). (d) Température de la membrane en fonction de la puissance appliquée obtenue à partir de la résonance mécanique de la membrane. En insert, le coefficient de dilatation thermique  $\alpha$  extrait de la mesure en fonction de la température.



suspendue mais la partie qui ne l'est pas, n'est pas affectée par cet effet. Le chauffage par effet Joule permet de chauffer les nano résonateurs suspendus sans affecter leurs environnements, c'est-à-dire la partie non suspendue car la dissipation thermique à travers le substrat est conséquente et empêche de chauffer ces parties. En combinant les mesures Raman bruts le long de cette ligne et la calibration, nous pouvons accéder au profil de température le long de l'échantillon (courbe orange dans la Figure 49). La température ainsi extraite varie de  $-30^{\circ}\text{C}$  sur la partie non suspendue (qui devrait être à température ambiante mais à cause des imprécisions de la mesure au Raman et de la variabilité des pics associés, la température peut dévier de la température réelle jusqu'à quelques dizaines de degrés Celsius) à  $260^{\circ}\text{C}$  au centre de la membrane.

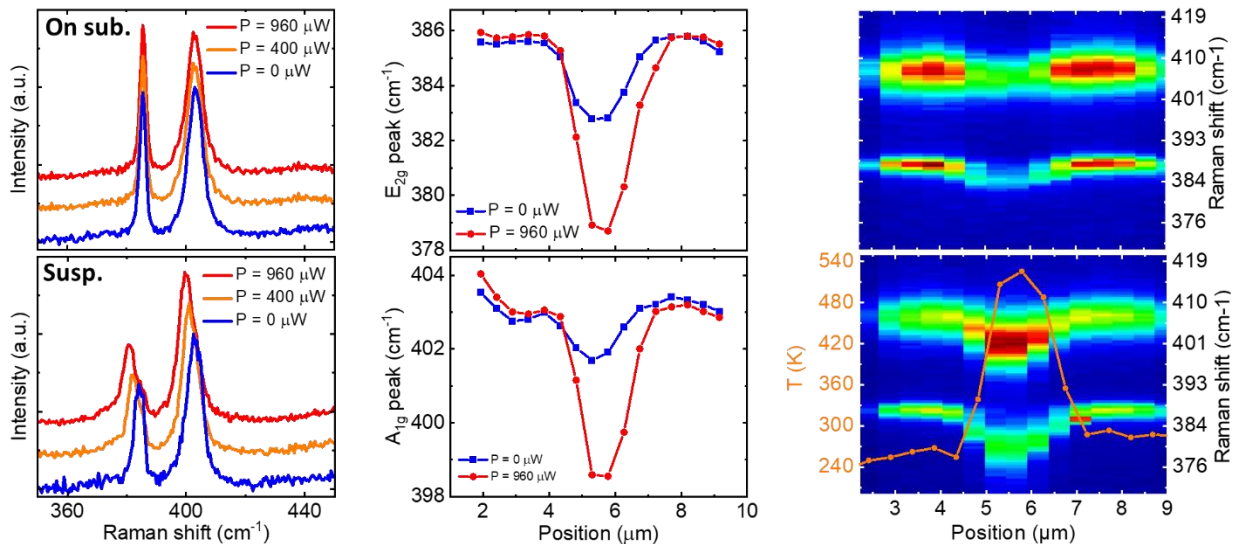


Figure 49 - Spectroscopie Raman avec et sans le chauffage par effet Joule d'une deuxième membrane  $\text{MoS}_2$ . Nous montrons le spectre Raman à différentes puissances électriques à différents endroits : la partie suspendue (a) et la partie non suspendue (b). Nous avons mesuré le spectre du pic Raman et la position  $E_{2g}^1$  dans (c et e) et  $A_{1g}$  dans (d et f) le long de la membrane pour deux puissances électriques différentes à  $0 \mu\text{W}$  et  $960 \mu\text{W}$ . e) et f) représentent l'ensemble des spectres Raman le long de la ligne de mesure. Il est possible d'extraire le profil de température local le long de la membrane suspendue (courbe orange en f)

A partir des mesures précédentes, il est possible d'établir la conductivité thermique. En effet, les courbes b et d de la Figure 48 montrent une relation linéaire entre la différence

de température entre le centre de la membrane et le substrat et la puissance injecté dans l'échantillon, c'est-à-dire le flux de chaleur. D'après la Loi de Fourier, le coefficient entre une différence de température  $\Delta T$  le long d'un matériau et le flux de chaleur  $P$  appliqué est la conductivité thermique  $k$  du matériau  $P = k \cdot \Delta T$ .  $k$  est directement relié à la pente dans la Figure 48 -b et -d. Pour accéder à la conductivité thermique, nous avons recours à des simulations par élément finis avec le logiciel Comsol (Figure 50) de l'effet de chauffage par effet Joule le long de l'échantillon pour une puissance appliquée (note ; on utilise les modules de couplage de température et les modules de chauffage électromagnétique aux frontières). Nous avons besoin de définir un profil de densité de charge le long du dispositif et le résultat doit rester cohérent avec nos mesures du profil de température. Nous considérons que le courant provient principalement du photocourant dû à la différence de dopage et des pièges actifs qui augmentent localement le dopage et la densité de charge.<sup>95</sup> Nous avons vérifié que si nous prenons un dopage constant le long du matériau 2D, nous obtenons des résultats très similaires. Le MoS<sub>2</sub> est suspendu et sous vide ; la dissipation de chaleur dans la direction hors du plan est négligeable et l'énergie électrique est bien convertie en chaleur. On en déduit la variation de la température par rapport au pouvoir calorifique de la membrane.  $dT/dP = 17.5K/mW$ . La conductivité thermique résultante  $k$  du matériau 2D est  $k = 50 \text{ W.m.K}^{-1}$  ce qui correspond aux valeurs typiques de conductivité thermique dans du MoS<sub>2</sub> suspendu.<sup>17</sup>

Expérimentalement, nous chauffons notre échantillon par effet Joule en augmentant la puissance électrique injectée. Ceci entraîne une forte diminution de la fréquence de résonance. Comme pour les mesures de spectroscopie Raman, Il est possible de modéliser la conductivité thermique à partir de la dilatation thermique de la membrane.<sup>39,48</sup> Au premier ordre, la fréquence du mode fondamental de la membrane est décrite par une variation linéaire de la tension sa tension  $\gamma_0(T) = \gamma_0 + \gamma_T(T)$  dans le terme  $f_m$  où  $\gamma_T$  est la tension supplémentaire due à la dilatation thermique à la température  $T$  et  $\gamma_0 = 0.7$  N/m la tension intégrée à température ambiante ( $T_0 = 20^\circ\text{C}$ ) et une masse constante. La tension induite par la dilatation thermique peut être exprimée par  $\gamma_T = -Et \int_{T_0}^T \alpha(T') dT'$ , avec  $\alpha$  le coefficient de dilatation thermique (TEC). Nous avons déjà confirmé que, dans notre expérience, le chauffage du substrat ainsi que de la partie non suspendue est nul, nous négligeons ici toute contribution du substrat sous-jacent  $\text{SiO}_2$  et ne considérons que l'expansion thermique de la

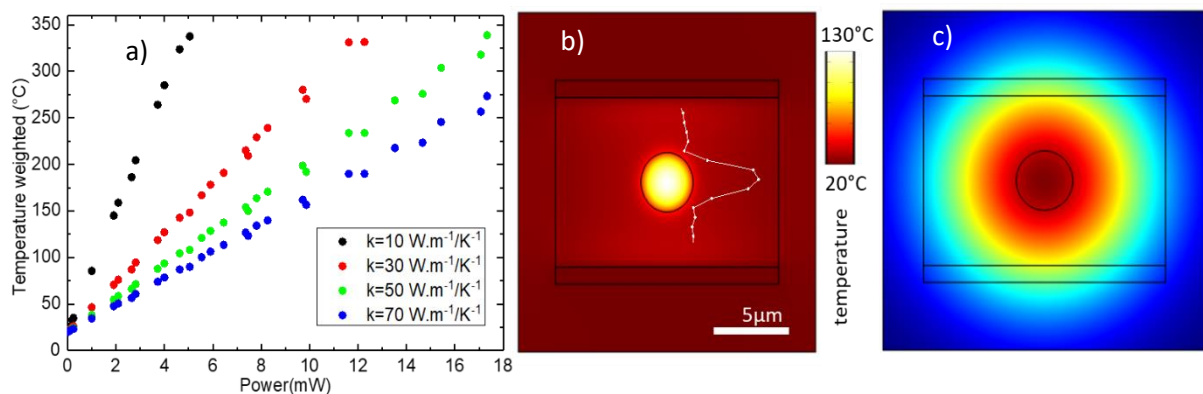


Figure 50 - Simulation de la température de la membrane  $\text{MoS}_2$  en fonction de la puissance de chauffage Joule. a) Température en fonction de la puissance électrique pour différentes conductivité thermique. Nous avons aussi fait varier le maximum de conductivité électrique et la largeur à mi-hauteur de la distribution de conductivité. b) Profil de température le long de l'échantillon pour  $V_{ds}=6\text{V}$ . La courbe blanche représente le profil expérimental de la température, en accord parfait avec notre simulation. c) Le profil de conductivité qui est défini par une distribution gaussienne ( $\sigma_{max}=21000$  S/m, largeur=  $10\ \mu\text{m}$ ).

membrane  $\text{MoS}_2$ . En utilisant l'équation 24 qui décrit la fréquence de résonance, nous pouvons déterminer la tension totale de la membrane pour toute puissance de chauffage. En combinant cela avec notre simulation de la conductivité thermique, nous

sommes capables d'extraire le TEC pour notre matériau pour chaque puissance de chauffage. Le résultat est présenté dans la Figure 48. Nous obtenons une TEC presque constante autour de la valeur  $\alpha = 5.10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Cette valeur et cette dépendance est en accord avec la valeur  $\alpha = 4.9.10^{-6} \text{ K}^{-1}$  obtenue expérimentalement pour le MoS<sub>2</sub> massif<sup>159–162</sup> et par la théorie<sup>159,163–166</sup> et autour de  $7,10^{-6} \text{ K}^{-1}$  pour le MoS<sub>2</sub> monocouche. Cela corrobore notre modèle d'échauffement thermique. La pente de la variation de la fréquence de vibration mécanique est d'environ  $df_0/dP = 5.26 \text{ MHz/mW}$ .

Maintenant que nous avons mesuré et modélisé la relation entre la fréquence de résonance et la température pour la membrane 2D, et que nous avons observé que le bruit de température semble bien plus faible avec la mesure optomécanique par rapport à la mesure Raman, il est raisonnable de vouloir déterminer la sensibilité en température et surtout les fluctuations de température

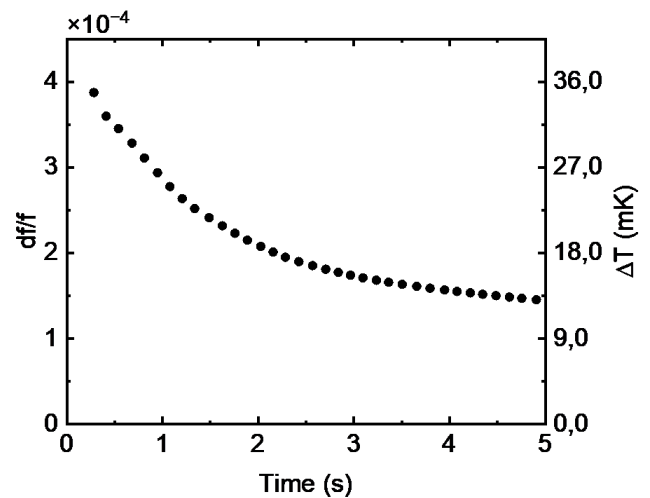


Figure 51 - Allan deviation pour nos mesures thermiques

de la mesure optomécanique. Ceci rentre dans le cadre des expériences de bolométrie. Afin d'extraire la sensibilité thermique de notre dispositif, nous fixons la fréquence du signal à mi-amplitude de la résonance mécanique, c'est-à-dire lorsque la pente de réponse  $\partial V_{out}/\partial f$  est maximale, et nous mesurons la tension de sortie  $V_{out}$  pendant un long moment. Sur la Figure 51, nous avons mesuré l'écart d'Allan de la fréquence en fonction du temps d'intégration définie sur un intervalle de temps  $\tau$  par  $df = \left[ \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (\langle f_i^\tau \rangle - \langle f_0 \rangle)^2 \right]^{1/2}$  avec  $\langle f_i^\tau \rangle$  la fréquence moyenne sur l'intervalle de temps  $i$  avec une durée  $\tau$  et  $\langle f_0 \rangle$  la moyenne de la fréquence sur l'ensemble de la mesure avec  $N$  points en fonction du temps. Nous avons mesuré le bruit de la tension de sortie  $\delta V_{out}$  lorsque la fréquence d'entraînement est fixée à la moitié de l'amplitude maximale de la résonance  $f_0$ . Le bruit en température est  $\delta T = \delta V_{out} \cdot (dT/df_0) \cdot (df_0/dV_{out})$ . En

convertissant le bruit de fréquence, nous obtenons un bruit de température de  $20\text{mK/Hz}^{0.5}$ . A titre de comparaison, la résolution en température avec les mesures Raman est de l'ordre de 20K pour quelques secondes de mesures par spectre. Les vibrations mécaniques sont très intéressantes pour des mesures de bolométrie, comparable aux meilleurs dispositifs actuels.

#### **4.4. CONCLUSION**

Dans ce chapitre, nous avons effectué des mesures mécaniques sur des membranes de  $\text{MoS}_2$  en suspension en combinant une mesure optique et une excitation électrique. Nous avons chauffé l'échantillon avec un courant électrique. Nous avons comparé les travaux antérieurs avec nos résultats. Nous obtenons une forte modulation de la fréquence des vibrations par de simples tensions électriques, et une gamme de fréquences très grande, sur bien plus qu'une octave. La méthode électrothermique est très efficace et plus simple que les méthodes capacitives traditionnelles ou d'autres solutions. En outre, l'accord électrothermique permet de mesurer les propriétés thermiques de la membrane, telles que la conductivité thermique ou la dilatation thermique du matériau.

## CHAPITRE 5 : DEFORMATION EXTREME D'UNE MEMBRANE 2D ET MESURES DE PHOTOLUMINESCENCE LOCALISES

---

L'application contrôlée d'une grande déformation dans des matériaux bidimensionnels (2D), d'une à quelques monocouches d'épaisseur, a donné lieu à des concepts de physique intéressants et est maintenant communément appelée " straintronique 2D " <sup>20-22</sup> avec des applications possibles dans le réglage la fréquence d'absorption ou de photoluminescence <sup>16,23-25</sup> d'un dispositif ou dans la fabrication de sources quantiques de photons à haute température. <sup>28,167-170</sup>

Les TMD 2D monocouches semi-conducteurs ont une bande interdite variant fortement selon les matériaux et doté d'une riche physique pour leurs propriétés optiques, dominée par des effets excitoniques même à température ambiante <sup>171</sup>. Associés à la résistance naturelle des matériaux 2D à des déformations extrêmes (jusqu'à 16 % de déformation dans le MoS<sub>2</sub> <sup>27</sup> ), les TMD monocouches sont devenus un terrain de jeu pour l'étude de l'effet des déformations extrêmes sur la structure de la bande électronique. En effet, il est possible d'accorder la longueur d'onde d'émission pour les semi-conducteurs 2D en fonction des contraintes mécaniques et les énergies de recombinaison excitoniques peuvent varier de manière réversible sur plusieurs centaines de meV à température ambiante pour quelques pourcent de déformation dans le plan <sup>172</sup>.

De plus, dans ces matériaux 2D, la combinaison de la déformation et des excitons conduit à considérer que les excitons peuvent diffuser ou dériver le long d'un fort gradient de déformation sur plusieurs microns. <sup>15,173-175</sup> Cet effet « d'entonnoir » a ouvert la voie à de récentes expériences sur la diffusion d'excitons à basse température <sup>73,176,177</sup> dans lesquelles la contrainte remplace le champ électrique et est utilisée pour manipuler les excitons chargés et neutres. <sup>178,179</sup> En particulier, on peut

observer avec ces méthodes certaines résonances excitoniques, difficilement mesurables car correspondant à des transitions entre bandes de spin opposé, à savoir les excitons sombres que l'on trouve dans les matériaux à fort couplage spin-orbite comme les TMD. C'est le cas car ils sont plus sensibles à l'effet de variation de contrainte. Ils présentent une dynamique beaucoup plus lente que les excitons brillants donc ils ont simplement plus de temps pour diffuser ou se déplacer. Ceci entraîne des temps (et des longueurs) de diffusion plus longs le long du gradient d'énergie induit par la contrainte.<sup>180,181</sup> La straintronique est une méthode privilégiée pour étudier cette particules.

Pour comprendre comment la déformation mécaniquement affecte les propriétés électroniques d'une couche atomiquement mince, il faut une méthode de déformation avec un contrôle nanométrique couplée à une sonde de résolution spatiale nanométrique. Ces deux exigences peuvent être satisfaites grâce à un système couplé de microscope à force atomique (AFM)-Photoluminescence (PL) capable d'effectuer des mesures de spectroscopie optique dont le signal localisé au bout de la pointe est augmenté par l'effet Purcell. On peut exciter sélectivement le matériau situé près de l'apex de la pointe et recueillir le signal optique correspondant. L'amplification en champ proche du signal de photoluminescence à l'extrémité de la pointe, permet d'obtenir une mesure PL renforcée par la pointe (TEPL), avec une résolution spatiale pouvant atteindre 20 nm<sup>179,182</sup>. Dans ce chapitre nous allons discuter des effets de l'indentation avec pointe AFM d'un matériau 2D suspendu en utilisant le système TEPL de chez HORIBA. Des expériences similaires ont été faites en étudiant, par exemple, la photoluminescence de nanobulles de monocouche de WSe<sub>2</sub><sup>182</sup> à température ambiante.

## 5.1. TAMBOUR EN WSSe ET TEPL : INTRODUCTION

Le schéma du dispositif expérimental de la pointe AFM appliquant une force locale calibrée sur une membrane monocouche WSSe 2D TMD suspendue est décrit en Figure 52-a. L'indentation entraîne une déflexion du 2D en forme de "tente" avec une distribution circulaire de la déformation. Le changement attendu dans la structure de bande de la monocouche WSSe est esquissé sur la Figure 52-b ; la déformation de la couche  $\epsilon$ , maximale au sommet de la pointe ( $r=0$ ), modifie de manière continue l'énergie de la bande interdite optique de la monocouche WSSe à mesure que l'on se déplace vers le centre de la pointe ( $r=\infty \rightarrow 0$ ). Cela crée un puits de potentiel circulaire au point d'indentation. Dans ce cadre, les excitons relaxent ou diffusent vers la région où l'énergie de la bande interdite est minimale (c'est-à-dire l'apex de la pointe) et sont réémis à cette énergie. Nous allons étudier ce signal optique et le profil des déformations le long de la structure.

Le matériau 2D monocouche (WSSe) a été fabriqué par CVD sur un substrat de  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  par le groupe de Anlian Pan. Nous avons transféré le 2D, par la technique de transfert semi sec, sur une surface de silice contenant des trous circulaires de telle sorte que de grandes parties du cristal 2D sont suspendues et étirées comme des "tambours" circulaires et plats. Le WSSe est un matériau TMD 2D ternaire dont la bande interdite dépend de la stœchiométrie du chalcogène. Une image optique est montrée à la Figure 52-c. Les cavités circulaires apparaissant en marron foncé et la surface de silice dénudée apparaît violette. Les Figure 52-d et Figure 52-e montrent la topographie AFM correspondante et les images de phase AFM de deux tambours adjacents, respectivement. La topographie révèle une surface plate tandis que l'image de phase sépare clairement la zone de membrane suspendue (mécaniquement souple) de la membrane reposant sur la surface de silicium (relativement plus dure). Il est possible d'observer la tranchée étroite entre les deux tambours, large de 200nm. En l'absence de contrainte externe, la photoluminescence à température ambiante de la membrane



WSSe suspendue consiste en deux pics standard, séparés de 40 meV, à savoir le pic d'exciton A à 1,872 eV et le pic de trion A' à 1,832 eV, comme le montre la Figure 52-f. Cette mesure est conforme aux précédentes mesures pour cette stœchiométrie et composition chimique  $WS_{1.3}Se_{0.7}$ .<sup>102,183</sup> La réponse Raman et l'absence d'autres contributions PL confirment la nature monocouche, monocristal et stœchiométrique de notre matériau WSSe et l'absence de toute oxydation de surface.<sup>183</sup>

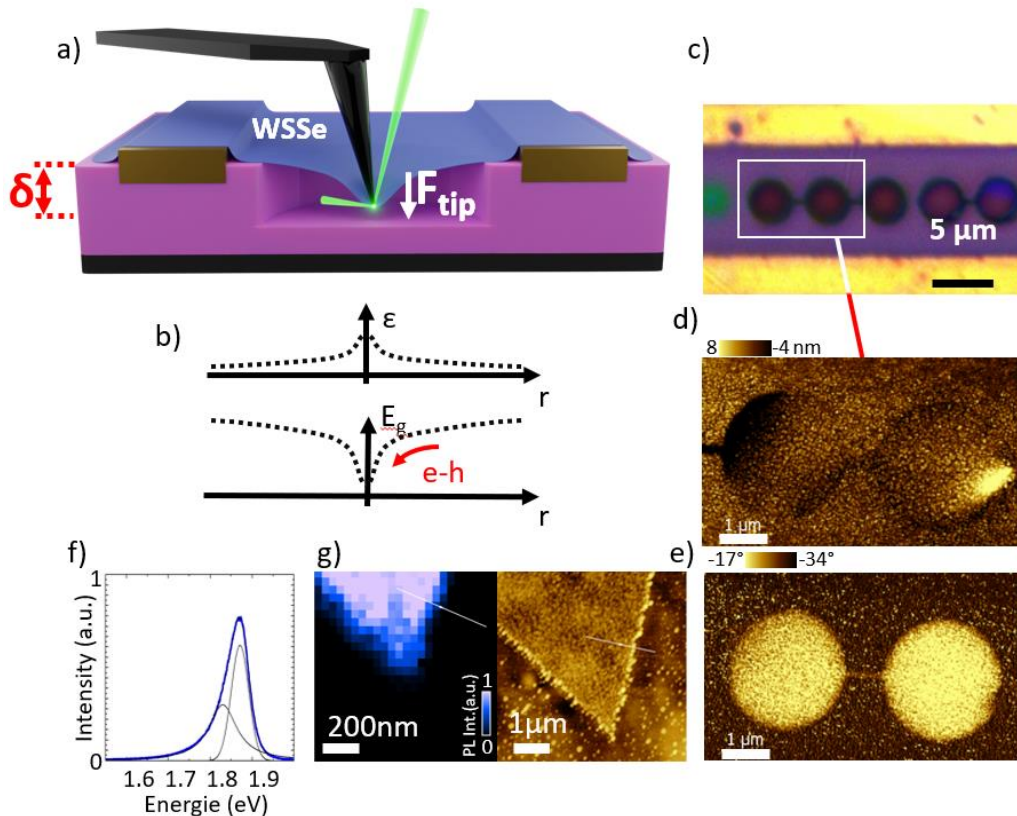


Figure 52 - Mesure optique d'une monocouche de WSSe suspendue lors d'une expérience d'indentation par une pointe AFM. a) Schéma de l'expérience où une pointe AFM applique une force mécanique sur le centre ( $r = 0$ ) d'une membrane monocouche 2D suspendue. b) L'indentation modifie la déformation au centre de la membrane et la bande interdite locale. En raison de la diffusion et de la mobilité des excitons, les excitons se déplacent préférentiellement vers le centre et sont réémis. c) Image optique de l'échantillon avec les images correspondantes de topographie (d), de phase (e) de la membrane 2D. f) Spectre de photoluminescence du WSSe suspendu sans contrainte. On sépare la contribution de l'exciton et du trion (courbe noires). g) Signal TEPL du 2D mesuré au niveau d'un bord du cristal et la topographie correspondante mesurée par microscopie à force atomique.

Une première cartographie du signal TEPL, présentée sur la Figure 52-g, a été faite sur les bords d'un feuillet triangulaire de WSSe. Nous avons utilisé une pointe recouverte d'or et un laser confocal à 532 nm avec une puissance  $P=30 \mu\text{W}$ . Nous avons aussi effectué une image AFM montrant la topographie du matériau à côté. La véritable réponse TEPL du matériau est obtenue en soustrayant le signal PL "champ lointain" (pointe à quelques nm de la surface) du signal PL "champ proche" (pointe en contact avec la surface). Le TEPL correspond typiquement à ~10-20% du signal PL "champ lointain". On note que le contact métallique entre la pointe et le matériaux 2D ne change pas la réponse optique du matériaux 2D ; il n'y a pas de décalage de pics ni de déformation du signal PL entre le signal champ lointain et le TEPL, juste un changement d'amplitude. Lorsque la mesure TEPL est faite sur le substrat natif de croissance, sans aucun résidu de résine, le signal TEPL peut atteindre jusqu'à 50% de l'amplitude du signal de photoluminescence. Mais la surface sondée est 60 fois plus petite, ce qui fait une amplification du signal optique pouvant atteindre 30 fois le signal PL par unité de surface.

L'extension spatiale de l'émission TEPL, c'est-à-dire de la zone proche de l'apex de la pointe qui est responsable du signal TEPL. Nous approximons cette zone expérimentalement sous la forme d'un profil gaussien avec une largeur totale à mi-hauteur (FWHM)  $w_{\text{TEPL}} = 90 \text{ nm}$  (Figure 52). Nous avons également effectué un étalonnage spatial de la pointe AFM et mesuré un diamètre de pointe de  $2r_{\text{tip}} = 40 \text{ nm}$  à partir de la topographie AFM. La constante de raideur du cantilever associée  $k_{\text{tip}} = 3.11 \text{ N/m}$ , est mesuré indépendamment par les partenaires d'Horiba. Le diamètre et la rigidité de la pointe sont conformes aux spécifications fournies par le fournisseur. Ce modèle simple de profil Gaussien semble très bien fonctionner. L'alternative qui consiste à modéliser le champ électrostatique autour de la pointe pour chaque contrainte mécanique et de simuler par DFT la réponse optique, c'est-à-dire dans le cadre d'un système hors équilibre, est très lourde numériquement et nécessiterai de plus amples expérimentations.

## 5.2. INDENTATION ET PHOTOLUMINESCENCE

Après l'étape de calibration de la mesure, nous pouvons maintenant procéder aux mesures d'indentation en utilisant la même excitation optique (532 nm, 30  $\mu$ W). Dans la Figure 53-a nous mesurons la PL "en champ proche", c'est-à-dire que la pointe métallique et le spot laser sont alignés. Nous voyons clairement un élargissement et un décalage du signal PL lorsque la profondeur de l'indentation ( $\delta$ ) augmente (et donc que les contraintes mécaniques augmentent), suivi par l'apparition de nombreux pics supplémentaires. Nous répétons ensuite la même expérience d'indentation mais avec le point de focalisation laser qui est décalé de 300 nm dans le plan de l'échantillon, afin d'acquérir uniquement la PL "en champ lointain" (Figure 53-b). En effet, nous avons vérifié, comme montré sur la Figure 53, que cette distance est bien suffisante pour que le signal TEPL soit négligeable dans cette configuration ; le signal TEPL est effectivement réduit d'un ordre de grandeur dans ce cas (Figure 53-b).

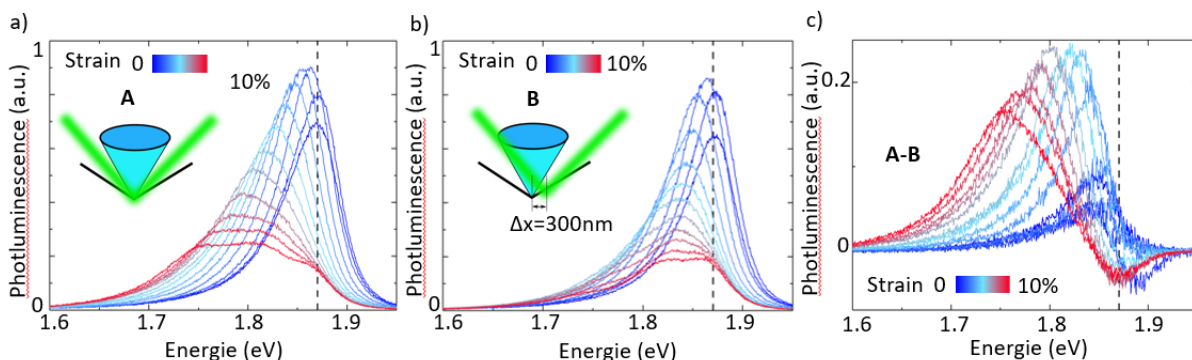


Figure 53 - Mesures de photoluminescence *in-operando* sous indentation. a) Spectres de photoluminescence pour différentes indentations et elongations collectés avec le laser focalisé sur l'apex de la pointe (« point chaud ») b) Spectres PL en champ lointain (« point froid »), collectés avec le laser intentionnellement décalé de 300 nm par rapport à l'apex de la pointe pour différentes profondeurs de déformation. c) Spectres PL en champ proche (TEPL réel) générés par la soustraction des spectres en a et b.

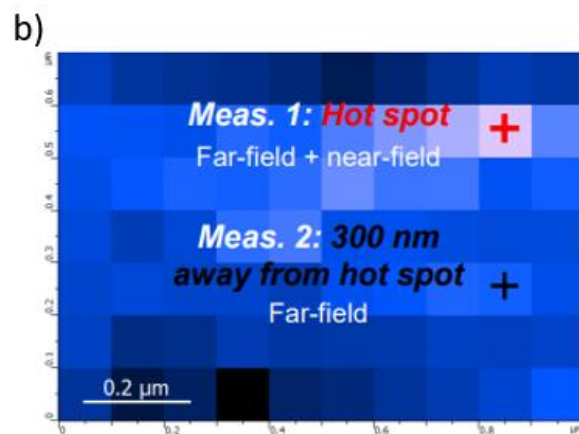
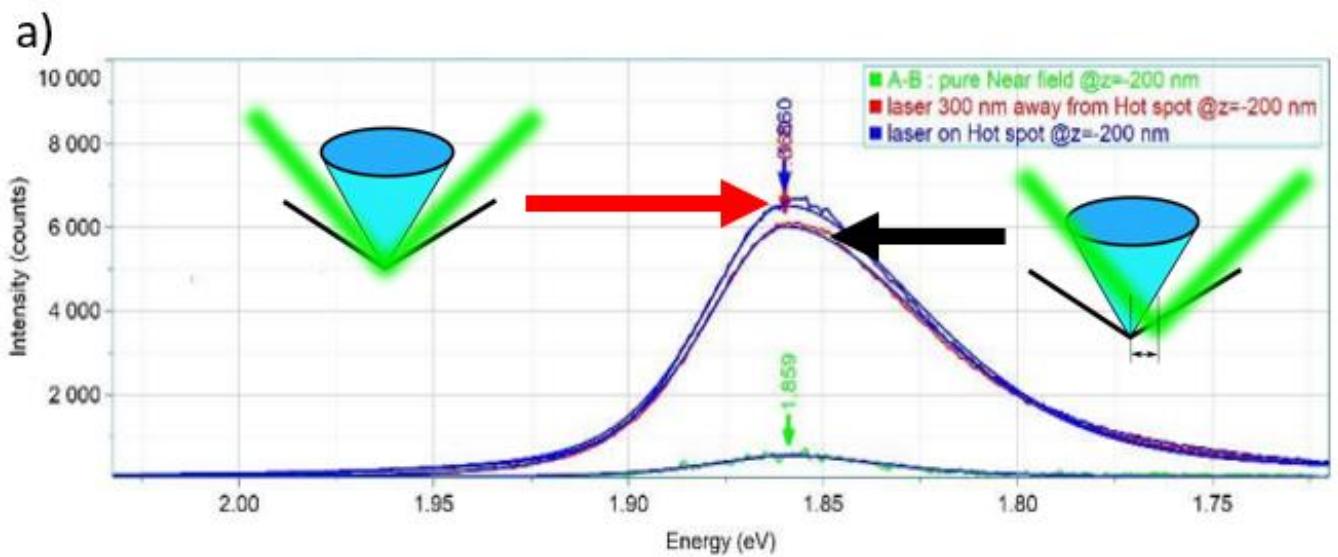


Figure 54- Signal de photoluminescence augmenté par la pointe en fonction de l'alignement spatial du laser et de la pointe. a) Signal PL au « point chaud » (courbe bleue), lorsque le laser et la pointe AFM sont alignés pour renforcer le signal TEPL et le signal PL au « point froid » lorsque le laser et la pointe sont désalignés de 300nm (courbe rouge). En vert, le signal obtenu par simple soustraction des deux signaux précédents qui contient principalement le signal TEPL (14% de l'amplitude du signal principal) b) Cartographie du signal TEPL en fonction de la position du laser par rapport à la position de la pointe dans les directions x et y. On peut voir l'apparition d'un point chaud autour de la pointe.

Globalement, le signal de PL "champ lointain" est équivalent au signal de PL "champ proche", Les spectres s'élargissent et se décalent vers le rouge lorsque la profondeur d'indentation augmente, mais ils diffèrent en fait par le signal TEPL.

Le signal TEPL, étant la différence entre le signal PL en champ proche et en champ lointain, correspond principalement à la contribution la plus décalée vers le rouge du signal PL. Le signal TEPL apparaît comme un pic qui se décale de manière monotone (1,87 eV à 1,74 eV). Considérant que le TEPL sonde principalement la réponse PL de la zone directement sous l'extrémité de la pointe, sa variation reflète la forte modification de la réponse optique de la monocouche de WSSe suspendue sous une contrainte de traction extrême. Dans ce qui suit, nous proposons un modèle pour simuler ces effets optomécaniques.

Dans la Figure 53-c, les signaux TEPL mesurés sont tracés pour différentes déformations au sommet de la pointe. Nous sommes capables d'isoler le signal TEPL. De plus l'intensité du pic TEPL qui apparaît lorsque l'on soustrait le champ lointain, a augmenté de 265% avec la contrainte (le signal a augmenté de 690 à 2350 en intensité) alors que dans le même temps nous avons réduit la zone sondée d'un facteur 36. Puisque nous ne retirons pas totalement la pointe dans notre expérience, il existe un signal résiduel du champ lointain, même s'il est faible comparé au signal PL. Typiquement, les mesures TEPL sont effectuées en soustrayant le signal en présence et en l'absence de la pointe AFM, le signal de champ lointain étant strictement le même entre les deux positions. Ici, par nécessité expérimentale, ne pouvant pas soustraire l'indentation de la pointe, nous mesurons la différence du signal à deux positions du laser par rapport à la pointe. La distance de 300 nm séparant ces deux positions réduit fortement le signal TEPL lorsque l'alignement avec la pointe n'est pas parfait. Mais nous devons tenir compte de la faible différence de signal en champ lointain entre ces deux positions. Nous l'avons simulé. Le résultat est entièrement compatible avec la mesure. En particulier, la simulation explique pourquoi nous obtenons un signal négatif autour de 1.85 eV. A contrario, la simulation donne un pic PL et signal positif à plus grande indentation mais qui reste faible en intensité (540) comparé à la mesure (Figure 55). Ceci nous a permis d'ajuster les données expérimentales. Nous considérons et corrigeons ainsi la

différence du signal sous le point d'indentation et à 300 nm du point d'indentation, les deux configurations décrites dans la Figure 53.

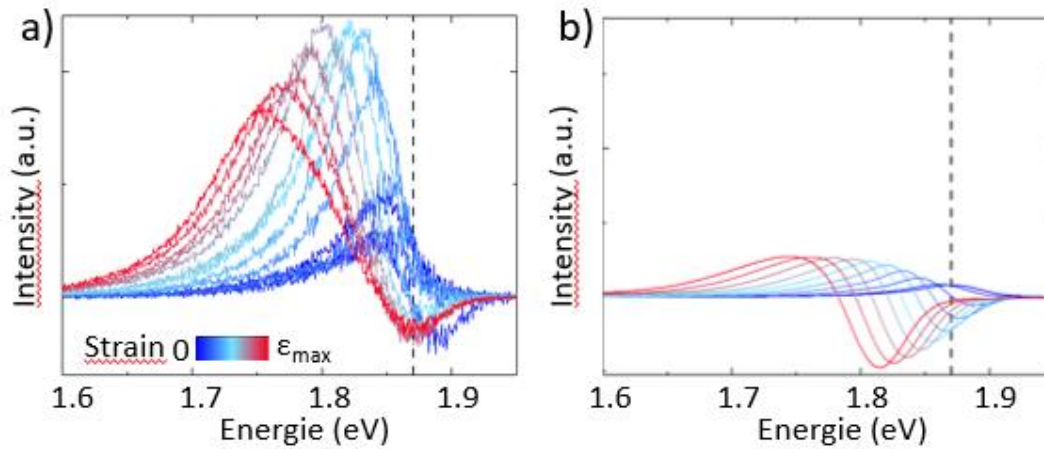


Figure 55 - TEPL du WSSe et résidu du signal de champ lointain. En a) la différence mesurée expérimentalement et en b) la différence simulée du signal de champ lointain entre les deux positions. Les intensités en a et b sont montrés avec la même échelle. Nous observons qu'une partie du signal est liée au champ lointain résiduel et à notre technique de mesure et qu'elle peut être extraite de nos données. D'autre part, nous pouvons voir la contribution principale du signal TEPL qui apparaît dans la mesure en soustrayant le signal calculé du signal expérimental.

### 5.3. RELATION ENTRE DEFORMATION MECANIQUE ET PHOTOLUMINESCENCE

Afin d'extraire la réponse optique du matériau au point de contact de la membrane, nous devons considérer la modification de la structure de bande électronique su 2D en fonction des contraintes et la distribution de la déformation. Nous procédons en trois étapes :

1) Nous approximons le profil de la déformation le long de la membrane.  $\varepsilon(r \in [0, R])$  en coordonnées radiales, où  $R=1.25 \mu\text{m}$  est le rayon de la membrane (rayon de la cavité). Les paramètres tels que le module d'Young sont extraits en ajustant la courbe Force-déflexion,  $F(\delta)$  et à partir de la déformation maximale  $\varepsilon_{max} = \varepsilon(r = 0)$  à toute profondeur d'indentation.

2) Nous définissons, par DFT, la relation entre une déformation locale, à n'importe quel  $r$ , et la bande interdite locale  $E_G$ .



3) Nous convoluons cette distribution spatiale de déformation/bande interdite avec la population locale d'excitons afin d'extraire le signal PL typique provenant de l'échantillon.

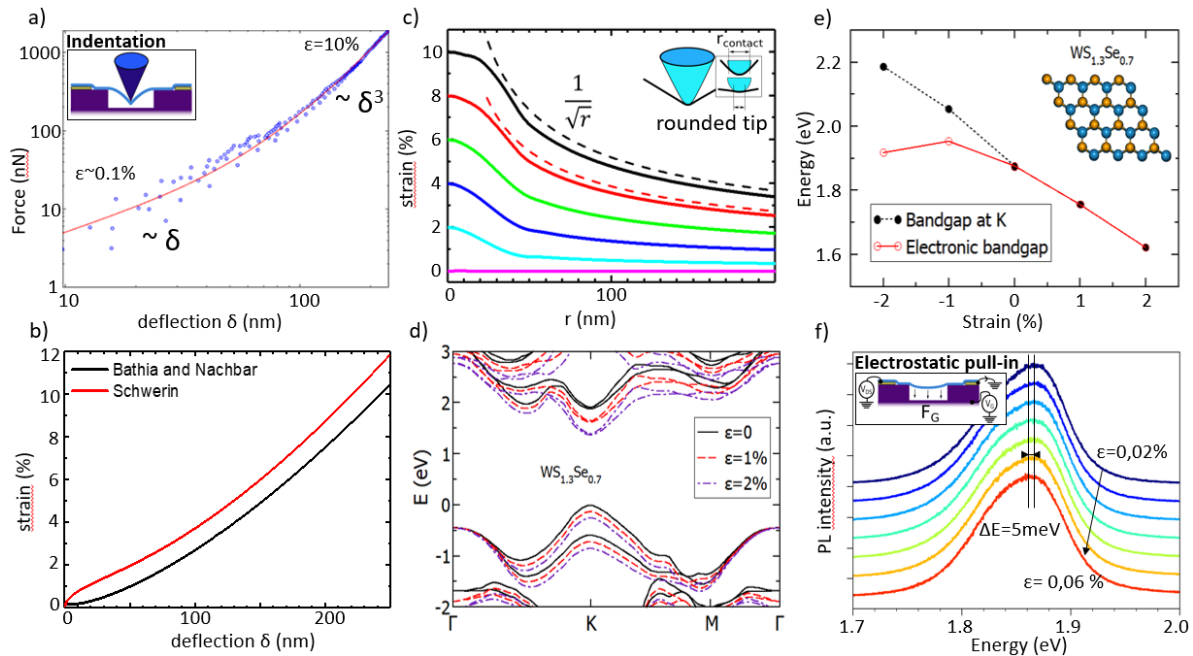


Figure 56 - Déformation locale induite par l'indentation et déformation de la bande interdite. a) Une expérience d'indentation avec la force appliquée à la membrane par le pointe en fonction de la déflexion de la membrane. b) La déformation à  $r=0$  en fonction de la déflexion pour le modèle de Schwerin et le modèle Bathia et Nachbar. c) La déformation en fonction du rayon pour différentes valeurs de force avec le modèle analytique d'une pointe ronde. Une déformation de 10% correspond à  $F \sim 2200 \text{ nN}$ . d) Structure de bande du WSSe calculée pour différentes elongations biaxiales appliqués aux directions  $x$  et  $y$ . La structure électronique varie fortement au point K. e) Sur la base des calculs présentés en d), nous traçons la bande interdite,  $E_G$  en fonction de la déformation appliquée dans les directions  $x$  et  $y$  ( $\varepsilon = \varepsilon_x = \varepsilon_y$ ). e), f) Une déformation globale de la membrane est appliquée par une force capacitive, qui induit un petit déplacement du pic PL. La déformation correspondante est extraite de mesures optomécaniques.

Pour décrire la déformation  $\varepsilon$  sur  $r \in [0, R]$ , nous devons considérer la région centrale de contact pointe-membrane et la région suspendue de la membrane. Pour décrire les déformations le long de la membrane, nous proposons d'utiliser deux modèles. Les deux modèles sont décrits explicitement dans le Chapitre 2 et l'annexe B Le premier est un modèle simple d'une pointe plate où la déformation à  $r = 0$  est fixée par la solution de Schwerin. Un modèle de charge ponctuel, tel que la solution de Schwerin

bien connue, donne une bonne approximation de la déformation maximale sous indentation. Ce modèle est étendu à tout  $r$  en considérant une contrainte constante le long du contact avec la pointe. En s'éloignant de la pointe, elle suit ensuite un modèle empirique qui varie en  $1/r$ . Ce modèle a déjà été reconnu comme une bonne approximation pour les matériaux 2D indentés<sup>25,73</sup>. Le second modèle est un modèle plus formel, avec une pointe arrondie, qui adopte les équations de Föppl-von-Kármán et la théorie de Föppl-Hecky dans le cadre de « petites déformations » qui inclut un traitement explicite de la région de contact. Nous appelons cette approche le modèle d'indentation de Bathia et Nachbar ou le modèle à pointe arrondie.<sup>72,74,184,185</sup>

Dans la Figure 56- a, nous appliquons une force  $F$  au centre de la membrane circulaire et déformons élastiquement le 2D. La déflexion au centre est  $\delta$  peut atteindre  $\delta=250$  nm pour  $F=2200$  N. Une telle expérience d'indentation a été répétée plusieurs fois, avec des résultats identiques, et sans déformation irréversible de la membrane selon les images AFM de topographie de la membrane, démontrant le caractère élastique de la déformation. Nous considérons d'abord un modèle d'indentation standard de Schwerin,<sup>68-71,30</sup> qui relie  $F$  à  $\delta$  tout en approximant la pointe par un point. Connaissant  $F$  et  $\delta$  le modèle de Schwerin  $F = \sigma_{2D} \cdot \pi \delta + E_{2D} \cdot q_1^3 / R^2 \cdot \delta^3$  est utilisé pour évaluer la contrainte initiale 2D  $\sigma_{2D}$  et le module d'étirement  $E_{2D} = E \cdot t$  de la membrane WSSe. Ici,  $E$  est le module de Young,  $t=0,7$  nm est l'épaisseur de la membrane et le paramètre  $q_1$  est défini comme suit  $q_1 = 1/(1.05 - 0.15 \cdot \nu - 0.16\nu^2)$  avec  $\nu = 0.19$  le coefficient de Poisson du matériau brut pour  $WS_2$  et  $WSe_2$ .<sup>186,187</sup> Quand on applique le modèle aux résultats expérimentaux (la ligne rouge de la Figure 56-a), nous obtenons  $\sigma_{2D} = 0.158$  N/m et  $E = 272.7$  GPa pour notre système. Le module d'Young du ternaire  $WS_{1.3}Se_{0.7}$  est conforme aux mesures précédentes dans  $WS_2$  ( $E \sim 250$  GPa) et dans  $WSe_2$  ( $E \sim 300$  GPa).<sup>188</sup> Cela montre que le 2D ternaire est de très bonne qualité car il ne perd pas de rigidité sous forme d'alliage. Nous décrivons la déformation à l'apex comme  $\varepsilon_{max} = \sqrt{F/4\pi \cdot r_{tip} \cdot Et}$  et nous la représentons en fonction de la déflexion dans la Figure 56-b. Sur la Figure 56-b, la déformation maximale,  $> 10\%$ , est obtenue avec une



indentation de 250 nm de profondeur. Ceci confirme que l'indentation est une technique appropriée pour déformer les matériaux 2D à leur limite de déformation élastique. C'est une solution privilégiée pour explorer la physique des matériaux 2D sous très haute déformation.

Dans le modèle de la pointe arrondie, la pointe a un rayon de courbure  $r_{tip2}$  et est en contact avec le matériau 2D en dessous d'un rayon  $r_{contact}$  et ce rayon de contact augmente avec  $\delta$ . Le modèle donne approximativement une variation en  $1/\sqrt{r}$  pour la déformation loin de la pointe (Figure 56-c). Si nous ne considérons que la déformation à  $r = 0$ , le modèle de Bathia et Nachbar décrit correctement nos données expérimentales et conduit à des valeurs de Module de Young comparables. Pour tenir compte de la forme expérimentale de la pointe mesurée lors de la mesure AFM, qui correspond à de très petites indentations ( $\varepsilon < 0.5\%$ ), nous devons avoir un rayon de contact, en dessous duquel il y a contact entre la pointe et le 2D,  $r_{contact} = r_{tip} = 20$  nm, ce qui fixe le rayon de courbure à  $r_{tip2} = 60$  nm.

Pour connaître exactement l'effet de l'indentation sur la réponse optique du matériau, il est crucial de déterminer à la fois le profil de déformation le long de la membrane et l'effet de la déformation sur la structure de bande du matériau 2D. Dans la Figure 56-d, des calculs ont été effectués pour évaluer la variation de la structure de bande du WSSe soumis à une déformation biaxiale de l'ordre de quelques pourcents. Nous avons demandé à Marco Pala, chercheur au C2N de considérer le  $WS_{1.3}Se_{0.7}$  en utilisant la théorie fonctionnelle de la densité (DFT). Le couplage spin-orbite est inclus dans notre modèle. La cellule et les positions atomiques du WSSe non déformé ont été évaluées après une relaxation complète avec les paramètres de cellule  $a_0 = 3.24$  Å et  $c = 28$  Å. Une contrainte biaxiale dans le plan a été imposée à la cellule unitaire, puis les positions atomiques ont été relaxées. Comme on peut le voir sur la Figure 56-e, la bande interdite, situé au point K diminue (augmente) sous une contrainte de traction (compression) biaxiale. Pour une grande contrainte de compression ( $\varepsilon_x < -1\%$ ), le

minimum de la bande de conduction se déplace du point K au point Q et la transition optique associée devient indirecte. Au-dessus de  $\varepsilon_x = -1\%$  et pour des déformations en extension, comme dans notre expérience d'indentation, le matériau conserve son caractère de semiconducteur à bande interdite directe. La valeur de la bande interdite diminue en augmentant l'élongation. Au premier ordre, nous modélisons cette variation comme  $E_G = E_{G0} - dE_G/d\varepsilon_x \cdot \varepsilon_x$  avec  $dE_G/d\varepsilon_x = 125\text{meV}/\%$ . Pour relier le calcul DFT utilisant une déformation biaxiale ( $\varepsilon = \varepsilon_x = \varepsilon_y$ ) à notre modèle de déformation radiale, nous définissons  $\varepsilon_r^2 = \varepsilon_x^2 + \varepsilon_y^2$  et nous obtenons  $dE_G/d\varepsilon_r = 1/\sqrt{2} \cdot dE_G/d\varepsilon = 88\text{meV}/\%$ . De cette façon, nous pouvons maintenant modéliser la variation de la bande interdite en chaque point de l'espace, en symétrie radiale, comme suit  $E_G = E_{G0} - dE_G/d\varepsilon_r \cdot \varepsilon(r)$ .

Pour confirmer quantitativement cette valeur théorique, nous avons effectué des mesures de photoluminescence et, surtout, optomécaniques de la déformation statique de la membrane 2D avec différentes tensions de grille  $V_G$ . La force électrostatique étant non locale, la tension de grille est utilisée pour exercer une pression sur l'ensemble de la membrane. La vibration de la membrane suspendue est

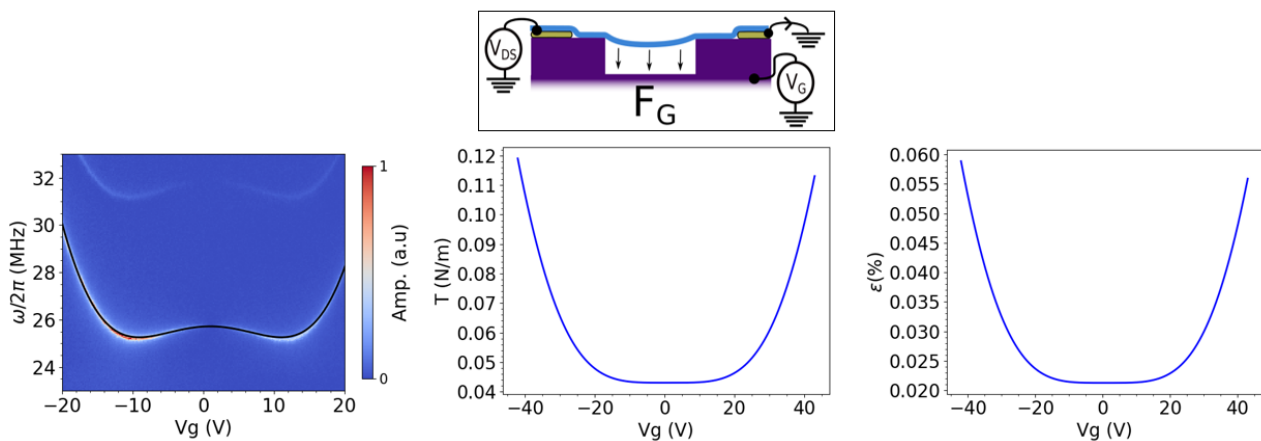


Figure 57 - Mesures optomécaniques et de déformation statique pour notre membrane. Mesure de la vibration du 2D en fonction de la tension de grille DC selon les méthodes détaillées dans le chapitre précédent. La vibration varie en fonction de la tension de grille en courant continu puisque la force statique est en  $V_G^2$ . Une baisse de la fréquence à faible  $V_G$  apparait et est normal en raison de l'effet de ramollissement capacitif. Nous traçons les tensions et déformations correspondantes appliquées le long de l'échantillon, déterminées par notre modèle mécanique, qui varient entre 0,023 et 0,060%.

mesurée en activant électriquement la vibration hors plan et en la mesurant par réflectométrie optique comme dans le chapitre précédent.<sup>7,83</sup> La dépendance de la fréquence mécanique par rapport à la tension de grille peut être utilisée pour extraire la déformation le long de la membrane. Nous extrayons la réponse optique en fonction de la déformation appliquée à la membrane et observons un décalage de 5 meV de la position du pic pour 0,04% d'allongement, soit 125meV/% d'élongation ce qui correspond assez bien à la théorie. De plus, ces mesures confirment la bonne qualité mécanique de la membrane avec une mesure de facteur de qualité élevée  $Q=1000$ ).

#### **5.4. MESURES DE PHOTOLUMINESCENCE SOUS INDENTATION ; A LA RECHERCHE DU SIGNAL SOUS LA POINTE**

La réponse en micro photoluminescence est la convolution des spectres PL en chaque point de l'espace et de la densité locale d'excitons,  $n(r)$ . En première approximation, en négligeant la dérive des excitons et leur diffusion,  $n(r)$  est lié à l'excitation laser et est donc directement proportionnel au profil d'intensité gaussien du faisceau laser,  $w_{Laser} = 600$  nm. Pour les mesures TEPL, la largeur de la distribution gaussienne est réduite à  $w_{TEPL}$ . Dans un cadre plus général, quelque soit le profil de densité des excitons et des charges, nous définissons le signal  $\langle PL \rangle$ , relié à la valeur de bande interdite locale simulée  $E_G(r)$ , comme  $\langle PL \rangle = \int PL(E_G(r))n(r)rdr$ . Les réponses PL simulées et expérimentales sont représentées en fonction de la déformation appliquée au centre de la membrane, jusqu'à 10 % d'élongation, pour le signal de champ lointain dans les Figure 58-a, b et c, et pour le champ TEPL dans les Figure 58-d, e et f. Nous comparons les résultats expérimentaux aux simulations pour les deux types de distributions de déformation détaillées dans le chapitre 2, l'une qui est relié à une forme de pointe plate, une élongation constante sur cette zone de contact et une dépendance

en  $1/r$  sur le reste de la membrane, et le second avec une pointe arrondie et une dépendance de la déformation radiale en  $1/\sqrt{r}$ .

Pour les petites déformations ( $\varepsilon < 3\%$ ), le pic PL mesuré expérimentalement ne se déplace pas beaucoup, comme c'est le cas pour les deux modèles de pointe. Ceci est probablement lié au fait que le contact reste ponctuel à ce stade, la surface de contact entre la pointe et la 2D restant proche de la valeur mesurée par AFM, et que la zone de contrainte est beaucoup plus petite que l'extension spatiale du laser. Dans cette région, la pointe plate à rayon constant est une bonne approximation du système.

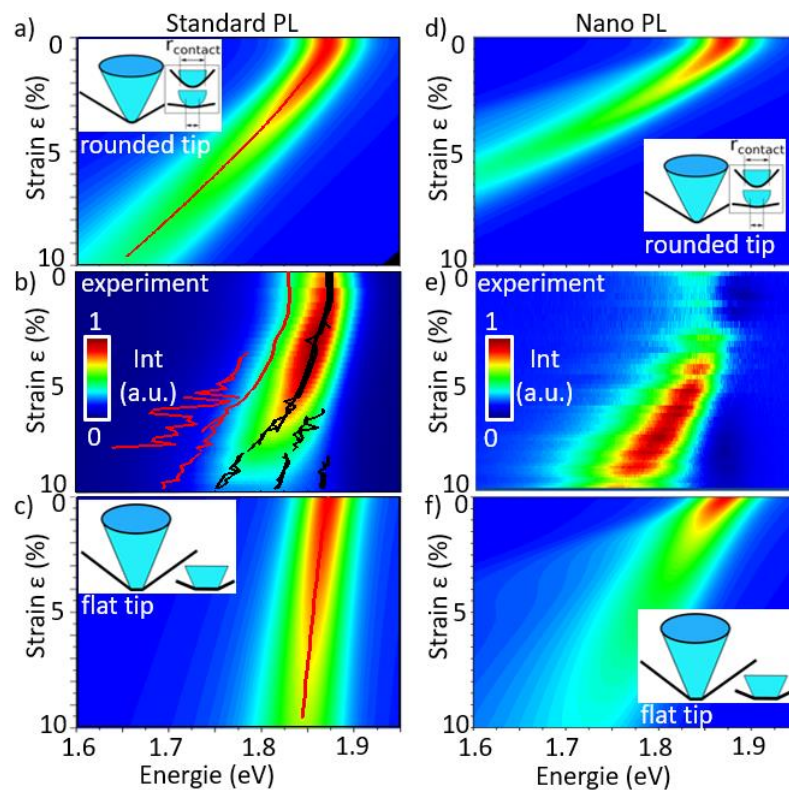


Figure 58- Modèle et expérience a) et c) La réponse PL simulée, en champ lointain en fonction de la déformation, pour la pointe arrondie et la pointe plate respectivement, est comparée à la réponse PL mesurée en b). b) En surimpression, nous avons noté les positions des pics pour un ajustement à deux, trois ou quatre. Nous distinguons en noir le pic qui semble être lié à l'exciton A et en rouge les pics qui semblent être liés au trion A'. d) et f) Les réponses TEPL en fonction de la déformation, simulées pour la pointe arrondie et la pointe plate respectivement, sont comparées à la réponse TEPL mesurée en e).

Dans la limite des fortes déformations (>5%), le signal se déplace plus dans le cas d'une pointe arrondie (25 meV/%) que pour une pointe plate (2.5 meV/%). Le décalage du pic d'exciton (courbe noire) pour la mesure est de 22 meV par % d'allongement pour une déformation >5% dans la Figure 58-b 40-e. Dans cette région de forte déformation, il semble approprié de décrire la sonde AFM comme une pointe arrondie avec une dépendance de  $1/\sqrt{r}$  où le rayon de contact change avec la déformation et où le matériau 2D entoure la pointe. La comparaison avec les simulations indique que notre modèle se situe entre les descriptions de pointe arrondie et de pointe plate.

Dans la Figure 58-b, nous pouvons suivre l'évolution de la  $\mu$ PL en fonction de la déformation appliquée à l'échantillon à partir d'ajustements simples avec 2 à 5 pics gaussiens et lorentziens. De manière surprenante, tous les pics sont uniformément séparés par 55 meV. Nous ne pouvons que remarquer la correspondance entre cette énergie et l'énergie de liaison des trions et argumenter qu'il n'y a aucune relation directe ni évidente, avec une quantification des niveaux excitoniques dans un puit quantique de faible dimension<sup>189</sup> qui sont attendus avec des écarts en énergie beaucoup plus faible (~ quelques meV) pour une taille de système équivalente à la zone à fort gradient de déformation (~ 50 nm).

Enfin, maintenant que nous avons correctement calibré l'indentation et compris globalement la réponse PL du système, nous concentrons notre attention sur le signal TEPL dans les Figure 59-a et b. En particulier, nous abordons l'existence de petits pics supplémentaires à des énergies plus faibles, entre 1,68 eV et 1,8 eV et à une déformation " plus faible ", de 3 à 5%, qui sont apparus continuellement le long des mesures. L'amplitude de ce pic reste très faible par rapport à l'intensité du signal du pic PL principal, environ un facteur 8 plus faible en intensité, mais néanmoins détectable sur plusieurs mesures d'indentation (les différents symboles de la Figure 59-c. Ce pic se déplace dans les gammes de déformation et d'énergie correspondantes avec une pente de 64 meV/%. Il est possible de relier quantitativement ce pic de la

réponse PL à la variation de la bande interdite ne fonction de l'élongation radiale au niveau de la pointe, c'est-à-dire  $dE_G/d\varepsilon_r = 88\text{meV}/\%$ , juste en dessous de la pointe pour une déformation entre 3 et 5%. Nous concluons qu'il est donc possible de mesurer le signal de photoluminescence provenant d'une zone localisée d'un matériau 2D, située autour d'une pointe AFM, et fortement sollicitée mécaniquement, de 3 à 5%, lors d'une expérience d'indentation à température ambiante. Nous allons maintenant discuter de l'importance de l'effet de la diffusion dans l'apparition de ce petit pic.

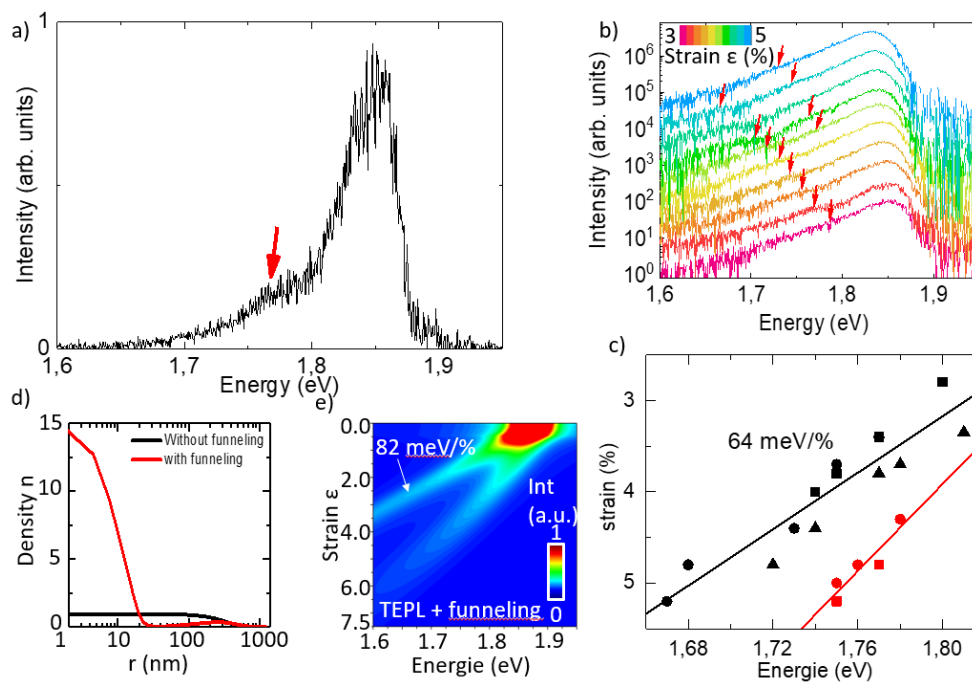


Figure 59 - Résurgence des signaux TEPL et signal PL sous la pointe. a) et b) Exemples de signaux TEPL où un petit pic satellite apparaît à faible énergie, indiqué par les flèches rouges. c) Compilation de la position en énergie de tous les petits pics et de la déformation correspondante. L'ensemble correspond à différentes mesures d'indentations. Nous observons deux groupes de points qui ont été ajustés avec une courbe linéaire. La pente de la courbe noire est de 64 meV/% d'allongement. d) La densité d'excitons le long de l'échantillon avec et sans l'effet d'entonnoir et e) La réponse PL simulée dans la zone TEPL en fonction de l'énergie et de la déformation maximale, définie à la position centrale, nous avons inclus ici l'effet de transport et/ou diffusion des excitons. Une conséquence directe de cet effet est de renforcer les intensités des pics et de mettre en évidence un pic avec un décalage de 82 meV/% de la déformation maximale. Cette valeur est quantitativement comparable au résultat mesuré en c.

## 5.5. DERIVE ET DIFFUSION DES CHARGES ET EXCITONS NEUTRES

Comme prédit précédemment,<sup>190</sup> la diffusion et la mobilité des porteurs tendent à déplacer les paires électron-trou vers la zone de bande interdite la plus basse, c'est-à-dire la zone de plus grande élongation, avant l'émission radiative des excitons. Cela doit augmenter l'amplitude du pic du signal TEPL. Il est nécessaire dans ce cas de redéfinir la densité d'excitons  $n(r)$  et le signal TEPL en considérant l'entonnoir, comme dans la Figure 59-d. Dans nos simulations, sur la Figure 59-e, il est possible de visualiser un pic qui varie fortement, avec une pente de 82 meV/%. L'élongation mécanique servant de référence étant celle obtenu au bout de la pointe, il est clair que ce signal correspond à la variation de la bande interdite du matériau 2D qui est localisé sous la pointe. A ce stade, afin d'obtenir une véritable image de la réponse optique de notre échantillon, il nous reste à déterminer l'efficacité de l'effet de « funneling », c'est-à-dire de considérer la dérive et la diffusion des excitons le long de l'échantillon, soumis à une variation de la bande interdite  $u(r)$ . La densité d'excitons  $n(r)$  doit suivre l'équation de dérive-diffusion.

$$\nabla(D\nabla n(r)) + \nabla(\mu n(r)\nabla u(r)) - n(r)/\tau - n^2(r)R_A + S(r) = 0 \quad (33)$$

$S(r)$  est la fonction de génération d'exciton avec la distribution gaussienne du faisceau laser,  $S(r) = I_0/2\pi\sigma^2 e^{-r^2/2\sigma^2}$ . Avec  $w$  la taille de la demi-largeur du laser (600 nm),  $\sigma = w/2\sqrt{2\ln(2)}$  et  $I_0$  l'intensité du laser.  $1/\tau = 0.91 \text{ ns}^{-1}$  et  $R_A = 1,4 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  sont respectivement le taux de décroissance de l'exciton et le taux de recombinaison Auger.  $D$  est le coefficient de diffusion et  $\mu$  la mobilité de l'exciton  $\mu = D/k_B T$  avec la constante de Boltzmann  $k_B$  et la température  $T$ . Cette équation est résolue avec le solveur Pdepe de Matlab.

Dans la Figure 59-d, c'est-à-dire dans le cas sans aucun « funneling » ( $D = 0$ ), la densité d'exciton reste une distribution gaussienne

Lorsque la diffusion/conduction des excitons est non nulle ( $D = 3 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ), la densité est fortement perturbée autour des faibles  $r$ , c'est-à-dire autour de la pointe.

Dans notre cas, nous modélisons des espèces photocréées et ne tenons compte que des excitons neutres, nous ne considérons pas les charges libres, que nous considérons uniformes dans l'espace. Mais nous constatons qu'avec une équation et des paramètres similaires, il est possible de considérer le transport des charges libres et leur recombinaison à l'ambiante. Il a été vu précédemment que ce « funneling » de charges libres domine le système à l'ambiante.<sup>178</sup>

Il faut souligner que la nature des processus participant à la diffusion et l'importance de l'effet de « funneling » dans ce type d'expérience d'indentation dépendent de nombreux paramètres et qu'un développement spécifique est nécessaire pour traiter chaque effet indépendamment.

## 5.6. CONCLUSION

Pour comprendre les phénomènes liés à la diffusion excitonique lorsqu'un matériau 2D est soumis à une forte déformation, de nouvelles techniques sont nécessaires pour extraire la réponse optique locale. Nous avons mesuré, à l'aide de la TEPL, la réponse optique de membranes suspendues de  $WS_{1.3}Se_{0.7}$  monocouches alors qu'elles subissent une déformation locale de l'ordre de 10% en utilisant la pression mécanique de la pointe AFM. La confrontation de nos résultats expérimentaux avec des modèles de déformation des membranes 2D, la simulation de la structure des bandes électroniques sous forte déformation et la diffusion/dérive des excitons dans les matériaux 2D permettent de mieux comprendre la physique sous-jacente à la réponse optique dans ces dispositifs. À notre connaissance, de telles mesures optiques sous déformation élevée (~5 à 10%) effectuées dans des conditions ambiantes n'ont jamais été rapportées auparavant sur des matériaux 2D. Le système AFM-Raman/PL permettant de telles mesures sera un des outils à privilégier pour étudier les hétérostructures verticales en vue de la fabrication d'émetteurs optique quantique.



## CHAPITRE 6 : COUPLAGE MECANIQUE

---

Jusqu'à présent, nous avons abordé des expériences où une seule membrane est utilisée et un seul mode mécanique rentre en jeu. Mais rien n'interdit expérimentalement de contrôler plusieurs membranes ou de contrôler plusieurs modes mécaniques d'une seule membrane. Avec une certaine expertise supplémentaire en fabrication, en mesures expérimentales, en modèle mécanique et en utilisant l'accordabilité des résonances mécaniques multiples, il est possible de développer un système avec un fort couplage mécanique cohérent entre plusieurs résonances.<sup>141,191,192</sup>

En fait, il est surtout possible de profiter de la forte modularité de ces systèmes de membranes 2D pour manipuler les vibrations mécaniques sous tous ses angles. Par exemple, le transfert d'énergie cohérent entre différentes membranes a été mesuré dans ces systèmes à travers les oscillations de Rabi.<sup>82,192,193</sup> Il faut tenir compte de termes non linéaires supplémentaires dans l'équation du mouvement, comme le terme de couplage paramétrique avec la pompe à tension de grille. On obtient alors l'équivalent d'une nano balançoire entretenue ou le résonateur semble résonner sans amortissement (facteur de qualité infini). Un objectif à atteindre concernant les vibrations et les phonons est d'obtenir l'analogie mécanique du peigne de fréquence optique où le signal résultant est une somme de résonances périodiques séparées par la fréquence paramétrique de la pompe et sur une large bande passante, c'est-à-dire plus d'une octave. Jusqu'à présent, les observations ont été limitées au couplage avec les premières harmoniques du signal de pompe ( $N=4$ )<sup>82,194-198</sup> Dans le cas des matériaux 2D, nous démontrons, ici, la possibilité de coupler efficacement le signal mécanique à la pompe et à un grand nombre d'harmoniques du signal de pompe, jusqu'à  $N=100$ .

## 6.1. COUPLAGE PUREMENT MECANIQUE PAR RECOUVREMENT DES MODES DE VIBRATIONS ; NOS SOLUTIONS EXPERIMENTALES

Nous avons développé des échantillons avec de grandes membranes MoS<sub>2</sub> suspendues déposées sur des substrats de dioxyde de silicium/silicium et des contacts métalliques en or (Figure 60 et Figure 61). La gravure de motifs dans l'oxyde nous permet de concevoir de nombreuses géométries de membranes suspendues. En particulier, nous avons imaginé différentes configurations pour permettre de créer des ensembles de résonateurs couplés les uns aux autres. L'idée générale est d'étudier le couplage de vibrations et d'étendre par la suite, au-delà de cette thèse, à la manipulation des vibrations en reprenant des concepts propres à la phononique comme les guides d'ondes acoustiques ou des bande interdite de phonons.

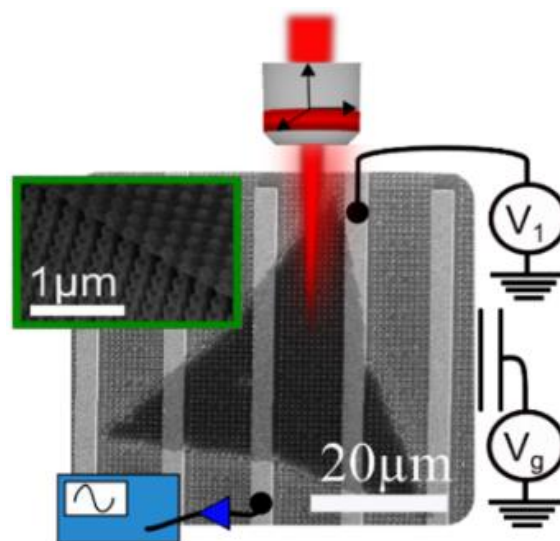


Figure 60 - Image au microscope électronique à balayage d'un feuillet de MoS<sub>2</sub> suspendu sur des micropiliers avec un schéma montrant les contacts électriques et la méthode de mesure

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons construit des matrices de piliers de SiO<sub>2</sub>. Une fois le matériau 2D déposé sur les piliers comme un tapis de fakir, Nous pouvons définir des modes de résonance mécanique entre les piliers. L'extension spatiale est délimitée par la position des piliers. Nous avons vérifié que les matériaux

2D sont bien en contact physique avec le sommet des piliers car ancré thermiquement et mécaniquement sur les piliers. Un effet sur les contraintes et le dopage est mesurable.<sup>17</sup> Quatre piliers peuvent former un résonateur. Certains résonateurs plus gros sont délimités par 8 piliers mais le mode mécanique reste très similaire et proche du mode d'une membrane circulaire<sup>79</sup>. Toutes les vibrations mesurées sur une même structure sont homogènes.<sup>17</sup> La géométrie de la structure et l'espace entre les piliers permet d'espérer un couplage mécanique entre les modes. Mais nous n'avons pas vu de couplage jusqu'à présent dans ce type de configuration.

Dans la deuxième partie, nous avons mis en place une autre configuration pour coupler des résonateurs mécanique entre eux. Cette géométrie est plus directe. Elle consiste à connecter physiquement deux trous créés dans le MoS<sub>2</sub>, l'écart entre les centres des cercles étant environ 66% du diamètre des cercles, les trous et les modes de vibrations se recouvrent sur environ 33% de leurs surfaces. On peut aussi mettre plein de trou en série pour former des séries de résonateurs. Une des difficultés a été de fabriquer des grilles localisées sous chaque trou pour contrôler chaque résonateur indépendamment et de maîtriser la rugosité des bords des trous qui doit être inférieure à quelques 10 nm même dans le cas de trous de 1.25  $\mu\text{m}$  de diamètre sinon les modes mécaniques risquent d'être mal définis.

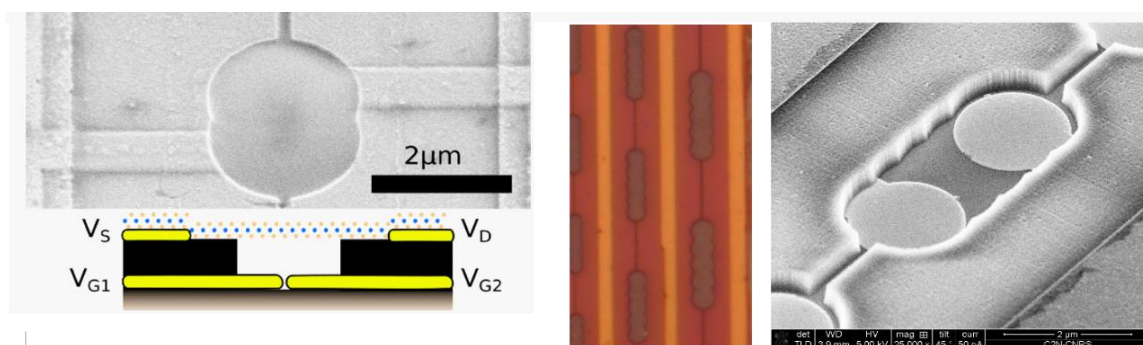


Figure 61 - Images au microscope électronique à balayage (noir et blanc) et optique (couleur) du dispositif avec plusieurs nanostructures circulaires juxtaposés.

Pour les résonateurs avec piliers, les vibrations sont mesurées sous vide,  $1.10^{-5}$  mbar, et à température ambiante. Nous reprenons les méthodes expérimentales de mesures de vibrations décrits dans les chapitres précédents. D'après le facteur de qualité typique de  $\sim 150$  à température ambiante, nous pouvons déterminer la bonne qualité de notre membrane. Nous nous plaçons dans une limite où aucun échauffement optique ou électrique ne vient perturber les mesures avec notre montage expérimental <sup>199</sup>. Par exemple, nous utilisons une puissance laser de  $10 \mu\text{W}$ .

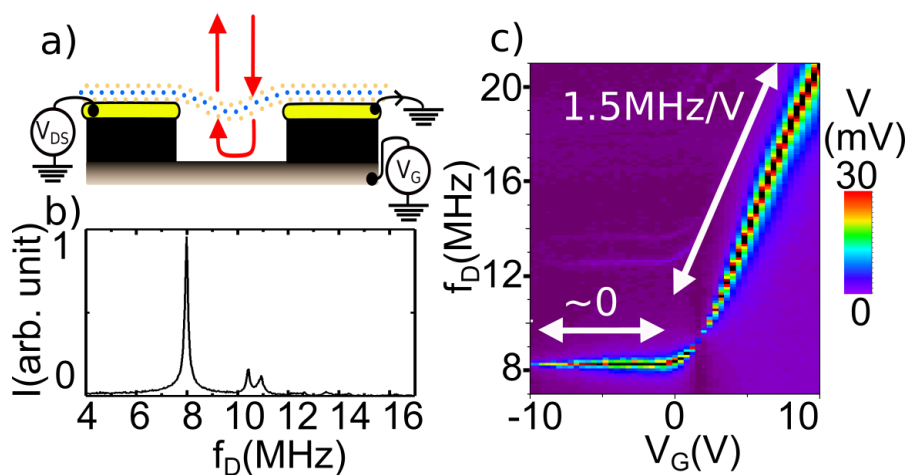
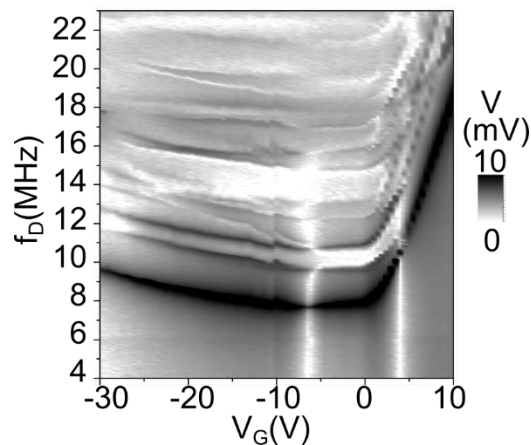


Figure 62 - Système optoélectromécanique avec une monocouche suspendue de  $\text{MoS}_2$ . a) Schéma de l'échantillon suspendu avec configuration du transistor électrique et mesures optomécaniques. b) Amplitude de la résonance mécanique  $f_1$  en fonction de la fréquence d'entraînement  $f_D$  appliquée à la grille. c) La dépendance de la fréquence mécanique par rapport à la tension de grille  $V_G$  est atypique et fortement asymétrique. En particulier, la mesure montre une zone d'intérêt pour le pompage paramétrique, au-dessus de quelques volts, car le fréquence de résonance montre une dépendance quasi linéaire avec  $\delta f_D / \delta V_G \approx 1.5 \text{ MHz.V}^{-1}$ .

La Figure 62-c montre la réponse mécanique du matériau suspendu en balayant la fréquence d'excitation  $f_D = \omega_D / 2\pi$ . Nous observons de multiples résonances, ce qui correspond aux différents modes de vibration d'un même résonateur. On note  $f_1 = \omega_1 / 2\pi$  et  $f_2 = \omega_2 / 2\pi$  les deux résonances principales. La mesure de la dépendance de vibration en fonction de la grille est illustrée sur la Figure 62-c. Cette dépendance est très particulière et semble propre à la structure faite de piliers de  $\text{SiO}_2$ . Ce n'est pas la

dépendance plus standard de la fréquence de vibration en  $V_G^2$  que l'on retrouve pour les forces capacitives appliqué à des géométries de type tambour ou ruban suspendu. Pour nos échantillons, en dessous d'une certaine tension de seuil, la fréquence ne varie pas ou peu. Au contraire, au-dessus de quelques volts de tension de grille, les modes de vibration normaux varient presque linéairement avec la tension  $V_G$  et très fortement. Cette spécificité importante est un terrain de jeu pour développer des expériences de pompage paramétrique accordable avec un résonateur nanomécanique.



*Figure 63 - Dépendance de la fréquence mécanique par rapport à la tension de grille pour une très grande tension de grille ( $V_{ds}=-5V$ ). La dépendance  $V_G^2$  habituelle, due à la force capacitive, peut être retrouvée à forte polarisation, même si une forte asymétrie existe dans nos mesures.*

En poussant plus loin les mesures, avec une tension de grille plus importante, comme illustré sur la Figure 63, nous retrouvons la dépendance plus habituelle de  $V_G^2$  d'une force capacitive ainsi qu'une augmentation de la fréquence également pour des valeurs négatives,  $V_G < -15V$ . Cette asymétrie locale, à faible tension de grille, peut être liée à la géométrie spécifique de l'échantillon avec le réseau de piliers ou à notre polarisation électrique  $V_{DS}$  qui crée un champ électrique non uniforme.<sup>200</sup> ou encore liée aux pièges à charges et au fort photocourant persistant observé dans notre  $MoS_2$ <sup>7</sup>. Cependant, nous bénéficions de cette quasi-linéarité puisque nous pouvons accorder la fréquence sur plus de 8 volts de tension de grille avec une dépendance presque linéaire.

## 6.2. COUPLAGE PARAMETRIQUE COHERENT



Nous allons dans cette partie, ajouté une tension de pompe appliqué à la grille. La fréquence de vibration étant modulable par la tension de grille, il s'agit en fait d'une variation/modulation de la constante de raideur  $k$  du résonateur par la tension de grille. Avec une très forte dépendance linéaire de la fréquence en fonction de la tension de grille, nous pouvons appliquer de forte modulation de la pompe.

Dans la Figure 64, nous allons maintenant fixer la tension de grille dans la zone où la fréquence est hautement modulable, à  $V_G = 4V$  et  $V_{ds} = 5V$  avec  $\omega_1 = 2\pi \cdot 12,2$  MHz et  $\omega_2 = 2\pi \cdot 16,7$  MHz. Nous allons exciter avec une tension de pompe  $V_P$  directement sur la grille à la fréquence  $f_P = \omega_P / 2\pi$ . Comme la fréquence est dynamiquement accordable,  $k$  sera modulé à  $\omega_P$ . Nous définissons également  $\Delta\omega$  comme la différence de mode  $\omega_2 - \omega_1$ . Sur les Figure 64-a et c, au point particulier où la fréquence de la pompe correspond à la différence entre les deux vibrations,  $\omega_P = \Delta\omega = 4,5$  MHz, nous observons un anti-croisement pour les deux modes qui est la signature d'un fort couplage intermode. De plus, de nombreuses résonances apparaissent également autour du pic principal à  $f_1 \pm m \cdot f_P$ . Par analogie avec les résonances de Stokes et anti-Stokes, nous attribuons ces pics à un couplage intramode entre le premier mode mécanique et les

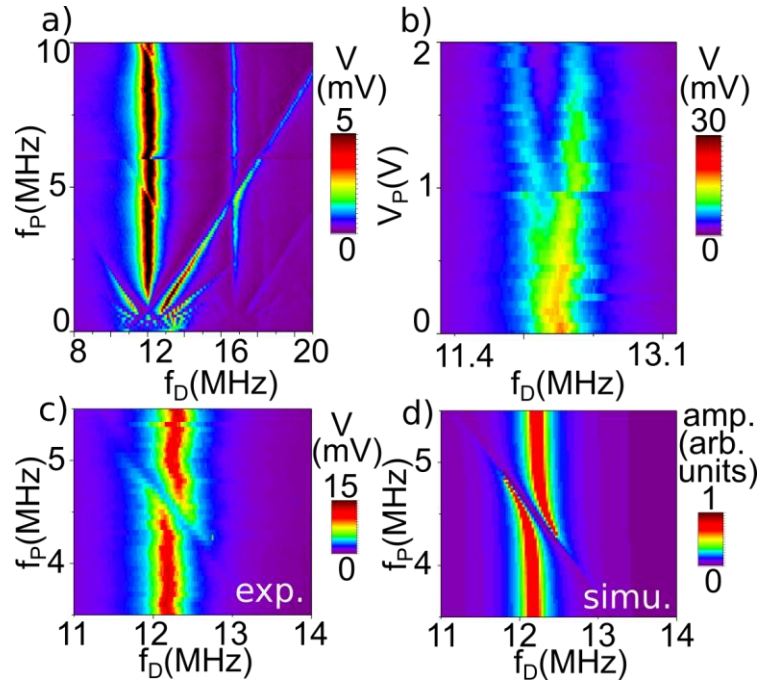


Figure 64 - Couplage mécanique entre deux modes à  $f_1 = 12.2$  MHz et  $f_2 = 16.7$  MHz, a) couplage expérimental de résonance mécanique en fonction de la fréquence de pompe  $f_p$  et de la fréquence d'excitation  $f_D$  à  $V_G = 4$  V,  $V_{ds} = -5$  V,  $V_D = 10$  mV,  $V_p = 1.5$  V, b) La résonance mécanique et le couplage des mode en fonction de l'excitation  $V_p$  (avec  $V_D = 1$  mV,  $f_p = 4.5$  MHz). La résonance mécanique autour de la zone de couplage en fonction de la fréquence de pompe  $f_p$  (à  $V_p = 1.5$  V). d) La simulation correspondante du couplage intermode qui concorde parfaitement avec l'expérience. Un anticroisement est observable lorsque  $f_p \approx f_2 - f_1$ . En a) Un autre anticroisement est visible à  $f_p = 9.5$  MHz entre  $f_1$  et un troisième mode à  $f_3 = 22$  MHz

différentes harmoniques de la pompe. En accord avec ces deux caractéristiques, nous considérons notre système comme un système à deux modes de vibrations couplés et bien décrit par la description faite par Okamoto et al. <sup>82</sup>.

L'équation de mouvement est définie par :

$$\ddot{x} + \gamma_1 \dot{x} + (\omega_1^2 + \Gamma_+ \cos(\omega_p t))x + \Lambda \cos(\omega_p t) y = F_1 \cos(\omega_D t + \varphi) \quad (34)$$

$$\ddot{y} + \gamma_2 \dot{y} + (\omega_2^2 + \Gamma_- \cos(\omega_p t))y + \Lambda \cos(\omega_p t) x = F_2 \cos(\omega_D t + \varphi) \quad (35)$$

où  $x$  ( $y$ ) est l'amplitude du mouvement pour le mode  $\omega_1$  ( $\omega_2$ ) avec un taux d'amortissement  $\gamma_1$  ( $\gamma_2$ ) entraîné par une force  $F_1$  ( $F_2$ ).  $\Gamma_+$  et  $\Gamma_-$  sont liés à l'accordabilité  $\Gamma$  du mode avec la fréquence de la pompe  $\Gamma = \omega \cdot (\delta\omega / \delta V_p) \cdot V_p$  avec  $\delta\omega / \delta V_p$  le désaccord de fréquence contrôlé par la tension  $\delta\omega / \delta V_p = 2\pi \cdot 1.5 \text{ MHz} \cdot V^{-1}$  comme  $\Gamma_{\pm} = \Gamma \left( 1 \pm \omega_1 \Delta\omega / \sqrt{c^2 + \omega_1^2 \Delta\omega^2} \right)$ .  $\Lambda$  représente l'amplitude du couplage entre les modes



$\Delta = \Gamma \left( c / 2 \sqrt{c^2 + \omega_1^2 \Delta \omega^2} \right)$  avec  $c$  le paramètre de couplage des modes. La séparation des 2 modes de fréquence au point d'anticroisement entre les deux modes est représenté sur la Figure 64-b en fonction de différents  $V_p$ . Pour  $V_p = 1,5$  V, cet écart entre les deux résonances est définie comme  $2g = \Delta / (2\omega_1 - \omega_2) = 2\pi \cdot 350$  kHz. Il faut remarquer que cette valeur de couplage est très grande par rapport aux résultats/publications précédents puisqu'elle est facilement observée à température ambiante et avec un facteur de qualité mécanique modéré. Le modèle de couplage cohérent simule parfaitement la génération d'anticroisement entre le couplage des intermodes comme décrit dans la Figure 64-d.

### 6.3. PEIGNE DE FREQUENCE MECANIQUE ET COUPLAGE ELECTROMECHANIQUE

L'invention des peignes de fréquence optique a introduit une méthode élégante pour établir un lien entre l'optique et l'électronique radiofréquence et élargir, de manière cohérente, le spectre électromagnétique.<sup>201</sup> Les peignes de fréquence optique qui fonctionnent sur plus d'une octave ont permis de nouvelles applications, notamment la mesure précise d'horloges atomiques optiques, la spectroscopie à peigne de fréquences, la génération et la mesure de formes d'ondes optiques arbitraires, la génération de micro-ondes à faible bruit, le transfert de fréquence et de temps, la détection et la télémétrie lumineuses cohérentes (LIDAR), l'étalonnage de spectrographes et la recherche d'exoplanètes.<sup>202-206</sup>

Suite aux résultats obtenus avec leurs homologues optiques, les peignes de fréquence phononiques (PnC) sont aussi des dispositifs attrayants en tant que nouveaux dispositifs de conversion de fréquence, de détection et de mesure de précision, et ont récemment fait l'objet de démonstrateurs<sup>207-212</sup> dont le présent travail.



Le point important de cette partie est la modulation des modes à l'intérieur du résonateur en injectant une pompe basse fréquence  $\omega_p$  à la tension  $V_p$  ; c'est-à-dire accorder le couplage entre des modes mécaniques et des harmoniques d'une même résonance électronique. C'est le terme d'accordabilité  $\Gamma$  du mode avec la fréquence de la pompe. Ceci tend à augmenter le couplage intramodal autour d'une résonance unique, conduisant expérimentalement à une image complexe dans la Figure 64-a autour de  $f_d = f_1$  et  $f_p < 3\text{MHz}$ . On voit une figure où se croisent le mode de résonance mécanique et des pseudo modes « Stokes » et « Anti-Stokes » qui se déplacent linéairement avec la fréquence de pompe, c'est-à-dire avec  $f = f_1 \pm m.f_p$ . C'est le résultat du couplage entre le mode mécanique et les différentes harmoniques du mode électronique de la pompe.

Pour décrire ce couplage, nous introduisant des amplitudes de m-ième harmonique,  $a_m(t)$  et  $b_m(t)$  avec  $m$  un entier positif ou négatif.  $x(t)$  et  $y(t)$  peuvent, dans ce cas, être décrits comme des sommes de Fourier de ces amplitudes et les équations de mouvement 1 et 2 deviennent un ensemble d'équations d'indice  $m$

$$(2i(\omega + m\omega_p) + \gamma_1)a'_m + (-(\omega + m\omega_p)^2 + i\gamma_1(\omega + m\omega_p) + \omega_1^2)a_m + \Gamma_1/2 \cdot a_{m+1} + \Gamma_1/2 \cdot a_{m-1} = F_1 \cdot e^{i\delta} \cdot \delta_{m,0} \quad (36)$$

Le terme  $a''_m(t)$  est négligé et pour simplifier, le couplage intermode  $\Lambda$  a été réduit à 0. La résolution de cette équation permet de décrire le mode de vibration dans la zone  $f_p < 3\text{MHz}$  et autour de la résonance mécanique. Ce modèle est celui établie par Okamoto et al.<sup>82</sup> où ils ont couplés un résonateur mécanique en III-V avec un signal de pompe et observé le couplage avec la 4<sup>ème</sup> harmonique du signal de pompe, c'est-à-dire  $f$  avec  $f = f_1 \pm f_p$ ,  $f = f_1 \pm 2.f_p$ ,  $f = f_1 \pm 3.f_p$  et  $f = f_1 \pm 4.f_p$ .

Dans la Figure 65, nous modulons le couplage intermodal en fixant les tensions. Nous obtenons deux situations opposées.

Pour une tension de pompe élevée  $V_p = 4V$ . A  $V_G = -10V$ , la dépendance de fréquence avec la grille et le couplage intermodal sont nulles et l'excitation de la pompe a un effet minimal sur la fréquence de résonance, comme dans la Figure 65-a.

Au contraire, sur les Figure 65-b et c, lorsque la modulation de la tension de grille est maximale, c'est-à-dire à  $V_G = 4V$  et  $V_G = 4V$ , soit une modulation sur 8V de grille dans une zone où la dépendance en  $V_G$  est quasi linéaire, on voit l'apparition d'un schéma complexe du couplage entre le mode mécanique et les harmoniques de la pompe pour des fréquences entre 8 et 20MHz avec la génération de résonances latérales multiples. On observe que le couplage s'effectue avec des harmoniques de la pompe bien au-delà de la 4<sup>ème</sup> harmonique.

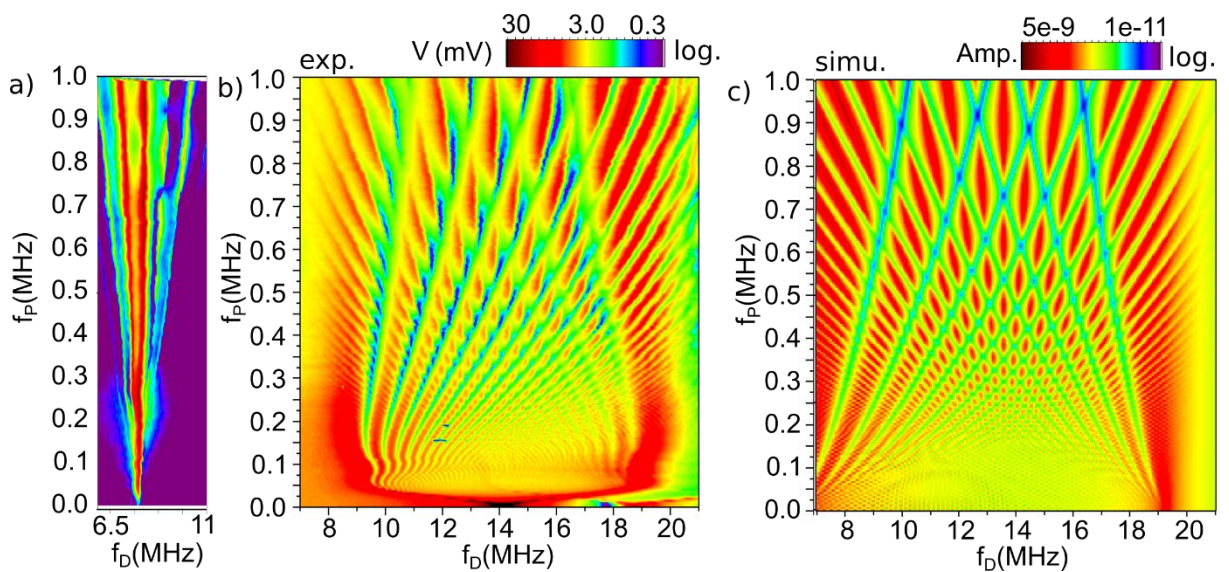


Figure 65 - Régime de pompage paramétrique à basse fréquence et fort couplage intermode, a) et b) signal mécanique en fonction  $f_p$  et  $f_D$  pour une amplitude de pompe élevée de  $V_p = 4 V$  à  $V_G = -10 V$  et  $V_G = 4 V$  c'est-à-dire pour différents variation de fréquence en fonction de la fréquence de grille  $\approx 0 \text{ MHz.V}^{-1}$  et  $\approx 1.5 \text{ MHz.V}^{-1}$  respectivement. c) La simulation de la mesure expérimental en tenant compte du couplage intramode et avec  $\Lambda = 0$ .

L'application du signal de pompe induit l'apparition d'un schéma d'interférence où les modes mécaniques et électroniques interfèrent de manière cohérente. Le couplage s'effectue à travers les équations du mouvement décrites précédemment. Cela indique un fort transfert d'énergie entre ces modes. Ce modèle est celui établie par Okamoto et al.<sup>82</sup> Nous avons repris le modèle pour nos expériences et comme le montre la simulation de la Figure 65-c, il est en bon accord avec l'expérience. Nous avons également contrôlé que la phase du signal correspond aux données expérimentales. A partir de cela, nous estimons la constante de couplage  $c = (2\pi \cdot 4.632 \text{ MHz})^2$ , elle est en accord avec la valeur de  $\Lambda$  obtenue à partir des mesures d'intercouplage. Ce terme de couplage est supérieur au taux de dissipation de notre résonateur.

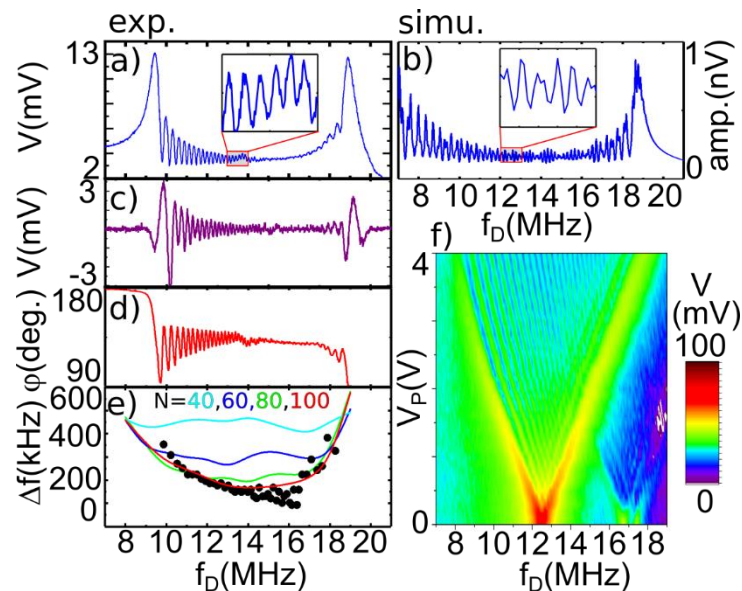


Figure 66 - Nombre d'harmoniques très élevé ( $N = 100$ ) pour le couplage intramode et une grande amplitude du signal de la pompe. a) Variation expérimentale de l'amplitude du signal en fonction de la fréquence de la sonde lorsque  $f_p = 75 \text{ kHz}$  et lorsque  $\delta\omega_1 / \delta V_p = 2\pi \cdot 1.5 \text{ MHz} \cdot \text{V}^{-1}$  et b) la simulation correspondante avec, en encart, un zoom sur quelques oscillations. En c) le même signal avec une soustraction de l'enveloppe du signal en d) la phase. e) en point noir, la période de fréquence entre chaque oscillation en fonction de la fréquence d'excitation. En lignes de couleur, le nombre de périodes d'oscillation pour chaque harmonique. Nous observons que  $N = 100$  est nécessaire pour modéliser nos données. En f), la dépendance du signal en fonction de la tension d'excitation de la pompe avec  $f_p = 150 \text{ kHz}$ .

Le nombre d'équations est déterminé par le nombre  $(2N+1)$  d'harmoniques de pompe  $m$  que nous avons utilisé dans le calcul, pour  $-N < m < N$ . Afin de déterminer ce

nombre, nous examinons le profil spectral pour une petite fréquence  $f_p$  de l'ordre de 75 kHz (Figure 66-a et b). La réponse mécanique avec une puissance de pompe élevée est un signal oscillant entre 8 et 18 MHz.

La réponse apparaît comme une résonance étalée entre 8MHz et 18MHz comme pour la Figure 66 mais on voit que le signal présente de multiples oscillations avec la fréquence de mesure. Cette figure est un peigne de fréquence mécanique avec une fréquence qui s'étale sur plus d'une octave (doublement de la fréquence). Cependant, les résonances sont moins marquées que dans les publications précédentes car le facteur de qualité reste très faible. Cela nous amène à deux remarques : 1) Pour compenser de faible facteur de qualité, il est nécessaire d'avoir de très grands coefficients de couplage. Ceci est effectivement le cas dans notre système mécanique/électrique 2) On peut considérer la possibilité de descendre en température pour augmenter les facteurs de qualité de nos vibrations de matériaux 2D.

La simulation de nos mesures ( $f_p = 75$  kHz) sont présentés en Figure 66-d. Nous retrouvons les oscillations même si des battements supplémentaires sont présents. Un paramètre important, qui est le nombre d'harmonique  $N$  nécessaires à décrire nos mesures, apparaît lorsque nous mesurons précautionneusement la fréquence entre les oscillations adjacentes, désignée par  $\Delta f$ , en fonction de la fréquence d'entraînement. Les points noirs de la Figure 66-e donnent la distribution des fréquences en fonction de  $f_D$ . Ces données sont tracées et comparées à des simulations pour différents  $N$ . Il s'avère qu'il faut au moins  $N=100$  pour que nos données correspondent.

Nous pouvons essayer de donner une explication à ce grand nombre d'harmoniques. Sur la Figure 66-f, nous mesurons la réponse en fréquence en fonction de la tension de pompage et observons l'apparition des multiples résonances et harmoniques pour un pompage paramétrique élevé. Pendant la mesure de la Figure 66-a, le résonateur est continuellement balayé de 8 à 19 MHz en  $6.5\mu S$  (demi-période de 75kHz) ce qui est

légèrement plus rapide que la vitesse d'amortissement du résonateur ( $\sim 11\mu\text{s}$ ). Pendant ce temps, le résonateur est couplé avec presque toutes les harmoniques de la pompe contenues dans la fenêtre de fréquence  $f_w$ , et le nombre correspondant d'harmoniques est proche du rapport  $f_w / f_p = 147$ . La valeur de  $N \sim 100$  est en effet en accord avec cette hypothèse de base obtenue pour  $f_p = 75\text{kHz}$  (Figure 66-e).

Nous avons réussi à coupler notre résonateur mécanique avec le signal de pompe et, à minima, ses 100 premières harmoniques.

#### **6.4. DOUBLE TAMBOUR $\text{WSe}_2$ ET COUPLAGE MECANO-MECANIQUE : LOCALISE OU DELOCALISE ?**

Dans cette partie Nous allons coupler mécaniquement deux modes de résonance qui sont spatialement séparés mais juxtaposés. L'échantillon est ici composé de feuillet de  $\text{WSe}_2$  monocristallin multicouches en configuration 3R fabriqué par CVD par Fabrice Oehler. Ils sont transférés et déposés sur des microstructures contenant des trous circulaires connectés deux à deux. Chaque tambour, 1 et 2, est contrôlé individuellement par des grilles locales ( $V_{g1}$  et  $V_{g2}$ ) en permettant d'appliquer une force électrostatique localement sous la membrane d'intérêt. On est ainsi capable de contrôler indépendamment les contraintes appliquées à chaque membrane ainsi que la fréquence et l'amplitude d'excitation (Figure 67-A et Figure 67-C). La mesure des vibrations des membranes est ensuite mesurée optiquement via la cavité Fabry Péroต์ présente entre le 2D et les grilles en or avec un laser rouge ( $\lambda = 632 \text{ nm}$ ). Les membranes libellées 1 et 2 dans la Figure 67-C présentent un léger décalage en fréquence de vibration mécanique (Figure 67-D). En effet, la membrane 1, vibre à la fréquence  $\omega_1 = 28.31 \times 2\pi \text{ MHz}$  et la membrane 2 à la fréquence de  $\omega_2 = 29.77 \times 2\pi \text{ MHz}$  à  $V_g = -5\text{V}$  et  $V_{ds} = 0\text{V}$ . Les facteurs de qualité des membranes sont de  $Q_1 = 163$  et  $Q_2 = 201$ . Ces valeurs indiquent que notre échantillon présente un léger décalage de tension intrinsèque entre la membrane 1 et 2. Ceci est certainement dû à

la géométrie et à la méthode de transfert qui n'est pas parfaite mais cette différence est minime et la proximité des fréquences des deux membranes témoigne en fait de la bonne qualité de l'échantillon. Dans la suite nous allons étudier le rapport entre les modes de vibrations  $\omega_1$  et  $\omega_2$  en fonction de la contrainte appliquée aux membranes.

Notre étude commence par la caractérisation de la fréquence de vibration en fonction de la tension de grille appliquée à chaque tambour. Les Figure 67-E , Figure 67-F montrent la dépendance  $\omega_1(V_{G1})$  et  $\omega_2(V_{G2})$ . Dans le cas de la Figure 67- E, nous avons appliqué une tension de grille AC et DC sur les deux grilles en même temps et nous

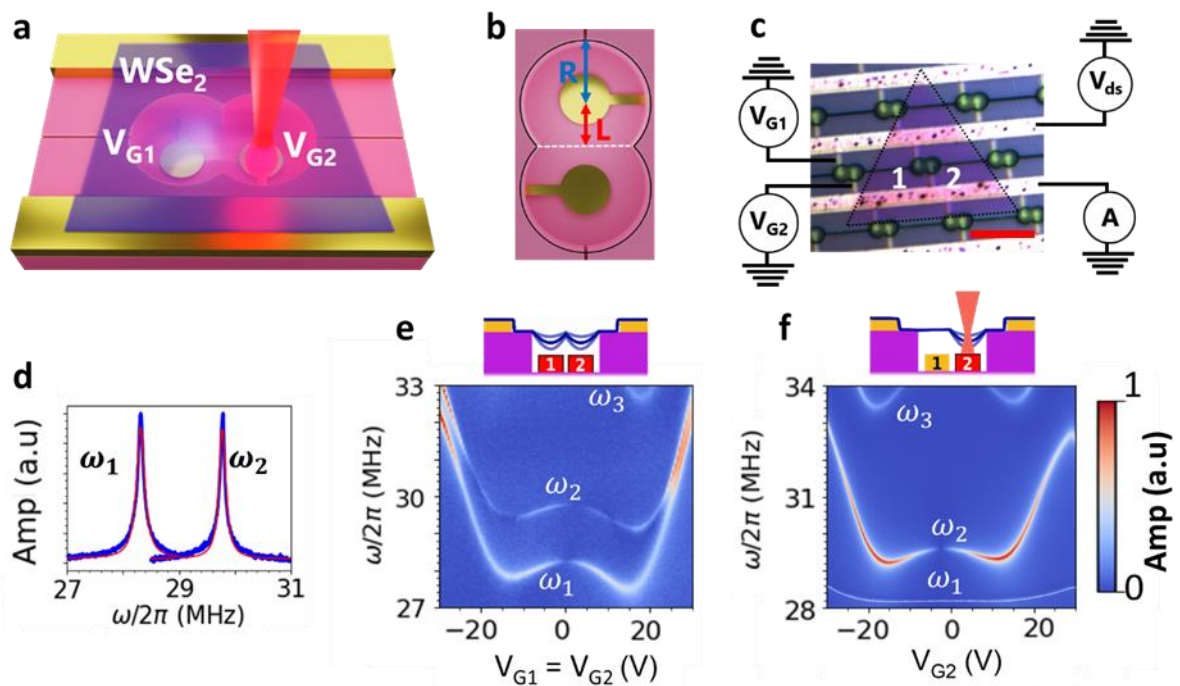


Figure 67 - Caractérisation des multiples résonateurs de WSe<sub>2</sub>. (a) Montage optoélectromécanique utilisant 2 grilles locales pour adresser chaque tambour individuellement. (b) Vue du dessus des microstructures circulaires connectées avec R le rayon du cercle et L la distance à la ligne séparatrice des cercles. (c) Image optique de l'échantillon. Le triangle monocristal de WSe<sub>2</sub> est violet sur l'image. Les tambours sont étiquetés 1 pour celui de gauche et 2 pour celui de droite. Echelle : 10 $\mu$ m. (d) Fréquence de résonance des deux résonateurs à  $V_{G1} = V_{G2} = -5V$ . La fréquence de résonance  $f_1 = 28,31$  MHz a un facteur de qualité  $Q_1 = 163$ . Pour le deuxième résonateur, la fréquence de résonance  $f_2 = 29,77$  MHz a un facteur de qualité  $Q_2 = 201$ . (e) Variation de la vibration mécanique des tambours en fonction de  $V_{G1,2}$ . (f) Variation de  $\omega_2$  en fonction de  $V_{G2}$  avec  $V_{G1} = 0V$  avec excitation et mesure sur le tambour 1. On remarque que  $\omega_1$  n'est pratiquement pas affecté par les variations de  $V_{G2}$ .



mesurons la fréquence de vibration des membranes correspondantes. La fréquence de vibration dépend de la constante de raideur  $k$  et de la masse du tambour  $m$ . En variant la tension de grille DC, on applique une force capacitive sur le résonateur  $i$  de la grille  $j$  tel que  $F_{ij} = -\frac{1}{2} \frac{\partial C_g}{\partial z} V_{gj}^2$ , où  $C_g$  est la capacité entre la membrane et la grille et  $z$  la distance qui les séparent. La force  $F_{ij}$  agit sur la constante de raideur. On constate que les deux membranes présentent le même comportement en fonction de la variation respective de leur tension de grille. Entre  $V_g = -15V$  et  $V_g = 15V$ , nous constatons une baisse de la fréquence de résonance dû à un ramollissement des membranes appelée « capacitive softening ». Ensuite, les deux membranes se raidissent (Ici  $k \propto V_g^2$ ) et la fréquence de résonance augmente d'environ 4 MHz avec une variation de tension de grille de 15V.

La Figure 67-F, montre la variation de la fréquence  $\omega_1$  et  $\omega_2$  en fonction de  $V_{g2}$ . Nous constatons que  $\omega_2$  varie de la même manière que dans la Figure 67-E tandis que la fréquence  $\omega_1$  reste quasi constante, ce qui indique que la grille 2 applique une force

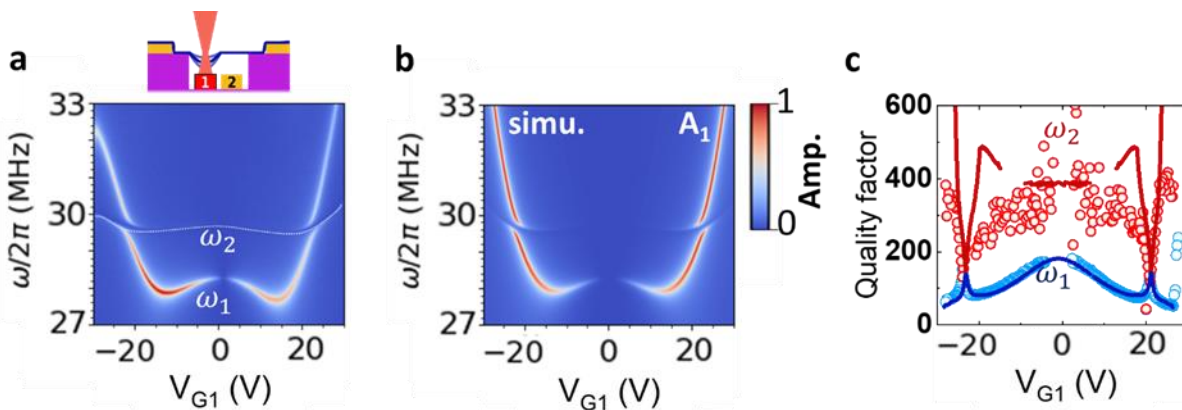


Figure 68 - Couplage à deux modes. (a) Variation de  $\omega_1$  en fonction de  $V_{g1}$  avec  $V_{g2} = 0V$ . L'excitation et la mesure sont effectués sur le tambour 1. On remarque que la vibration de fréquence  $\omega_2$  n'est pratiquement pas affecté par les variations de  $V_{g1}$ . Comme les modes sont égaux à certaines valeurs de  $V_{g1}$ , on observe un anti-croisement indiquant le couplage entre  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . (b) Calcul numérique de la mesure en (a) et du couplage en utilisant l'équation (37) dans le texte. Mesure expérimentale de l'anti-croisement dans la zone de couplage conduisant à  $g = 255kHz$ . (c) Facteur de qualité des modes  $\omega_1$  et  $\omega_2$  par rapport à  $V_{g1}$  extrait de la mesure (cercles) et de la simulation (lignes). En dehors de la zone de couplage, les facteurs de qualité sont différents et deviennent égaux dans la région de couplage, ce qui est un indicateur de couplage fort.

électrostatique quasi exclusivement sur le tambour 2. La force électrostatique  $F_{12}$  appliqué par la grille 2 sur le tambour 1 reste marginal. Dans cette expérience, nous n'avons pas de croisement des fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , il n'y a donc aucun couplage entre les 2 modes et aucune interaction sans pompage paramétrique. Nous avons ensuite étudié la variation de la fréquence  $\omega_1$  en fonction de  $V_{g1}$  (Figure 68-A). Cette fréquence varie de la même manière que dans la Figure 68-A alors que la fréquence  $\omega_2$  ne varie quasiment pas. De même, la force électrostatique  $F_{21}$  appliqué par la grille 1 sur le tambour 2 reste marginal. Comme la fréquence  $\omega_1$  augmente, à  $V_{g1} = \pm 22V$ , il est possible d'obtenir une situation où  $\omega_1 = \omega_2$ . A cet endroit, on note un anti-croisement des courbes de fréquences qui indique un fort couplage cohérent entre les 2 modes avec une valeur de l'intensité de couplage  $g = 255$  kHz. Dans la Figure 68-B, nous simulons la mesure en résolvant les équations couplées suivantes <sup>161,157</sup> :

$$\begin{cases} \ddot{x}_1 + \gamma_1 \dot{x}_1 + \omega_1^2 x_1 = jx_2 + F_{11} \cos(\omega_d t) \\ \ddot{x}_2 + \gamma_2 \dot{x}_2 + \omega_2^2 x_2 = jx_1 \end{cases} \quad (37)$$

Avec  $x_{1,2}$  l'amplitude de vibration des membrane 1 et 2,  $j$  le couplage entre les modes des deux membranes. On note  $F_{11} = f_d$  la force d'excitation,  $\omega_d$  la fréquence d'excitation. Le paramètre de couplage  $j$  regroupe tous les types de couplage possible entre les deux membranes. Ce couplage peut être très varié, nous notons qu'il peut être lié à la mécanique, on peut avoir un couplage optique ou un couplage électrostatique par exemple. Dans notre cas, on a un couplage purement mécanique car les modes se recouvrent et il n'y a pas de couplage électrostatique croisé ( $F_{21}$  et  $F_{12}$  sont négligeables). Un modèle simple proposé par D. Zanette<sup>80</sup> et repris par les équipes de Delft <sup>81</sup> a été décrit dans le chapitre 2.4. Dans la Figure 68-B, nous avons représenté la mesure et simulation numérique selon ce modèle.

Dans le même modèle et dans les mesures, il est aussi possible de relier les dissipations des résonateurs dans les cas hors couplage et fortement couplé. Dans la Figure 68-C, nous avons représenté les facteurs de qualité des résonateurs en fonction de la grille, à la fois extraite des deux résonances par des fit Lorentziens pour la mesure et pour la simulation. Plusieurs points importants peuvent être extraits de cette mesure.



Dans cette mesure, le laser est positionné sur la membrane 1 et la grille est actionné en position 1. Il se trouve que, hors couplage, à  $V_{g1}=0V$  par exemple, le facteur de qualité de la membrane 2 est beaucoup plus grand que celui de la membrane 1 (400 contre 180). Nous supposons que cette différence dans la dissipation est due à l'excitation électrique et la perturbation par la mesure avec le laser.

Aux points de couplage et d'anticroisement, ( $V_{g1} \sim \pm 20V$ ), les facteurs de qualité de chaque membrane collapsent en une unique valeur ; celle de la membrane 1 tend à augmenter et celle de la membrane 2 tend à diminuer. En régime de couplage fort, cela s'explique simplement par le fait qu'un échange d'énergie s'effectue entre les 2 modes. Cela se reflète dans la dissipation des modes mécaniques. Le facteur de qualité étant le rapport de l'énergie dissipé sur l'énergie totale du mode de vibration. Il faut comprendre de cela que les canaux de dissipation énergétique sont les mêmes pour les deux modes délocalisés.

Pour avoir une meilleure compréhension de ce qu'il se passe, nous avons cartographié ces modes. A partir de ce type de mesure, nous pouvons déterminer si un mode est localisé où délocaliser le long de la structure. L'amplitude absolue des modes quand  $\omega_1 \neq \omega_2$ , est présentée dans les Figure 68-A et Figure 68-B. Nous observons un mode à la fréquence  $\omega_1$  bien localisé aux contours de la membrane 1 et de forme circulaire ressemblant de près à un mode fondamental pour une membrane circulaire. Le mode à la fréquence  $\omega_2$  est essentiellement localisé à la position du tambour 2, mais nous remarquons que le tambour 1 vibre à une force beaucoup plus faible à cette fréquence également. Ceci est dû au fait que la membrane 2 a une plus grande rigidité ainsi que sa tension intrinsèque, de sorte que lorsqu'elle vibre, elle induit un mouvement de la membrane 1. Dans le régime de couplage de la Figure 69-c et d, nous avons tracé les cartes  $x \cdot \cos(\varphi)$ ,  $x$  et  $\varphi$  étant l'amplitude et la phase mesuré des modes de couplage  $\Omega_1$

et  $\Omega_2$ . Contrairement aux modes  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , les modes  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  sont délocalisés. Dans le régime de couplage, les deux membranes vibrent collectivement aux mêmes fréquences. Le mode  $\Omega_1$  est une vibration en phase qui s'étend sur toute la membrane.

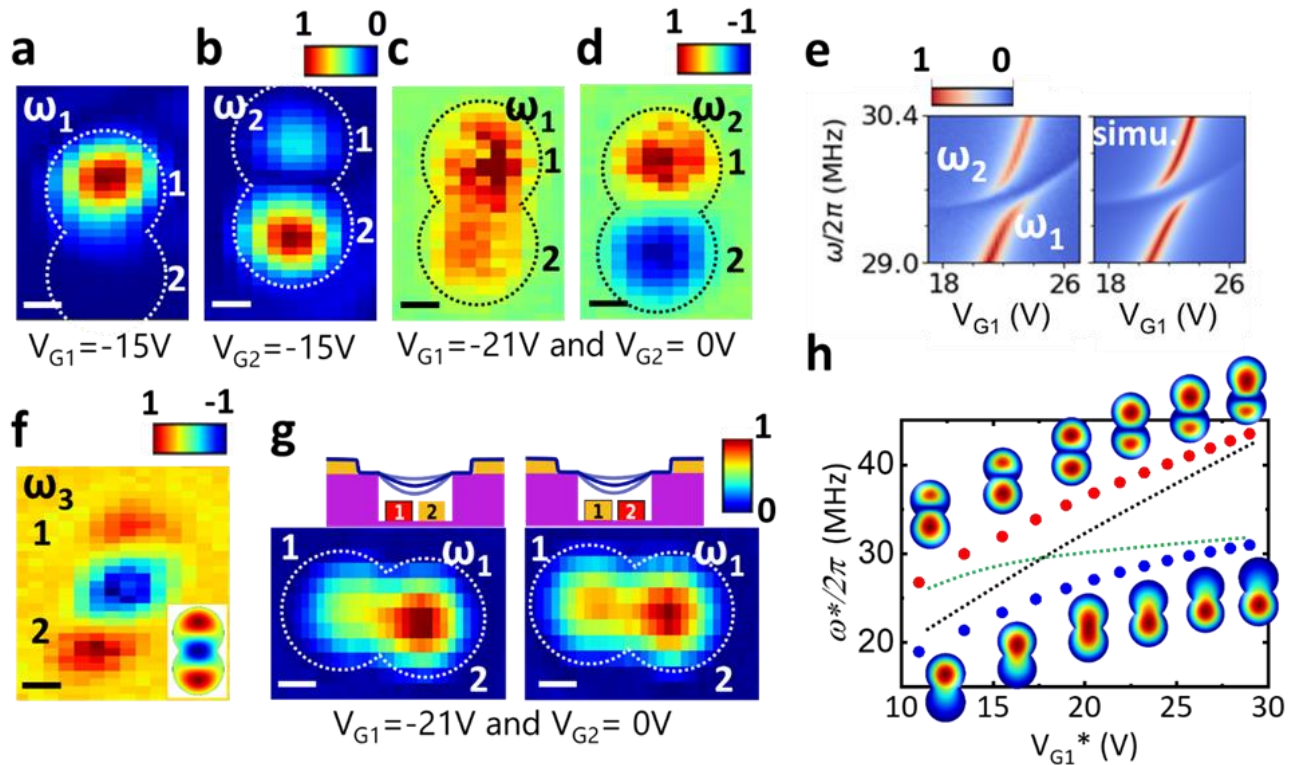


Figure 69 - Cartes des modes vibratoires. a) Cartographie de l'amplitude du mode  $\omega_1$ , hors couplage, à  $V_{g1} = -5V$ . Le mode est localisé sur la membrane 1 et est similaire à la forme d'un tambour circulaire. b) Cartographie de l'amplitude du mode  $\omega_2$  hors couplage à  $V_{g2} = -5V$ . Le mode est principalement localisé sur la membrane 2 avec une petite vibration visible sur la membrane 1. c) Cartographie du mode  $\Omega_1$ , couplé. Le mode est délocalisé sur toute la partie suspendue, similaire au mode,  $n=1$ , en phase, d'une membrane plus grande. d) Cartographie du mode  $\Omega_2$ , couplé. Le mode est aussi délocalisé mais la phase dans les deux zones est opposée, comme le mode  $n=2$ , d'une membrane plus grande. e) Cartographie du mode  $\omega_3$ . Les parties externes se déplacent dans la direction opposée à la partie centrale. Encadré : Simulation COMSOL du mode. f) Amplitude du mode vibratoire couplé  $\Omega_1$  selon qu'on excite avec la grille 1 ou la grille 2 (indiquées en rouge dans le schéma). Nous n'observons quasiment aucune différence. Toutes les barres d'échelle :  $1\mu m$ . g) Zoom sur la région de couplage de la mesure et de la simulation de la figure 45 permettant de mesurer la force de couplage de  $g = 255kHz$  et la position des modes  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$ . La simulation numérique correspond à la mesure expérimentale. h) Simulation de la forme des modes à l'aide de COMSOL avec différentes valeurs de grille  $V_{g1}^* \propto \sqrt{k_1}$ ,  $k_1$  étant la constante de raideur pour la membrane 1 mais en gardant la rigidité constante pour la membrane 2 à  $k_2 = 0,3 N/m$ . Nous pouvons clairement observer la transition entre des modes principalement confinés avec 2 valeurs de rigidité éloignées et des modes complètement délocalisés lorsque les deux côtés ont une rigidité équivalente. Nous observons le même comportement dans nos expériences.

L'excitation par la grille 1 ou 2 ne change pas le résultat, Figure 69-f. Le mode  $\Omega_2$  est aussi un mode délocalisé sur toute la partie suspendue mais on voit deux zones en opposition de phase qui correspondent à chaque résonateur individuel. L'ensemble  $\Omega_1$ - $\Omega_2$  ressemble aux harmoniques  $n=1$  et  $n=2$  du mode qui s'étendrait sur toute la membrane.

Toutefois, une différence importante est à noter, ces modes se distinguent des modes d'une membrane plus grande par la différence de fréquence qui les sépare. Pour la vibration d'une membrane circulaire, les modes  $n=1$  et  $n=2$  ont un rapport de fréquence proche de 1.6 (31.5MHz et 49MHz par exemple, voir la Figure 70 pour  $L=0$ ). Dans le cas de vibration couplés délocalisés les deux modes ne sont distants que

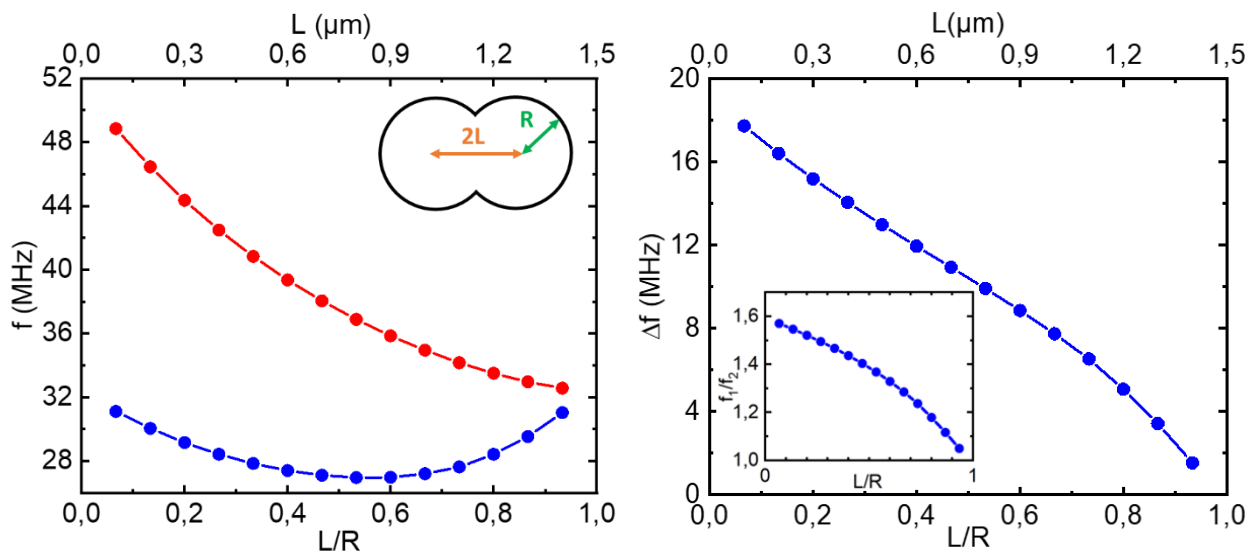


Figure 70 - les fréquences  $f_1$  et  $f_2$  des deux premières harmoniques  $n=1,2$  de deux tambours couplés en fonction de la distance qui sépare le centre de chaque tambour avec  $\Delta f = f_2 - f_1$ . Ici, le modèle est simplifié car les deux constantes de raideur  $k_1$  et  $k_2$  sont les mêmes ( $k_1=k_2$ ).

d'environ 510 kHz, ce qui est peu. Nous expliquons ce faible couplage par le défaut principal de notre système :  $k_1$  et  $k_2$  ne sont pas forcément identiques expérimentalement or pour notre simulation, nous avons défini un modèle simplifié avec  $k_1 = k_2$ . La question se pose s'il est possible de modéliser notre système avec deux constantes de raideur différentes. Il est possible de réduire fortement le couplage

avec un système où  $k_1 \neq k_2$  mais la difficulté est de représenter la constante de raideur à l'interface, dans la zone de couplage, nous avons été limités par la définition de la constante de raideur du système dans la zone de recouvrement des modes, à défaut de la mesurer directement.

La Figure 69-h montre une simulation numérique avec analyse par éléments finis, utilisant le logiciel COMSOL. On simule la forme des modes mécaniques d'un système équivalent à notre membrane (sans tenir compte de la rigidité flexurale). La constante de raideur  $k_2^*$  de la membrane 2 est maintenue constante tout en faisant varier la constante de raideur  $k_1^*$  de la membrane 1. On considère que la modification de  $k_1^*$  correspond à une tension de grille  $V_{g1}^*$  et à une force électrostatique appliquée sur la membrane. Les formes des modes vibratoires sont indiquées pour différents  $V_{g1}^*$ . Hors couplage, lorsque  $\omega_1 < \omega_2$ , le mode 1 est confiné dans les limites de la membrane 1 et le mode 2 est principalement présent sur la membrane 2 avec une petite contribution sur le tambour 1. Lorsque nous approchons du croisement,  $\omega_1 \sim \omega_2$ , les modes deviennent de plus en plus délocalisés sur la surface des deux membranes jusqu'à ce qu'ils soient complètement délocalisés avec un très bon accord entre la simulation de la Figure 69-h et la Figure 69-c pour le premier mode et la Figure 69-d pour le second mode. Ensuite, lorsque  $\omega_1 > \omega_2$ , on revient aux modes hors couplage en localisant progressivement un mode mais sur la membrane 2 cette fois. Dans l'ensemble, les formes observées et simulées sont en bon accord.

## 6.5. MODULATION DU COUPLAGE : VERS LE COUPLAGE MECANIQUE ULTRA FORT

Nous avons démontré qu'il est possible de varier la fréquence de résonance des deux membranes indépendamment l'une de l'autre. La Figure 71 montre différents alignements de fréquences et différentes positions de couplage. Les Figure 71-A, B et C représentent la modulation de la fréquence  $\omega_1$  en fonction de  $V_{g1}$  à différents  $V_{g2}$  allant de -20V à -26V. Naturellement, la fréquence  $\omega_2$  passe d'environ 30MHz à 34 MHz. Nous constatons qu'en fonction de la position des deux modes, la position de l'anti-croisement varie ainsi que l'intensité de couplage. Le couplage augmente fortement avec  $V_{g2}$ . Nous passons de  $g = 255\text{kHz}$  à  $g = 500\text{ kHz}$  à  $V_{g2} = -26\text{V}$ . En appliquant la même méthodologie pour l'autre membrane, nous obtenons les graphes de la Figure 71-D à F. Initialement, à  $|V_{g1}| < 22\text{V}$ , les deux modes ne se croisent pas, il n'y a donc

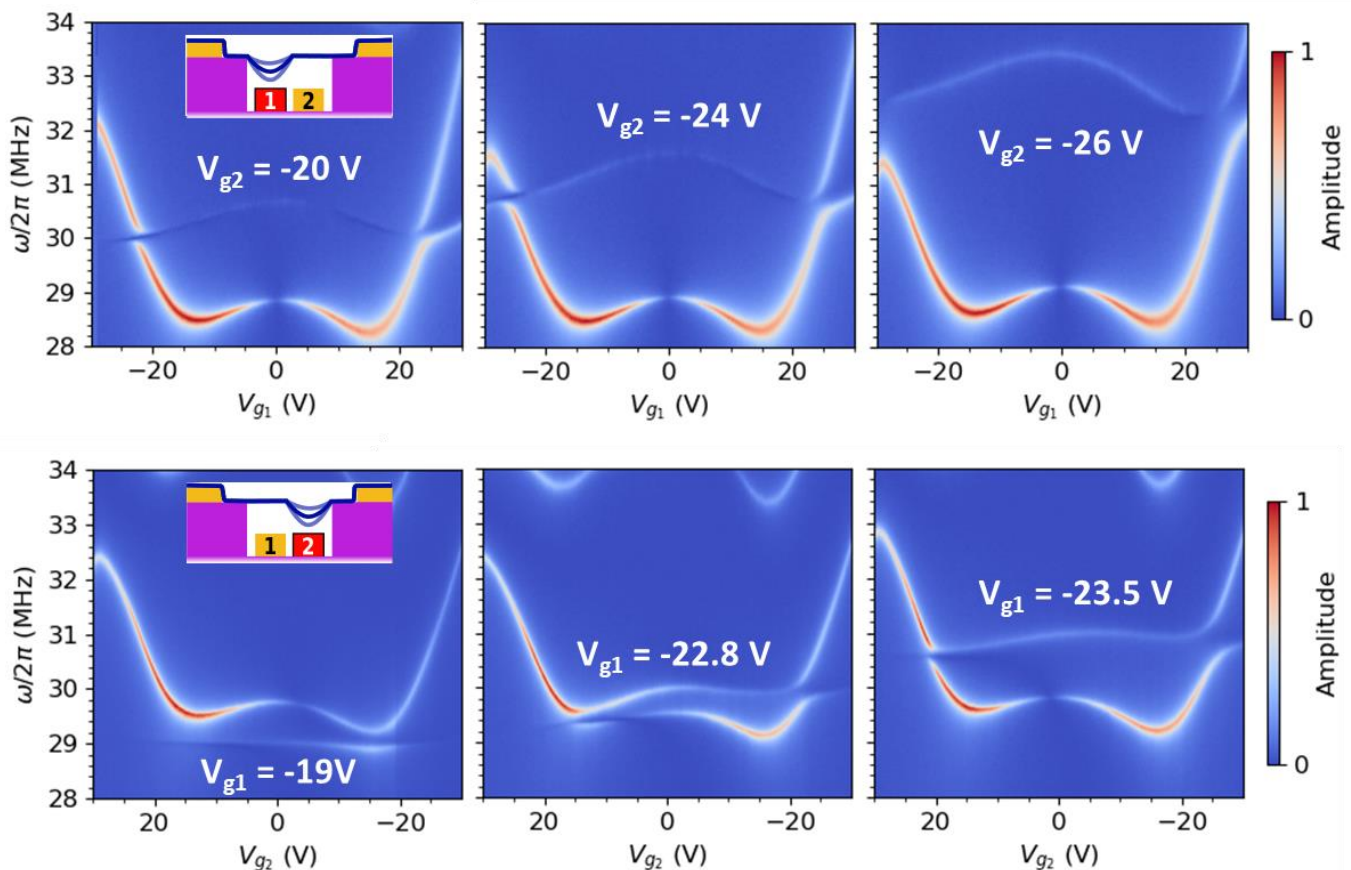


Figure 71 - Variation des fréquences des membranes les unes par rapport aux autres. A), B) et C) mesures de  $f_1(V_{g1})$  à différents  $V_{g2}$  permettant de changer les positions de couplage ainsi que son intensité. D), E) et F) mesures de  $f_2(V_{g2})$  à différents  $V_{g1}$  permettant de changer les positions de couplage ainsi que son intensité.

aucun couplage. Mais en augmentant  $V_{g1}$  et en le modulant de  $V_{g1} = -19V$  à  $V_{g1} = -23.5V$ , les fréquences de résonance des deux membranes se croisent et on obtient des valeurs de couplages  $g$  plus grand.

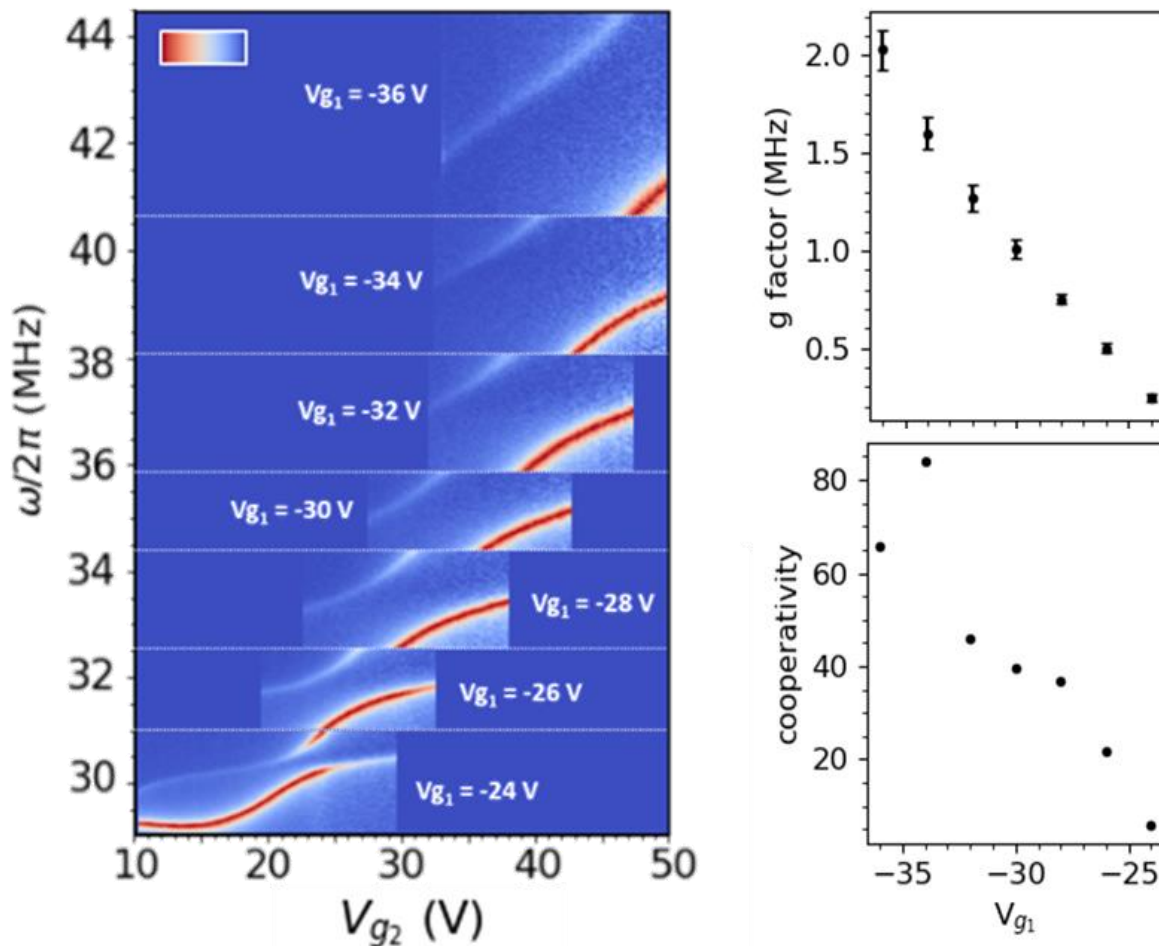
A  $V_{g1} = -19V$ ,  $\omega_1$  demeure inférieur à  $\omega_2$  mais on voit une activation du mode autour de  $V_{g2} = 17V$  ce qui signifie probablement que nous avons un couplage actif entre les deux modes. Cet effet peut être augmenté en augmentant simplement  $V_{g1}$ , nous sommes aussi capables d'avoir un couplage entre les 2 modes qui ne varie pas sur de grandes variations de  $V_{g2}$  ( $dV_{g2} \approx 10V$ ).

Un des points importants avec notre système est que nous pouvons varier le couplage  $g$  lui-même en manipulant les résonateurs avec les tensions de grille.<sup>162</sup> La Figure 71 représente la modulation de la fréquence et du couplage pour des valeurs de  $V_{g1}$  allant de  $V_{g1} = -24V$  jusqu'à  $V_{g1} = -36V$ . On observe que le couplage augmente donc en fonction de  $V_{g1}$ . Ici, nous démontrons une multiplication de l'intensité  $g$  d'un facteur 9, avec une variation de  $V_{g1}$  de  $-24$  à  $-36V$ , passant de  $g = 250kHz$  à  $2.05MHz$ , Figure 71 -B. La coopérativité  $c$  aussi est augmentée avec  $V_{g1}$ . Dans le graphe de la Figure 71-C, la coopérativité est multipliée par 11 entre  $V_{g1} = -24V$  et  $V_{g1} = -36V$  avec  $c$  allant de  $c = 5.78$  à  $c = 65.74$  respectivement ce qui représente un très fort couplage à température ambiante. Malheureusement, il semble que la dissipation augmente en fonction des tensions de grilles. Les pics de fréquences finissent par s'élargir à mesure que  $V_g$  augmente et donc réduisent l'augmentation de la coopérativité dans cette expérience.

Il est admis dans la littérature que le régime de fort couplage est dépassé quand  $C > 1$ , pratiquement, cela revient à dire qu'il est possible de distinguer les deux résonances  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$ . Au-delà, il existe un certain nombre d'expériences où le régime de ultra fort couplage peut être atteint, il est admis que l'on rentre dans le régime d'ultra fort couplage lorsque  $g > 10\%$  de la fréquence de résonance du système  $\Omega_1$  ou  $\Omega_2$ . Le record



actuel pour le rapport  $g/\Omega_2$  est de 143%. Une excellente revue existe sur le sujet.<sup>213</sup> Dans notre cas nous avons un rapport  $g/\Omega_2 = 5\%$  donc nous nous situons à la limite du régime ultra fort. Si nous voulons définir la limite atteignable avec un tel système expérimental, il faut se rappeler que le couplage est purement mécanique. A partir de



cette assumption nous pouvons faire deux observations :

Figure 72 - Augmentation de la coopérativité et de la force de couplage. A) Variation de la fréquence des tambours et la fréquence de couplage à différents  $V_{g1}$  en fonction de  $V_{g2}$ . B) L'intensité de couplage  $g$  augmente avec la tension de la grille appliquée à la membrane 1. c) Augmentation de la coopérativité en fonction de  $V_{g1}$ .

Le couplage augmente en réduisant la distance  $L$  entre les résonateurs (Figure 72) et que la limite,  $L$  tends vers 0, s'approche du modèle simple d'un résonateur circulaire en

considérant les modes  $n=1$  et  $n=2$ . La limite factuelle d'un tel couplage devrait être de l'ordre de 40%, ce qui est déjà remarquable.

En fait, nous n'avons aucune explication sur l'origine de la variation du couplage  $g$  avec  $V_{g1}$  ou  $f_1, f_2$ . On ne modifie pas la longueur  $L$  expérimentalement et, dans les faits, le couplage n'est pas proportionnel à  $f_2$  ou  $f_1$ , le couplage augmente d'un facteur 10 quand la fréquence augmente d'un facteur 0.7 seulement. La seule hypothèse valable est que l'on réduit le désaccord de constante de raideur avec les grilles entre les deux résonateurs et que l'on tend vers un système parfait comme sur la Figure 47bis. Dans ce scénario, nous devrions converger vers la valeur 1,2 pour le rapport  $f_2/f_1$ , car  $L/R$  est de l'ordre de 0.7 dans notre cas, c'est-à-dire la valeur de  $2g/f \sim 20\%$ , soit un couplage  $g/f \sim 10\%$ . Il est curieux que cette valeur ne commence pas à converger vers 5%, on devrait voir une inflexion de la pente de  $g$  en fonction de  $V_{g1}$  mais la tendance est plutôt légèrement inversée, la pente tend à augmenter avec  $V_{g1}$  sur les derniers points de mesure. Il faut croire que le couplage n'est pas forcément limité par ce modèle simple et que la limite des 20%, ou celle des 40% de la remarque 1, peut-être franchie avec la géométrie de notre échantillon.

## 6.6. CONCLUSION

Dans ce travail, nous avons étudié les différences entre les modes de vibrations hors couplage et dans un régime de couplage en effectuant une cartographie de ces derniers montrant le confinement des modes hors couplage et la délocalisation des modes de couplages permettant un échange efficace entre les 2 membranes d'énergie et d'information. Ensuite, nous avons pu modifier l'alignement des fréquences en faisant varier les tensions de grilles et nous avons exploité les propriétés de notre dispositif et pour amplifier le couplage et atteindre des régimes de couplage très forts avec une coopérativité qui peut atteindre  $c = 65$  à température ambiante entre des modes de différentes membranes et une intensité de l'ordre de 5% de la fréquence de couplage.



## CONCLUSION

---

Nous avons appris, utilisé et mis en relief différents concepts impliquant l'optique, l'électronique et la mécanique. C'est le cas de la science des matériaux dans son ensemble mais d'autant plus vrai ici. Il a fallu maîtriser les transferts, installer le montage optique, le cryostat, les modèles théoriques, compiler la bibliographie dans une communauté en pleine évolution et s'intégrer dans une équipe de recherche. Ceci nous a permis de mesurer les vibrations mécaniques de membranes d'épaisseur nanométriques suspendues, et de démontrer l'intérêt scientifique de ces objets d'un point de vue mécanique à travers trois visions différentes, qui sont présentées dans les chapitres 4, 5 et 6 de ce manuscrit.

Les chapitres abordés dans cette thèse mettent en lumière l'incroyable diversité d'application de la straintronique dans les matériaux 2D avec des champs d'applications impliquant le transport thermique et la variation efficace des fréquences de vibrations ou des applications impliquant des vibrations couplées et des méthodes d'indentation statiques avec des pointe AFM ou des micropilliers.

Dans la continuité de ce travail, un des objectifs actuellement étudié est de pouvoir appliquer de fortes forces électrostatiques sur des membranes 2D en suspension afin d'obtenir des déformations de l'ordre du pourcent sur l'ensemble de la structure suspendu (5  $\mu\text{m}$  de large typiquement), et de concentrer ces contraintes mécaniques au sommet de piliers de  $\text{SiO}_2$  de 500 nm de large et positionner aux centres de la zone afin d'obtenir des allongements modulables électrostatiquement avec de grandes tensions de grille afin d'obtenir des variations de tensions mécaniques pouvant aller jusqu'à 10% dans un dispositif à 3 Kelvins. Ce dispositif permettra de confiner la lumière aux zones de les plus contraintes et de faire varier l'intensité et la position des pics d'émission électrostatiquement et devrait permettre d'émettre de la lumière dans de nouveaux régimes.

# ANNEXES

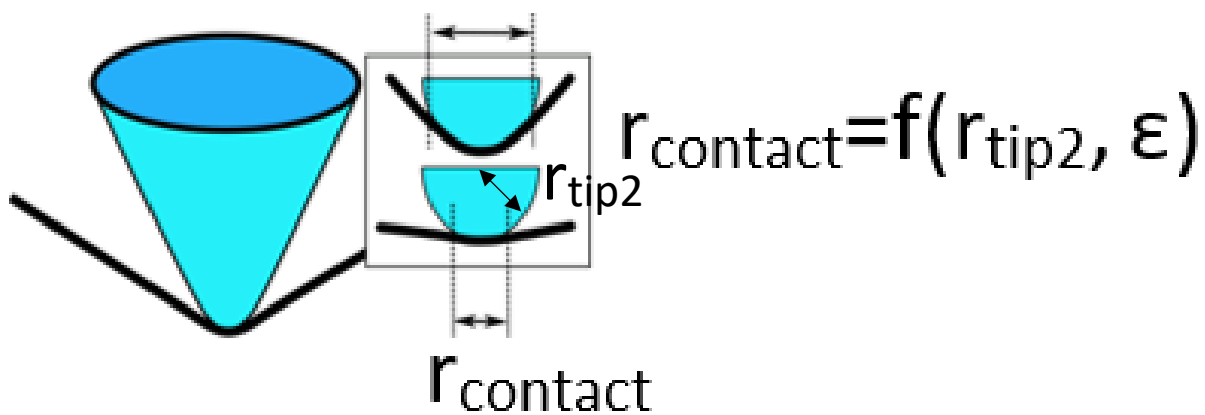
## A. TABLEAU DES REFERENCES UTILISEES POUR LE CHAPITRE 4

Matériau 2D	$f_0$ (MHz)	$f_1$ (MHz)	$f_2$ (MHz)	$f_2-f_0 / (f_2+f_0)$ (%)	Tuning type	Tuning (MHz/V)	Type	$\delta f/f_1$ Volts (%/V)	efficacité	réf
<b>Tous les matériaux – accordage électrothermique</b>										
MoS <sub>2</sub> ML	33.6	13	10	54	électrothermique	17MHz/1V	softening	123	5818	Our work
1L Gr	13	27.5	47	56	électrothermique	27MHz/3V	hardening	30	1680	104
3L Gr	80	82	85.5	48	électrothermique	4MHz/1V	hardening	4.8		114
<b>Hétérostructures 2D – Tous types</b>										
ML hBN/1L Gr	19	25	30		capacitive	10MHz/5V	hardening	8		148
1L MoS <sub>2</sub> /3L Gr	23	65	107		capacitive	84MHz/20V	hardening	7		149
Cr <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> Te <sub>6</sub> /WSe <sub>2</sub>	18	21	25		capacitive	7MHz/20V	hardening	2		151
1L MoS <sub>2</sub> /1L Gr	9	11.5	12		capacitive	1MHz/4V	hardening	2		152
Gr/ML NbSe <sub>2</sub> / Gr	52.5	51	49.7		capacitive	2MHz/3V	softening	1		52
NbSe <sub>2</sub> ML	25.5	24.5	23		capacitive	2MHz/20V	softening	0.4		155
<b>2D TMDs</b>										
ML MoS <sub>2</sub>	20	30	40		capacitive	20MHz/15V	hardening	4		150
1L MoSe <sub>2</sub>	37	39.5	41.5		capacitive	3.5MHz/10V	hardening	0.9		153
2L MoS <sub>2</sub>	86	83	78		capacitive	4MHz/10V	softening	0.5		154
1L WSe <sub>2</sub>	44.35	44.25	44.1		capacitive	0.1MHz/1V	softening	0.2		53
ML MoS <sub>2</sub>	9	8.85	8.7		stress actuation	0.2MHz/40V	hardening	0.05		156
1L MoSe <sub>2</sub>	30.856	30.85	30.85		capacitive	0.004MHz/0.3V	softening	0.04		48
<b>Graphene</b>										
1L Gr	30	80	120		stress actuation	30MHz/3V	hardening	12.5		106
1L Gr	11.3	12	13		Thermal expansion	1MHz/1V	hardening	8		111
1L Gr	3.3	4	5		Far capacitive	1.5MHz/200V	hardening	2		120
1L Gr	0.6	0.9	1		Field effect	0.15MHz/100V	hardening	0.2		125
1L Gr	23.0255	23.028	23.029		stress actuation	0.003MHz/10V	hardening	0.001		214
<b>Graphene – effet capacitif</b>										
ML Gr	67	50	40	25	capacitive	10MHz/0.1V	softening	200	5000	44
Gr 1L	11	14	17		capacitive	5MHz/2V	hardening	20		105

1L Gr	28	37	45		capacitive	13MHz/3V	hardening	12		107
Gr 1L	30	50	75		capacitive	30MHz/5V	hardening	12		38
1L Gr	<60	80	105		capacitive	40MHz/5V	hardening	10		109
3L Gr	58	50	47		capacitive	5MHz/1V	softening	10		110
3L Gr	36	17.5	10	56	capacitive	44MHz/1V	softening	251		110
ML Gr	44	47	49		capacitive	2.5MHz/0.5V	hardening	11		108
1L Gr	30	40	50		capacitive	20MHz/13V	hardening	4		115
1L Gr	45	47	49		capacitive	4MHz/2V	hardening	4		116
1L Gr	60	75	77		capacitive	20MHz/5V	hardening	5		113
5L Gr	83	90	100		capacitive	10MHz/5V	hardening	2		121
1L Gr	48	57	63		capacitive	13MHz/4V	hardening	6		112
1L Gr	10.6	11.2	12		capacitive	1MHz/5V	hardening	1.7		39
1L Gr	8	10	12		capacitive	3MHz/10V	hardening	2.5		118
1L Gr	47	50	51		capacitive	0.6MHz/0.5V	hardening	2.4		119
Gr ML	36	35	34		capacitive	1MHz/1V	softening	3		117
1L Gr	35.5	34	33.3		capacitive	2MHz/5V	softening	1		122
1L Gr	64	67	68		capacitive	3MHz/5V	hardening	0.8		123
1L Gr	405	415	425		capacitive	15MHz/10V	hardening	0.4		124
1L Gr	201	200.5	200		capacitive	0.5MHz/6V	softening	0.04		126
1L Gr	177.9	177.4	177.2		capacitive	0.2MHz/5V	softening	0.02		127
1L Gr	103.57	103.54	103.52		capacitive	0.04MHz/10V	softening	0.004		215
<b>Nanotube- all tuning</b>										
nanotube	-	140	139.5	0.3	Electron-phonon coupling	0.5MHz/0.002 6V	Softening/hardening	137	41	139
nanotube	-	84.5	83	1.7	Electron-phonon coupling	1.5MHz/0.02	Softening/hardening	90	153	140
nanotube	-	230	229.5	0.2	Electron-phonon coupling	0.5MHz/0.01V	Softening/hardening	20	4	145
nanotube	45	75	120	45	capacitive	25MHz/0.7V	hardening	50	2250	141
nanotube	4	6	13	53	capacitive	6.5MHz/2V	hardening	50	2650	142
nanotube	28	31	33	1.6	capacitive	3.5MHz/0.3V	hardening	40	64	143
nanotube	.	121	125	3.2	capacitive	6MHz/0.16V	hardening	30	96	144
nanotube	120	250	350	49	capacitive	100MHz/2.2V	hardening	20	980	139

## B. MODELE DE L'INDENTATION PAR POINTE EN $1/\sqrt{r}$

Lorsque la pointe est arrondie, il est possible de définir la force appliquée au centre de la pointe, comme précédemment vue dans le chapitre 2. Dans cette partie, nous allons nous intéresser à la déformation engendrée le long de la membrane selon la référence <sup>74</sup>. Cette déformation suit une loi en  $1/\sqrt{r}$  dès lors que nous nous éloignons de quelques dizaines de nanomètre du centre de la pointe.



Ce second modèle décrit la déformation le long de la membrane et loin de la pointe. (Petite déformation,  $u(r > r_{\text{tip}}) \sim 0$ ). Dans ce modèle, la pointe est arrondie à l'apex avec un rayon de courbure.  $u$  le déplacement radial et  $w$  le déplacement transversal  $w(r = 0) \sim \delta$ . Le déplacement radial est dominé par la précontrainte  $u = \varepsilon_0 r$

$$\varepsilon = \frac{du}{dr} + \frac{1}{2} \cdot \left( \frac{dw}{dr} \right)^2 \approx \frac{1}{2} \cdot \left( \frac{dw}{dr} \right)^2$$

Si nous définissons le paramètre AA comme ;

$$AA = \frac{2}{3\pi} \cdot \frac{\left( \sqrt{9\pi^4 \cdot \left( \frac{F}{Etr_{\text{tip}2}} \right)^2 + 64\pi^6 \cdot \varepsilon_0^3 + 3\pi^2 \cdot \frac{F}{Etr_{\text{tip}2}}} \right)^{\frac{2}{3}} - 4\pi^2 \cdot \varepsilon_0}{\left( \sqrt{9\pi^4 \cdot \left( \frac{F}{Etr_{\text{tip}2}} \right)^2 + 64\pi^6 \cdot \varepsilon_0^3 + 3\pi^2 \cdot \frac{F}{Etr_{\text{tip}2}}} \right)^{\frac{1}{3}}}$$

Pour une précontrainte nulle, AA se simplifie comme

$$AA = \left( \frac{16}{9\pi} \cdot \frac{F}{Etr_{tip2}} \right)^{\frac{1}{3}}$$

Nous pouvons décrire  $w$  comme ;

$$w = AA \cdot r_{tip} \cdot \left( \left( \frac{R}{r_{tip2}} \right)^{\frac{3}{4}} - \left( \frac{r}{r_{tip2}} \right)^{\frac{3}{4}} \right)$$

De  $w$ , on déduit la déformation  $\varepsilon$  le long de la membrane. Une bonne approximation de la fonction est une fonction  $\varepsilon(r) \propto 1/\sqrt{r}$ . Cette description semble exacte et décrit bien la déformation dans la membrane pour une distance supérieure à 40nm du centre.

### **Déformation au centre de la zone de contact**

Au contraire, au centre, il s'écarte des valeurs réalistes. Pour les petites déformations, dans la référence<sup>74</sup>, les auteurs donnent explicitement une formule pour la déformation au centre ;

$$\varepsilon(r = 0) \approx \frac{1}{6} \sqrt{\left( \frac{3}{2\pi} \right) \left( \frac{F}{Etr_{tip2}} + 6\pi\varepsilon_0^2 \right)} - \frac{1}{2} \varepsilon_0$$

Pour une valeur négligeable de  $\varepsilon_0$  nous obtenons ;

$$\varepsilon(r = 0) \approx \frac{1}{\sqrt{6}} \sqrt{\frac{F}{4\pi Etr_{tip2}}}$$

Cette valeur a un facteur  $\sqrt{6} \sim 2.5$  avec la déformation maximale obtenue dans le cas du modèle de type Schwerin et du modèle de déformation décrit ci-dessous pour un petit  $r$ .

### **Déformation dans la zone de contact et la partie suspendue près de la pointe**

Les modèles<sup>184</sup> et<sup>185</sup> sont utilisés dans la région de contact, où la membrane est en contact avec la pointe à n'importe quelle position  $r < r_{contact}$

$$r_{contact} = r_{tip} \cdot \sqrt{\sqrt{\frac{3}{2\pi} \cdot \frac{F}{Etr_{tip2}} + 6\pi\varepsilon_0^2} - 3\varepsilon_0}$$

La contrainte au niveau du contact est

$$N_c = \frac{F \cdot r_{tip2}}{2\pi \cdot r_{contact}^2}$$

Les déflexions  $u$ ,  $w$  et la déformation  $\varepsilon$  le long de la membrane sont définies par

$$u = r \cdot \left( (1 - \nu) \frac{N_c}{Et} + \frac{(1 - \nu)}{16} \cdot \frac{r_{contact}^2}{r_{tip2}^2} - \frac{(3 - \nu)}{16} \cdot \frac{r^2}{r_{tip2}^2} \right)$$

$$w = w_0 + \frac{r_{tip2}}{2} \cdot \left( \frac{r_{contact}^2}{r_{tip2}^2} - \frac{r^2}{r_{tip2}^2} \right)$$

$$\varepsilon = \frac{du}{dr} + \frac{1}{2} \cdot \left( \frac{dw}{dr} \right)^2$$

Nous obtenons la dépendance de la contrainte selon la Figure 13.

### C. LES ENERGIE EN JEU POUR UNE MEMBRANE 2D SOUMISE A UNE FORCE CAPACITIVE ET POSITION D'EQUILIBRE ET LA FREQUENCE DE RESONANCE

L'énergie élastique  $U_{el}$  est la somme de l'énergie de flexion  $U_b$  et de l'énergie potentielle  $U_T$  provenant de sa tension. Le terme  $U_b$  reste négligeable car il n'y a pas de rigidité de flexion de la membrane mais nous allons y revenir plus tard. Nous considérons l'énergie de déformation par unité de volume, définie comme suit <sup>75,216,217</sup>;

$$dU_{el} \approx dU_T = 1/2 \int \sigma \cdot \varepsilon dV = 1/2 \int \sigma \cdot \varepsilon r dr d\theta \quad (4)$$

La géométrie en forme de tambour possède une symétrie centrale. Nous considérons  $w$  la déviation latérale,  $u$  le déplacement radial et  $\varepsilon_{r,\theta}$  la déformation radiale et angulaire et nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned}\varepsilon_{rr}(r)dr &= \varepsilon_r(r)dr = \frac{\partial u}{\partial r} \cdot dr + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^2 \cdot dr \text{ et } \varepsilon_{\theta\theta}(r) = \varepsilon_\theta \\ &= \frac{u}{r} \text{ and } \varepsilon_{r\theta} = 0\end{aligned}\quad (5)$$

Ici,  $\partial u/\partial r$  est l'allongement radial. Dans notre cas, nous remplaçons ce terme par les termes de déformation-contrainte radiale initiale  $\varepsilon_0$ - $\sigma_0$  qui sont considérés comme uniforme le long de l'échantillon.  $2\pi R \cdot \varepsilon_0 = \iint \varepsilon_0 r dr d\theta$ . D'après la loi de Hooke, si la déformation tangentielle est supposée égale à 0, on a  $\sigma_r - \sigma_0 = \frac{Et}{(1-\nu^2)} \varepsilon_r$  avec  $\nu$  le coefficient de Poisson et E le module d'Young. Finalement, cela donne

$$U_{el} = \frac{1}{2} \frac{Et}{(1-\nu^2)} \int_0^{2\pi} \int_0^R \left( \varepsilon_0 + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^2 \right)^2 r dr d\theta \quad (6)$$

En d'autres termes ;

$$U_{el} = \frac{2\pi Et z^4}{3(1-\nu^2)R^2} + \frac{\pi E \varepsilon_0 t z^2}{(1-\nu^2)} + \frac{\pi Et \varepsilon_0^2 R^2}{2(1-\nu^2)} \quad (7)$$

$$U_{el} = \frac{\pi Et}{(1-\nu^2)} \cdot \left( \frac{2z^4}{3 \cdot R^2} + \varepsilon_0 z^2 + \frac{\varepsilon_0^2 R^2}{2} \right) \quad (8)$$

$$U_{el} = \frac{\pi Et}{(1-\nu^2)} \cdot z^2 \left( \frac{2z^2}{3 \cdot R^2} + \varepsilon_0 \right) + \frac{\pi Et}{(1-\nu^2)} \cdot \frac{\varepsilon_0^2 R^2}{2} \quad (9)$$

Le deuxième terme est l'énergie initiale  $U_{init}$  résultant de la contrainte initiale ;  $U_{init} = 1/2 \int \sigma_0 \varepsilon_0 r dr d\theta$ .

Si l'on définit la contrainte total T pour un petit angle  $d\theta$  appliqué à la membrane comme la somme des contraintes initiaux et de la contrainte due à la déflexion de la membrane pour le même angle, on a ;<sup>75</sup>



$$T(z) = T_0 + T_D(z) = T_0 + \varepsilon_D(z) \frac{Et}{(1-\nu^2)} \quad (10)$$

$$T(z) = T_0 + \frac{Et}{(1-\nu^2)} \frac{1}{R} \int_0^R \frac{1}{2} \cdot \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^2 dr = T_0 + \frac{2}{3} \frac{Et}{(1-\nu^2)} \frac{z^2}{R^2} \quad (11)$$

Si on intègre T sur tous les angles  $\int_0^{2\pi} d\theta$ , et multiplie par  $z^2.t/2$ , On retrouve le premier terme dans  $U_{el}$ , c'est à dire ;

$$U_{el} = \frac{1}{2} \cdot z^2 \cdot 2\pi \cdot T(z) \cdot + U_{init} \quad (12)$$

Cette notation sera importante pour la description dynamique de notre membrane.

Nous notons également que, avec une notation similaire et une symétrie centrale, l'énergie de flexion est définie comme suit <sup>76</sup>;

$$U_B = \frac{1}{24} \frac{Et^3}{(1-\nu^2)} \int_0^{2\pi} \int_0^R \left( \frac{\partial^2 w}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 w}{\partial \theta^2} \right)^2 r dr d\theta \quad (13)$$

Il est également intéressant de décrire l'énergie électrostatique ( $U_C = 1/2 C_g V_g^2$ ) et de développer le terme de capacité pour les petites déviations tel que  $C_g = C_0 + C'z + C''z^2/2$  où  $C' = dC_g/dz$  et  $C'' = d^2C_g/dz^2$ . Alors la force électrostatique est

$$\begin{aligned} U_C &= \frac{1}{2} C_0 V_g^2 + \frac{1}{2} C' z V_g^2 + \frac{1}{4} C'' z^2 V_g^2 = \frac{1}{2} V_g^2 \cdot \epsilon_0 \cdot \iint \left( \frac{1}{d^1} + \frac{w}{d^2} + \frac{w^2}{d^3} \right) r dr d\theta \\ &= \frac{1}{2} \left( \frac{\epsilon_0 \pi R^2}{d^1} \right) V_g^2 + \frac{1}{2} \left( \frac{\epsilon_0 \pi R^2}{2d^2} \right) z V_g^2 + \frac{1}{4} \left( \frac{\epsilon_0 2\pi R^2}{3d^3} \right) z^2 V_g^2 \end{aligned} \quad (14)$$

Nous pouvons remarquer le signe moins apparaissant dans la force résultante  $F_C = dU_C/dz = -1/2 dC_g/dz V_g^2$  car nous devons appliquer une tension fixe  $V_g$  avec une batterie externe <sup>218,219</sup> et nous devons considérer le travail virtuel effectué sur la source

de charge  $U_b = -C_g V_g^2$  quand on décrit l'énergie stockée dans le condensateur. On peut aussi déduire, par dérivation, l'énergie, travaillant à charge constante,  $U_C = 1/2 q^2 / C_g$ .

La position d'équilibre  $z$  est définie par le minimum d'énergie avec  $\partial(U_{el} + U_C) / \partial z = 0$ .

$$\frac{8\pi E t}{3(1-\nu^2)R^2} z^3 + \left( \frac{2\pi E \varepsilon_0 t}{(1-\nu^2)} - \frac{1}{2} C'' V_g^2 \right) z - \frac{1}{2} C' V_g^2 = 0 \quad (15)$$

C'est une équation polynomiale de la forme  $z^3 + az + b = 0$  avec des solutions définies par la méthode de Cardan ;

$$z = \left( (-b - \sqrt{\Delta}) / 2 \right)^{1/3} + \left( (-b + \sqrt{\Delta}) / 2 \right)^{1/3} \text{ et avec } \Delta = b^2 + 4a^3 / 27 \quad (16)$$

Cette relation définit une relation entre  $z$  et  $V_g$ . Elle est valable dans un régime où la force capacitive  $V_g$  n'est pas négligeable ( $V_g$  élevé) ou lorsque cette déformation initiale a elle-même induit une certaine déflexion. A faible  $V_g$  et pour une déformation dans le plan  $\varepsilon_r = \partial u / \partial r$ , on est dans un régime sans déflexion ( $w=z=0$ ) et  $U_{el} = \pi E t \varepsilon_0 R^2 / 2(1-\nu^2)$ .

### Fréquence de résonance

Lors de la vibration de cette membrane, la fréquence d'oscillation  $f_0$  peut à nouveau être décrite par un oscillateur harmonique avec une constante de ressort  $k$  et une masse effective  $m$  ;

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m_{eff}}} \quad (17)$$

La constante de raideur est définie par  $k = \partial^2(U_{el} + U_C)/\partial z^2$ , On peut dériver la constante de raideur si on prend l'équation 10 et 13;

$$U_{el} = \frac{1}{2} \cdot z^2 \cdot 2\pi \cdot T(z) + U_{init} \quad (18)$$

Cela donne  $k = T_0 + \frac{12}{3} \frac{Et}{(1-\nu^2)} \frac{z^2}{R^2} - \frac{1}{2} C'' V_g^2 = T_2$  avec une tension renormalisée  $T_2$ , par rapport à  $T$ , qui prend en compte la dépendance  $z$  de  $T$  et le terme de ramollissement capacitif. Nous pouvons écrire la fréquence de résonance du mode fondamental comme suit

$$f_0 = \frac{2.405}{2\pi R} \sqrt{\frac{T_2}{\rho}} \quad (19)$$

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{2.405^2 \left( T_0 + \frac{12}{3} \frac{E}{(1-\nu^2)} \frac{z^2}{R^2} \right)}{R^2 \rho} - \frac{\epsilon_0 V_g^2}{0,271 \times 3 \cdot d^3 \cdot \rho}} \quad (20)$$

Si nous intégrons dans cette équation, la flexion de la membrane, définie dans l'équation 11, nous obtenons une expression comme ;

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{2.405^4 \frac{Et^3}{12(1-\nu^2)R^4\rho} + 2.405^2 \frac{T_0}{R^2\rho} + 2.405^2 \frac{12}{3} \frac{Et}{(1-\nu^2)} \frac{z^2}{R^4\rho} - 1.23 \frac{\epsilon_0 V_g^2}{d^3\rho}} \quad (21)$$

Avec  $z$  définie par l'équation 14.

## 7. BIBLIOGRAPHIE

---

1. Geim, A. K. & Novoselov, K. S. The rise of graphene. *Nat. Mater.* **6**, 183–191 (2007).
2. Geim, A. K. Graphene prehistory. *Phys. Scr.* **2012**, 014003 (2012).
3. Sebastian, A., Pendurthi, R., Choudhury, T. H., Redwing, J. M. & Das, S. Benchmarking monolayer MoS<sub>2</sub> and WS<sub>2</sub> field-effect transistors. *Nat. Commun.* **12**, 693 (2021).
4. Asselberghs, I. *et al.* Wafer-scale integration of double gated WS<sub>2</sub>-transistors in 300mm Si CMOS fab. in *2020 IEEE International Electron Devices Meeting (IEDM)* 40.2.1-40.2.4 (2020).  
doi:10.1109/IEDM13553.2020.9371926.
5. Sarkar, D. *et al.* A subthermionic tunnel field-effect transistor with an atomically thin channel. *Nature* **526**, 91–95 (2015).
6. Sangwan, V. K. *et al.* Gate-tunable memristive phenomena mediated by grain boundaries in single-layer MoS<sub>2</sub>. *Nat. Nanotechnol.* **10**, 403–406 (2015).
7. Chaste, J. *et al.* Phase Transition in a Memristive Suspended MoS<sub>2</sub> Monolayer Probed by Opto- and Electro-Mechanics. *ACS Nano* **14**, 13611–13618 (2020).
8. Kim, M. *et al.* Analogue switches made from boron nitride monolayers for application in 5G and terahertz communication systems. *Nat. Electron.* **3**, 479–485 (2020).
9. Yoon, H. H. *et al.* Miniaturized spectrometers with a tunable van der Waals junction. *Science* **378**, 296–299 (2022).
10. Joshi, R. K. *et al.* Precise and Ultrafast Molecular Sieving Through Graphene Oxide Membranes. *Science* **343**, 752–754 (2014).
11. Wang, Z. *et al.* Evidence of high-temperature exciton condensation in two-dimensional atomic double layers. *Nature* **574**, 76–80 (2019).
12. Cepellotti, A. *et al.* Phonon hydrodynamics in two-dimensional materials. *Nat. Commun.* **6**, 6400 (2015).

13. Huberman, S. *et al.* Observation of second sound in graphite at temperatures above 100 K. *Science* **364**, 375–379 (2019).
14. Cao, Y. *et al.* Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices. *Nature* **556**, 43–50 (2018).
15. Castellanos-Gomez, A. *et al.* Local Strain Engineering in Atomically Thin MoS<sub>2</sub>. *Nano Lett.* **13**, 5361–5366 (2013).
16. Li, H. *et al.* Optoelectronic crystal of artificial atoms in strain-textured molybdenum disulphide. *Nat. Commun.* **6**, 7381 (2015).
17. Chaste, J. *et al.* Intrinsic Properties of Suspended MoS<sub>2</sub> on SiO<sub>2</sub>/Si Pillar Arrays for Nanomechanics and Optics. *ACS Nano* **12**, 3235–3242 (2018).
18. Iyengar, S. A. *et al.* A Researcher’s Perspective on Unconventional Lab-to-Fab for 2D Semiconductor Devices. *ACS Nano* (2023) doi:10.1021/acsnano.3c01927.
19. Xia, F., Wang, H., Xiao, D., Dubey, M. & Ramasubramaniam, A. Two-dimensional material nanophotonics. *Nat. Photonics* **8**, 899–907 (2014).
20. Deng, S., Sumant, A. V. & Berry, V. Strain engineering in two-dimensional nanomaterials beyond graphene. *Nano Today* **22**, 14–35 (2018).
21. Dai, Z., Liu, L. & Zhang, Z. Strain Engineering of 2D Materials: Issues and Opportunities at the Interface. *Adv. Mater.* **31**, 1805417 (2019).
22. Strain-tuning of the electronic, optical, and vibrational properties of two-dimensional crystals: Applied Physics Reviews: Vol 8, No 2. <https://aip-scitation-org.proxy.scd.u-psud.fr/doi/10.1063/5.0037852>.
23. Zhu, C. R. *et al.* Strain tuning of optical emission energy and polarization in monolayer and bilayer MoS<sub>2</sub>. *Phys. Rev. B* **88**, 121301 (2013).
24. Zeng, M. *et al.* Bandgap tuning of two-dimensional materials by sphere diameter engineering. *Nat. Mater.* **19**, 528–533 (2020).

25. Feng, J., Qian, X., Huang, C.-W. & Li, J. Strain-engineered artificial atom as a broad-spectrum solar energy funnel. *Nat. Photonics* **6**, 866–872 (2012).
26. Bertolazzi, S., Brivio, J. & Kis, A. Stretching and Breaking of Ultrathin MoS<sub>2</sub>. *ACS Nano* **5**, 9703–9709 (2011).
27. Strain Relaxation of Monolayer WS<sub>2</sub> on Plastic Substrate - Zhang - 2016 - Advanced Functional Materials - Wiley Online Library. <https://onlinelibrary-wiley-com.inp.bib.cnrs.fr/doi/10.1002/adfm.201603064>.
28. Branny, A., Kumar, S., Proux, R. & Gerardot, B. D. Deterministic strain-induced arrays of quantum emitters in a two-dimensional semiconductor. *Nat. Commun.* **8**, 15053 (2017).
29. Li, X. *et al.* Proximity-induced chiral quantum light generation in strain-engineered WSe<sub>2</sub>/NiPS<sub>3</sub> heterostructures. *Nat. Mater.* **22**, 1311–1316 (2023).
30. Lee, C., Wei, X., Kysar, J. W. & Hone, J. Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene. *Science* **321**, 385–388 (2008).
31. Bhaskar, U. *et al.* On-chip tensile testing of nanoscale silicon free-standing beams. *J. Mater. Res.* **27**, 571–579 (2012).
32. Liu, K. *et al.* Elastic Properties of Chemical-Vapor-Deposited Monolayer MoS<sub>2</sub>, WS<sub>2</sub>, and Their Bilayer Heterostructures. *Nano Lett.* **14**, 5097–5103 (2014).
33. Lee, G.-H. *et al.* High-Strength Chemical-Vapor-Deposited Graphene and Grain Boundaries. *Science* **340**, 1073–1076 (2013).
34. Zhang, R., Koutsos, V. & Cheung, R. Elastic properties of suspended multilayer WSe<sub>2</sub>. *Appl. Phys. Lett.* **108**, 042104 (2016).
35. Harats, M. G., Kirchhof, J. N., Qiao, M., Greben, K. & Bolotin, K. I. Dynamics and efficient conversion of excitons to trions in non-uniformly strained monolayer WS<sub>2</sub>. *Nat. Photonics* **14**, 324–329 (2020).
36. Wei, T.-R. *et al.* Exceptional plasticity in the bulk single-crystalline van der Waals semiconductor InSe. *Science* **369**, 542–545 (2020).

37. Graphene kirigami | Nature. <https://www.nature.com/articles/nature14588>.
38. Chen, C. *et al.* Performance of monolayer graphene nanomechanical resonators with electrical readout. *Nat. Nanotechnol.* **4**, 861–867 (2009).
39. Blaikie, A., Miller, D. & Alemán, B. J. A fast and sensitive room-temperature graphene nanomechanical bolometer. *Nat. Commun.* **10**, 4726 (2019).
40. Morell, N. *et al.* High Quality Factor Mechanical Resonators Based on WSe<sub>2</sub> Monolayers. *Nano Lett.* **16**, 5102–5108 (2016).
41. Chaste, J. *et al.* Nanostructures in suspended mono- and bilayer epitaxial graphene. *Carbon* **125**, 162–167 (2017).
42. Kang, K. *et al.* Layer-by-layer assembly of two-dimensional materials into wafer-scale heterostructures. *Nature* **550**, 229–233 (2017).
43. Chaste, J. *et al.* A nanomechanical mass sensor with yoctogram resolution. *Nat. Nanotechnol.* **7**, 301–304 (2012).
44. Weber, P., Güttinger, J., Noury, A., Vergara-Cruz, J. & Bachtold, A. Force sensitivity of multilayer graphene optomechanical devices. *Nat. Commun.* **7**, 12496 (2016).
45. Moser, J. *et al.* Ultrasensitive force detection with a nanotube mechanical resonator. *Nat. Nanotechnol.* **8**, 493–496 (2013).
46. Kumar, M. & Bhaskaran, H. Ultrasensitive Room-Temperature Piezoresistive Transduction in Graphene-Based Nanoelectromechanical Systems. *Nano Lett.* **15**, 2562–2567 (2015).
47. Lemme, M. C. *et al.* Nanoelectromechanical Sensors Based on Suspended 2D Materials. *Research* **2020**, (2020).
48. Morell, N. *et al.* Optomechanical Measurement of Thermal Transport in Two-Dimensional MoSe<sub>2</sub> Lattices. *Nano Lett.* **19**, 3143–3150 (2019).
49. Šiškins, M. *et al.* Magnetic and electronic phase transitions probed by nanomechanical resonators. *Nat. Commun.* **11**, 2698 (2020).

50. Qian, X., Zhou, J. & Chen, G. Phonon-engineered extreme thermal conductivity materials. *Nat. Mater.* **20**, 1188–1202 (2021).
51. Zhang, Z.-Z. *et al.* Coherent phonon dynamics in spatially separated graphene mechanical resonators. *Proc. Natl. Acad. Sci.* **117**, 5582–5587 (2020).
52. Will, M. *et al.* High Quality Factor Graphene-Based Two-Dimensional Heterostructure Mechanical Resonator. *Nano Lett.* **17**, 5950–5955 (2017).
53. Morell, N. *et al.* High Quality Factor Mechanical Resonators Based on WSe<sub>2</sub> Monolayers. *Nano Lett.* **16**, 5102–5108 (2016).
54. Liu, C.-H., Kim, I. S. & Lauhon, L. J. Optical Control of Mechanical Mode-Coupling within a MoS<sub>2</sub> Resonator in the Strong-Coupling Regime. *Nano Lett.* **15**, 6727–6731 (2015).
55. Li, S.-X. *et al.* Parametric strong mode-coupling in carbon nanotube mechanical resonators. *Nanoscale* **8**, 14809–14813 (2016).
56. Šiškins, M. *et al.* Tunable Strong Coupling of Mechanical Resonance between Spatially Separated FePS<sub>3</sub> Nanodrums. *Nano Lett.* **22**, 36–42 (2022).
57. Kirchhof, J. N. *et al.* Tunable Graphene Phononic Crystal. *Nano Lett.* **21**, 2174–2182 (2021).
58. Alegre, T. P. M., Safavi-Naeini, A., Winger, M. & Painter, O. Quasi-two-dimensional optomechanical crystals with a complete phononic bandgap. *Opt. Express* **19**, 5658–5669 (2011).
59. MacCabe, G. S. *et al.* Nano-acoustic resonator with ultralong phonon lifetime. *Science* **370**, 840–843 (2020).
60. Fedorov, S. A. *et al.* Generalized dissipation dilution in strained mechanical resonators. *Phys. Rev. B* **99**, 054107 (2019).
61. Hatanaka, D., Mahboob, I., Onomitsu, K. & Yamaguchi, H. Phonon waveguides for electromechanical circuits. *Nat. Nanotechnol.* **9**, 520–524 (2014).
62. Mohiuddin, T. M. G. *et al.* Uniaxial strain in graphene by Raman spectroscopy: G peak splitting, Grüneisen parameters, and sample orientation. *Phys. Rev. B* **79**, 205433 (2009).



63. Ryu, Y. K. *et al.* Microheater Actuators as a Versatile Platform for Strain Engineering in 2D Materials. *Nano Lett.* **20**, 5339–5345 (2020).
64. Hernández López, P. *et al.* Strain control of hybridization between dark and localized excitons in a 2D semiconductor. *Nat. Commun.* **13**, 7691 (2022).
65. Perez Garza, H., Kievit, E., Schneider, G. & Staufer, U. Controlled, reversible, and nondestructive generation of uniaxial extreme strains (>10%) in graphene. *Nano Lett. J. Dedic. Nanosci. Nanotechnol.* **14**, 4107–4113 (2014).
66. Chaste, J. *et al.* Nanomechanical Strain Concentration on a Two-Dimensional Nanobridge within a Large Suspended Bilayer Graphene for Molecular Mass Detection. *ACS Appl. Nano Mater.* **1**, 6752–6759 (2018).
67. Shi, B.-B., Sun, J.-Y., Huang, T.-K. & He, X.-T. Closed-Form Solution for Circular Membranes under In-Plane Radial Stretching or Compressing and Out-of-Plane Gas Pressure Loading. *Mathematics* **9**, 1238 (2021).
68. Schwerin, E. Über Spannungen und Formänderungen kreisringförmiger Membranen. *ZAMM - J. Appl. Math. Mech. Z. Für Angew. Math. Mech.* **9**, 482–483 (1929).
69. Bertolazzi, S., Brivio, J. & Kis, A. Stretching and Breaking of Ultrathin MoS<sub>2</sub>. *ACS Nano* **5**, 9703–9709 (2011).
70. Annamalai, M., Mathew, S., Jamali, M., Zhan, D. & Palaniapan, M. Elastic and nonlinear response of nanomechanical graphene devices. *J. Micromechanics Microengineering* **22**, 105024 (2012).
71. Zhang, R., Koutsos, V. & Cheung, R. Elastic properties of suspended multilayer WSe<sub>2</sub>. *Appl. Phys. Lett.* **108**, 042104 (2016).
72. Vella, D. & Davidovitch, B. Indentation metrology of clamped, ultra-thin elastic sheets. *Soft Matter* **13**, 2264–2278 (2017).
73. Moon, H. *et al.* Dynamic Exciton Funneling by Local Strain Control in a Monolayer Semiconductor. *Nano Lett.* **20**, 6791–6797 (2020).

74. Begley, M. R. & Mackin, T. J. Spherical indentation of freestanding circular thin films in the membrane regime. *J. Mech. Phys. Solids* **52**, 2005–2023 (2004).
75. Schomburg, W. K. *Introduction to Microsystem Design*. (Springer-Verlag, 2011).
76. Jr, W. W., Timoshenko, S. P. & Young, D. H. *Vibration Problems in Engineering*. (John Wiley & Sons, 1990).
77. Asmar, N. H. *Partial Differential Equations with Fourier Series and Boundary Value Problems: Third Edition*. (Courier Dover Publications, 2017).
78. Storch, I. R. *Temperature-dependent Mechanics in Suspended Graphene Systems*. (2015).
79. Chaste, J. *et al.* Intrinsic properties of suspended MoS<sub>2</sub> on SiO<sub>2</sub>/Si pillar arrays for nanomechanics and optics. *ACS Nano* **12**, 3235–3242 (2018).
80. Zanette, D. H. Energy exchange between coupled mechanical oscillators: linear regimes. *J. Phys. Commun.* **2**, 095015 (2018).
81. Šiškins, M. *et al.* Tunable Strong Coupling of Mechanical Resonance between Spatially Separated FePS<sub>3</sub> Nanodrums. *Nano Lett.* **22**, 36–42 (2022).
82. Okamoto, H. *et al.* Coherent phonon manipulation in coupled mechanical resonators. *Nat. Phys.* **9**, 480–484 (2013).
83. Chiout, A. *et al.* Multi-order phononic frequency comb generation within a MoS<sub>2</sub> electromechanical resonator. *Appl. Phys. Lett.* **119**, 173102 (2021).
84. Novoselov, K. S. *et al.* Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films. *Science* **306**, 666–669 (2004).
85. Castellanos-Gomez, A. *et al.* Deterministic transfer of two-dimensional materials by all-dry viscoelastic stamping. *2D Mater.* **1**, 011002 (2014).
86. Grubišić-Čabo, A. *et al.* In-situ exfoliation method of large-area 2D materials. Preprint at <http://arxiv.org/abs/2209.15030> (2022).

87. Kim, J., Ju, X., Ang, K.-W. & Chi, D. Van der Waals Layer Transfer of 2D Materials for Monolithic 3D Electronic System Integration: Review and Outlook. *ACS Nano* (2023) doi:10.1021/acsnano.2c10737.
88. Pizzocchero, F. *et al.* The hot pick-up technique for batch assembly of van der Waals heterostructures. *Nat. Commun.* **7**, (2016).
89. Iwasaki, T. *et al.* Bubble-Free Transfer Technique for High-Quality Graphene/Hexagonal Boron Nitride van der Waals Heterostructures. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 8533–8538 (2020).
90. Castellanos-Gomez, A. *et al.* Deterministic transfer of two-dimensional materials by all-dry viscoelastic stamping. *2D Mater.* **1**, 011002 (2014).
91. Toyoda, S., Uwanno, T., Taniguchi, T., Watanabe, K. & Nagashio, K. Pinpoint pick-up and bubble-free assembly of 2D materials using PDMS/PMMA polymers with lens shapes. *Appl. Phys. Express* **12**, 055008 (2019).
92. Wang, P. *et al.* High-Fidelity Transfer of Chemical Vapor Deposition Grown 2D Transition Metal Dichalcogenides via Substrate Decoupling and Polymer/Small Molecule Composite. *ACS Nano* **14**, 7370–7379 (2020).
93. Yang, Y. *et al.* In situ manipulation of van der Waals heterostructures for twistronics. *Sci. Adv.* **6**, eabd3655 (2020).
94. Chaste, J. *et al.* Intrinsic Properties of Suspended MoS<sub>2</sub> on SiO<sub>2</sub>/Si Pillar Arrays for Nanomechanics and Optics. *ACS Nano* **12**, 3235–3242 (2018).
95. Chaste, J. *et al.* Phase Transition in a Memristive Suspended MoS<sub>2</sub> Monolayer Probed by Opto- and Electro-Mechanics. *ACS Nano* **14**, 13611–13618 (2020).
96. Kim, K. *et al.* van der Waals Heterostructures with High Accuracy Rotational Alignment. *Nano Lett.* **16**, 1989–1995 (2016).
97. Frisenda, R. *et al.* Recent progress in the assembly of nanodevices and van der Waals heterostructures by deterministic placement of 2D materials. *Chem. Soc. Rev.* **47**, 53–68 (2018).

98. Ma, X. *et al.* Capillary-Force-Assisted Clean-Stamp Transfer of Two-Dimensional Materials. *Nano Lett.* **17**, 6961–6967 (2017).
99. Wang, Z. & Feng, P. X.-L. Interferometric Motion Detection in Atomic Layer 2D Nanostructures: Visualizing Signal Transduction Efficiency and Optimization Pathways. *Sci. Rep.* **6**, 28923 (2016).
100. Blake, P. *et al.* Making graphene visible. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 063124 (2007).
101. Hsu, C. *et al.* Thickness-Dependent Refractive Index of 1L, 2L, and 3L MoS<sub>2</sub>, MoSe<sub>2</sub>, WS<sub>2</sub>, and WSe<sub>2</sub>. *Adv. Opt. Mater.* **7**, 1900239 (2019).
102. Duan, X. *et al.* Synthesis of WS<sub>2</sub>xSe<sub>2</sub>–2x Alloy Nanosheets with Composition-Tunable Electronic Properties. *Nano Lett.* **16**, 264–269 (2016).
103. Chiout, A. *et al.* Extreme mechanical tunability in suspended MoS<sub>2</sub> resonator controlled by Joule heating. *Npj 2D Mater. Appl.* **7**, 1–8 (2023).
104. Ye, F., Lee, J. & Feng, P. X.-L. Electrothermally Tunable Graphene Resonators Operating at Very High Temperature up to 1200 K. *Nano Lett.* **18**, 1678–1685 (2018).
105. Barton, R. A. *et al.* Photothermal Self-Oscillation and Laser Cooling of Graphene Optomechanical Systems. *Nano Lett.* **12**, 4681–4686 (2012).
106. Guan, F., Kumaravadivel, P., Averin, D. V. & Du, X. Tuning strain in flexible graphene nanoelectromechanical resonators. *Appl. Phys. Lett.* **107**, 193102 (2015).
107. Zhang, X. *et al.* Dynamically-enhanced strain in atomically thin resonators. *Nat. Commun.* **11**, 5526 (2020).
108. Energy-dependent path of dissipation in nanomechanical resonators | Nature Nanotechnology. <https://www-nature-com.inp.bib.cnrs.fr/articles/nnano.2017.86>.
109. Luo, G. *et al.* Strong indirect coupling between graphene-based mechanical resonators via a phonon cavity. *Nat. Commun.* **9**, 383 (2018).
110. Weber, P., Güttinger, J., Tsioutsios, I., Chang, D. E. & Bachtold, A. Coupling Graphene Mechanical Resonators to Superconducting Microwave Cavities. *Nano Lett.* **14**, 2854–2860 (2014).

111. Davidovikj, D., Poot, M., Cartamil-Bueno, S. J., van der Zant, H. S. J. & Steeneken, P. G. On-chip Heaters for Tension Tuning of Graphene Nanodrums. *Nano Lett.* **18**, 2852–2858 (2018).
112. Parmar, M. M., Gangavarapu, P. R. Y. & Naik, A. K. Dynamic range tuning of graphene nanoresonators. *Appl. Phys. Lett.* **107**, 113108 (2015).
113. Singh, V. *et al.* Probing thermal expansion of graphene and modal dispersion at low-temperature using graphene nanoelectromechanical systems resonators. *Nanotechnology* **21**, 165204 (2010).
114. Ye, F., Lee, J. & Feng, P. X.-L. Very-wide electrothermal tuning of graphene nanoelectromechanical resonators. in *2017 IEEE 30th International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS)* 68–71 (2017). doi:10.1109/MEMSYS.2017.7863341.
115. Mathew, J. P., Patel, R. N., Borah, A., Vijay, R. & Deshmukh, M. M. Dynamical strong coupling and parametric amplification of mechanical modes of graphene drums. *Nat. Nanotechnol.* **11**, 747–751 (2016).
116. Lee, S. *et al.* Electrically integrated SU-8 clamped graphene drum resonators for strain engineering. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 153101 (2013).
117. Optomechanical coupling between a multilayer graphene mechanical resonator and a superconducting microwave cavity | Nature Nanotechnology.  
<https://www.nature.com/articles/nnano.2014.168>.
118. De Alba, R. *et al.* Tunable phonon-cavity coupling in graphene membranes. *Nat. Nanotechnol.* **11**, 741–746 (2016).
119. Chen, C. *et al.* Graphene mechanical oscillators with tunable frequency. *Nat. Nanotechnol.* **8**, 923–927 (2013).
120. Singh, R., Nicholl, R. J. T., Bolotin, K. I. & Ghosh, S. Motion Transduction with Thermomechanically Squeezed Graphene Resonator Modes. *Nano Lett.* **18**, 6719–6724 (2018).
121. Luo, G. *et al.* Coupling graphene nanomechanical motion to a single-electron transistor. *Nanoscale* **9**, 5608–5614 (2017).

122. Xu, Y. *et al.* Radio frequency electrical transduction of graphene mechanical resonators. *Appl. Phys. Lett.* **97**, 243111 (2010).
123. Miao, T., Yeom, S., Wang, P., Standley, B. & Bockrath, M. Graphene Nanoelectromechanical Systems as Stochastic-Frequency Oscillators. *Nano Lett.* **14**, 2982–2987 (2014).
124. Jung, M. *et al.* GHz nanomechanical resonator in an ultraclean suspended graphene p–n junction. *Nanoscale* **11**, 4355–4361 (2019).
125. Descombin, A. *et al.* Giant, Voltage Tuned, Quality Factors of Single Wall Carbon Nanotubes and Graphene at Room Temperature. *Nano Lett.* **19**, 1534–1538 (2019).
126. Eichler, A. *et al.* Nonlinear damping in mechanical resonators made from carbon nanotubes and graphene. *Nat. Nanotechnol.* **6**, 339–342 (2011).
127. Song, X. *et al.* Stamp Transferred Suspended Graphene Mechanical Resonators for Radio Frequency Electrical Readout. *Nano Lett.* **12**, 198–202 (2012).
128. Kumar, R. Circular electromechanical resonators based on hexagonal-boron nitride-graphene heterostructures. *Appl Phys Lett* **117**, 183103 (2020).
129. Ye, F., Islam, A., Zhang, T. & Feng, P. X.-L. Ultrawide Frequency Tuning of Atomic Layer van der Waals Heterostructure Electromechanical Resonators. *Nano Lett.* (2021)  
doi:10.1021/acs.nanolett.1c00610.
130. Prasad, P., Arora, N. & Naik, A. K. Parametric amplification in MoS<sub>2</sub> drum resonator. *Nanoscale* **9**, 18299–18304 (2017).
131. Šiškins, M. Nanomechanical probing and strain tuning of the Curie temperature in suspended Cr<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>Te<sub>6</sub> heterostructures. (2021).
132. Kim, S., Yu, J. & Zande, A. M. Nano-electromechanical Drumhead Resonators from Two-Dimensional Material Bimorphs. *Nano Lett* **18**, 6686–6695 (2018).
133. Will, M. High Quality Factor Graphene-Based Two-Dimensional Heterostructure Mechanical Resonator. *Nano Lett* **17**, 5950–5955 (2017).

134. Xie, H. Tunable Exciton-Optomechanical Coupling in Suspended Monolayer MoSe<sub>2</sub>. *Nano Lett* **21**, 2538–2543 (2021).
135. Lee, J. *et al.* Electrically tunable single- and few-layer MoS<sub>2</sub> nanoelectromechanical systems with broad dynamic range. *Sci. Adv.* **4**, eaao6653 (2018).
136. Sengupta, S., Solanki, H. S., Singh, V., Dhara, S. & Deshmukh, M. M. Electromechanical resonators as probes of the charge density wave transition at the nanoscale in NbSe<sub>2</sub>. *Phys Rev B* **82**, 155432 (2010).
137. Kramer, E., Dorp, J., Leeuwen, R. & Venstra, W. J. Strain-dependent damping in nanomechanical resonators from thin MoS<sub>2</sub> crystals. *Appl Phys Lett* **107**, 091903 (2015).
138. Morell, N. *et al.* Optomechanical Measurement of Thermal Transport in Two-Dimensional MoSe<sub>2</sub> Lattices. *Nano Lett.* **19**, 3143–3150 (2019).
139. Steele, G. A. *et al.* Strong Coupling Between Single-Electron Tunneling and Nanomechanical Motion. *Science* (2009).
140. Benyamini, A., Hamo, A., Kusminskiy, S. V., von Oppen, F. & Ilani, S. Real-space tailoring of the electron–phonon coupling in ultraclean nanotube mechanical resonators. *Nat. Phys.* **10**, 151–156 (2014).
141. Eichler, A., Ruiz, M. del Á., Plaza, J. A. & Bachtold, A. Strong coupling between mechanical modes in a nanotube resonator. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 025503 (2012).
142. Sazonova, V. *et al.* A tunable carbon nanotube electromechanical oscillator. *Nature* **431**, 284–287 (2004).
143. de Bonis, S. L. *et al.* Ultrasensitive Displacement Noise Measurement of Carbon Nanotube Mechanical Resonators. *Nano Lett.* **18**, 5324–5328 (2018).
144. Deng, G.-W. *et al.* Strongly Coupled Nanotube Electromechanical Resonators. *Nano Lett.* **16**, 5456–5462 (2016).
145. Wen, Y. *et al.* A coherent nanomechanical oscillator driven by single-electron tunnelling. *Nat. Phys.* **16**, 75–82 (2020).

146. Mak, K. F., Lee, C., Hone, J., Shan, J. & Heinz, T. F. Atomically Thin MoS<sub>2</sub>: A New Direct-Gap Semiconductor. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 136805 (2010).
147. Kuc, A., Zibouche, N. & Heine, T. Influence of quantum confinement on the electronic structure of the transition metal sulfide TS<sub>2</sub>. *Phys. Rev. B* **83**, 245213 (2011).
148. Kumar, R. *et al.* Circular electromechanical resonators based on hexagonal-boron nitride-graphene heterostructures. *Appl. Phys. Lett.* **117**, 183103 (2020).
149. Ye, F., Islam, A., Zhang, T. & Feng, P. X.-L. Ultrawide Frequency Tuning of Atomic Layer van der Waals Heterostructure Electromechanical Resonators. *Nano Lett.* **21**, 5508–5515 (2021).
150. Prasad, P., Arora, N. & Naik, A. K. Parametric amplification in MoS<sub>2</sub> drum resonator. *Nanoscale* **9**, 18299–18304 (2017).
151. Šiškins, M. *et al.* Nanomechanical probing and strain tuning of the Curie temperature in suspended Cr<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>Te<sub>6</sub> heterostructures. *ArXiv210409614 Cond-Mat Physicsphysics* (2021).
152. Kim, S., Yu, J. & van der Zande, A. M. Nano-electromechanical Drumhead Resonators from Two-Dimensional Material Bimorphs. *Nano Lett.* **18**, 6686–6695 (2018).
153. Xie, H. *et al.* Tunable Exciton-Optomechanical Coupling in Suspended Monolayer MoSe<sub>2</sub>. *Nano Lett.* **21**, 2538–2543 (2021).
154. Lee, J. *et al.* Electrically tunable single- and few-layer MoS<sub>2</sub> nanoelectromechanical systems with broad dynamic range. *Sci. Adv.* (2018).
155. Sengupta, S., Solanki, H. S., Singh, V., Dhara, S. & Deshmukh, M. M. Electromechanical resonators as probes of the charge density wave transition at the nanoscale in NbSe<sub>2</sub>. *Phys. Rev. B* **82**, 155432 (2010).
156. Kramer, E., van Dorp, J., van Leeuwen, R. & Venstra, W. J. Strain-dependent damping in nanomechanical resonators from thin MoS<sub>2</sub> crystals. *Appl. Phys. Lett.* **107**, 091903 (2015).
157. Sillanpää, M. A., Khan, R., Heikkilä, T. T. & Hakonen, P. J. Macroscopic quantum tunneling in nanoelectromechanical systems. *Phys. Rev. B* **84**, 195433 (2011).



158. Lee, J. E., Ahn, G., Shim, J., Lee, Y. S. & Ryu, S. Optical separation of mechanical strain from charge doping in graphene. *Nat. Commun.* **3**, 1024 (2012).
159. Lin, Z. *et al.* Thermal expansion coefficient of few-layer MoS<sub>2</sub> studied by temperature-dependent Raman spectroscopy. *Sci. Rep.* **11**, 7037 (2021).
160. Hu, X. *et al.* Mapping Thermal Expansion Coefficients in Freestanding 2D Materials at the Nanometer Scale. *Phys. Rev. Lett.* **120**, 055902 (2018).
161. Murray, R. & Evans, B. The thermal expansion of 2H-MoS<sub>2</sub> and 2H-WSe<sub>2</sub> between 10 and 320 K. *J. Appl. Crystallogr.* **12**, 312–315 (1979).
162. Zhang, L. *et al.* Thermal Expansion Coefficient of Monolayer Molybdenum Disulfide Using Micro-Raman Spectroscopy. *Nano Lett.* **19**, 4745–4751 (2019).
163. Sevik, C. Assessment on lattice thermal properties of two-dimensional honeycomb structures: Graphene, h-BN, h-MoS<sub>2</sub>, and h-MoSe<sub>2</sub>. *Phys. Rev. B* **89**, 035422 (2014).
164. Gan, C. K. & Liu, Y. Y. F. Direct calculation of the linear thermal expansion coefficients of MoS<sub>2</sub> via symmetry-preserving deformations. *Phys. Rev. B* **94**, 134303 (2016).
165. Wang, Z.-Y. *et al.* Effects of in-plane stiffness and charge transfer on thermal expansion of monolayer transition metal dichalcogenide. *Chin. Phys. B* **24**, 026501 (2015).
166. Huang, L. F. Correlation between structure, phonon spectra, thermal expansion, and thermomechanics of single-layer *h*-MoS<sub>2</sub>. *Phys. Rev. B* **90**, (2014).
167. Tyurnina, A. V. *et al.* Strained Bubbles in van der Waals Heterostructures as Local Emitters of Photoluminescence with Adjustable Wavelength. *ACS Photonics* **6**, 516–524 (2019).
168. Proscia, N. V. *et al.* Near-deterministic activation of room-temperature quantum emitters in hexagonal boron nitride. *Optica* **5**, 1128–1134 (2018).
169. Palacios-Berraquero, C. *et al.* Large-scale quantum-emitter arrays in atomically thin semiconductors. *Nat. Commun.* **8**, 15093 (2017).
170. Parto, K., Banerjee, K. & Moody, G. Irradiation of Nanostrained Monolayer WSe<sub>2</sub> for Site-Controlled Single-Photon Emission up to 150 K. *ArXiv200907315 Phys. Physicsquant-Ph* (2020).

171. Mak, K. F. *et al.* Tightly bound trions in monolayer MoS<sub>2</sub>. *Nat. Mater.* **12**, 207–211 (2013).
172. Lloyd, D. *et al.* Band Gap Engineering with Ultralarge Biaxial Strains in Suspended Monolayer MoS<sub>2</sub>. *Nano Lett.* **16**, 5836–5841 (2016).
173. Lee, J. *et al.* Switchable, Tunable, and Directable Exciton Funneling in Periodically Wrinkled WS<sub>2</sub>. *Nano Lett.* **21**, 43–50 (2021).
174. Strained Bubbles in van der Waals Heterostructures as Local Emitters of Photoluminescence with Adjustable Wavelength | ACS Photonics. <https://pubs-acsc.org.inp.bib.cnrs.fr/doi/10.1021/acsp Photonics.8b01497>.
175. Leon, D. F. C., Li, Z., Jang, S. W., Cheng, C.-H. & Deotare, P. B. Exciton transport in strained monolayer WSe<sub>2</sub>. *Appl. Phys. Lett.* **113**, 252101 (2018).
176. Datta, K. *et al.* Spatiotemporally controlled room-temperature exciton transport under dynamic strain. *Nat. Photonics* **16**, 242–247 (2022).
177. Rosati, R. *et al.* Strain-dependent exciton diffusion in transition metal dichalcogenides. *2D Mater.* **8**, 015030 (2020).
178. Harats, M. G., Kirchhof, J. N., Qiao, M., Greben, K. & Bolotin, K. I. Dynamics and efficient conversion of excitons to trions in non-uniformly strained monolayer WS<sub>2</sub>. *Nat. Photonics* **14**, 324–329 (2020).
179. Lee, H. *et al.* Drift-dominant exciton funneling and trion conversion in 2D semiconductors on the nanogap. *Sci. Adv.* **8**, eabm5236 (2022).
180. Rosati, R. *et al.* Dark exciton anti-funneling in atomically thin semiconductors. *Nat. Commun.* **12**, 7221 (2021).
181. Gelly, R. J. *et al.* Probing dark exciton navigation through a local strain landscape in a WSe<sub>2</sub> monolayer. *Nat. Commun.* **13**, 232 (2022).
182. Darlington, T. P. *et al.* Imaging strain-localized excitons in nanoscale bubbles of monolayer WSe<sub>2</sub> at room temperature. *Nat. Nanotechnol.* **15**, 854–860 (2020).

183. Ernandes, C. *et al.* Indirect to direct band gap crossover in two-dimensional WS<sub>2</sub>(1-x)Se<sub>2x</sub> alloys. *Npj 2D Mater. Appl.* **5**, 1–7 (2021).
184. Jin, C., Davoodabadi, A., Li, J., Wang, Y. & Singler, T. Spherical indentation of a freestanding circular membrane revisited: Analytical solutions and experiments. *J. Mech. Phys. Solids* **100**, 85–102 (2017).
185. Bhatia, N. M. & Nachbar, W. Finite indentation of elastic-perfectly plastic membranes by a spherical indenter. *AIAA J.* **6**, 1050–1057 (1968).
186. Zeng, F., Zhang, W.-B. & Tang, B.-Y. Electronic structures and elastic properties of monolayer and bilayer transition metal dichalcogenides MX<sub>2</sub> (M = Mo, W; X = O, S, Se, Te): A comparative first-principles study\*. *Chin. Phys. B* **24**, 097103 (2015).
187. Kang, J., Tongay, S., Zhou, J., Li, J. & Wu, J. Band offsets and heterostructures of two-dimensional semiconductors. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 012111 (2013).
188. Falin, A. *et al.* Mechanical Properties of Atomically Thin Tungsten Dichalcogenides: WS<sub>2</sub>, WSe<sub>2</sub>, and WTe<sub>2</sub>. *ACS Nano* **15**, 2600–2610 (2021).
189. Thureja, D. *et al.* Electrically tunable quantum confinement of neutral excitons. *Nature* **606**, 298–304 (2022).
190. Lin, P. *et al.* Piezo-Phototronic Effect for Enhanced Flexible MoS<sub>2</sub>/WSe<sub>2</sub> van der Waals Photodiodes. *Adv. Funct. Mater.* **28**, 1802849 (2018).
191. Nathangari, S. S. P. *et al.* Nonlinear Mode Coupling and One-to-One Internal Resonances in a Monolayer WS<sub>2</sub> Nanoresonator. *Nano Lett.* **19**, 4052–4059 (2019).
192. Prasad, P., Arora, N. & Naik, A. K. Gate Tunable Cooperativity between Vibrational Modes. *Nano Lett.* **19**, 5862–5867 (2019).
193. Coherent Phonon Rabi Oscillations with a High-Frequency Carbon Nanotube Phonon Cavity | Nano Letters. <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acs.nanolett.6b04223>.

194. Park, M. & Ansari, A. Phononic Frequency Combs in Stand-Alone Piezoelectric Resonators. in *2018 IEEE International Frequency Control Symposium (IFCS) 1–4* (2018).  
doi:10.1109/FCS.2018.8597504.
195. Ganesan, A., Do, C. & Seshia, A. Phononic frequency comb via three-mode parametric resonance. *Appl. Phys. Lett.* **112**, 021906 (2018).
196. Czaplewski, D. A. *et al.* Bifurcation Generated Mechanical Frequency Comb. *Phys. Rev. Lett.* **121**, 244302 (2018).
197. Ganesan, A. & Seshia, A. Resonance tracking in a micromechanical device using phononic frequency combs. *Sci. Rep.* **9**, 9452 (2019).
198. Cao, L. S., Qi, D. X., Peng, R. W., Wang, M. & Schmelcher, P. Phononic Frequency Combs through Nonlinear Resonances. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 075505 (2014).
199. Chaste, J. *et al.* Intrinsic properties of suspended MoS<sub>2</sub> on SiO<sub>2</sub>/Si pillar arrays for nanomechanics and optics. *ACS Nano* **12**, 3235–3242 (2018).
200. Unterreithmeier, Q. P., Weig, E. M. & Kotthaus, J. P. Universal transduction scheme for nanomechanical systems based on dielectric forces. *Nature* **458**, 1001–1004 (2009).
201. Optical frequency combs: Coherently uniting the electromagnetic spectrum | Science.  
[https://www-science-org.inp.bib.cnrs.fr/doi/10.1126/science.aay3676?url\\_ver=Z39.88-2003&rfr\\_id=ori:rid:crossref.org&rfr\\_dat=cr\\_pub%20%20pubmed](https://www-science-org.inp.bib.cnrs.fr/doi/10.1126/science.aay3676?url_ver=Z39.88-2003&rfr_id=ori:rid:crossref.org&rfr_dat=cr_pub%20%20pubmed).
202. Wang, Q. *et al.* Dual-comb photothermal spectroscopy. *Nat. Commun.* **13**, 2181 (2022).
203. Fortier, T. & Baumann, E. 20 years of developments in optical frequency comb technology and applications. *Commun. Phys.* **2**, 1–16 (2019).
204. Del’Haye, P. *et al.* Optical frequency comb generation from a monolithic microresonator. *Nature* **450**, 1214–1217 (2007).
205. Hollberg, L., Diddams, S., Bartels, A., Fortier, T. & Kim, K. The measurement of optical frequencies. *Metrologia* **42**, S105–S124 (2005).

206. Kippenberg, T. J., Holzwarth, R. & Diddams, S. A. Microresonator-Based Optical Frequency Combs. *Science* **332**, 555–559 (2011).
207. Ganesan, A., Do, C. & Seshia, A. Phononic Frequency Comb via Intrinsic Three-Wave Mixing. *Phys. Rev. Lett.* **118**, 033903 (2017).
208. Erbe, A. *et al.* Mechanical mixing in nonlinear nanomechanical resonators. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3102–3104 (2000).
209. de Jong, M. H. J., Ganesan, A., Cupertino, A., Gröblacher, S. & Norte, R. A. Mechanical overtone frequency combs. *Nat. Commun.* **14**, 1458 (2023).
210. Singh, R. *et al.* Giant Tunable Mechanical Nonlinearity in Graphene–Silicon Nitride Hybrid Resonator. *Nano Lett.* **20**, 4659–4666 (2020).
211. Luo, W., Gao, N. & Liu, D. Multimode Nonlinear Coupling Induced by Internal Resonance in a Microcantilever Resonator. *Nano Lett.* **21**, 1062–1067 (2021).
212. Yousuf, S. M. E. H., Lee, J., Shaw, S. W. & Feng, P. X.-L. Phononic Frequency Combs in Atomically Thin Nanoelectromechanical Resonators via 1:1 and 2:1 Internal Resonances. *J. Microelectromechanical Syst.* 1–12 (2023) doi:10.1109/JMEMS.2023.3282233.
213. Frisk Kockum, A., Miranowicz, A., De Liberato, S., Savasta, S. & Nori, F. Ultrastrong coupling between light and matter. *Nat. Rev. Phys.* **1**, 19–40 (2019).
214. Goldsche, M. *et al.* Fabrication of comb-drive actuators for straining nanostructured suspended graphene. *Nanotechnology* **29**, 375301 (2018).
215. Wiesner, M., Lindvall, N. & Yurgens, A. Detection of graphene microelectromechanical system resonance. *J. Appl. Phys.* **116**, 224510 (2014).
216. Fetter, A. L. & Walecka, J. D. *Theoretical Mechanics of Particles and Continua*. (Courier Corporation, 2003).
217. Some Formation Problems for Linear Elastic Materials.  
<https://vtechworks.lib.vt.edu/handle/10919/28608>.

218. Chen, C. *et al.* Modulation of mechanical resonance by chemical potential oscillation in graphene. *Nat. Phys.* **12**, 240–244 (2016).
219. The Feynman Lectures on Physics Vol. II Ch. 8: Electrostatic Energy.  
[http://www.feynmanlectures.caltech.edu/II\\_08.html](http://www.feynmanlectures.caltech.edu/II_08.html).