

N° d'ordre : 7635

UNIVERSITE DE PARIS-SUD CENTRE D'ORSAY
---

THESE

présentée pour obtenir

Le grade de DOCTEUR EN SCIENCES  
Spécialité Physique des Solides

par

Meydi FERRIER

**Transport électronique dans les fils quasi-  
unidimensionnels :  
cohérence de phase dans les réseaux de fils quantiques  
et supraconductivité des cordes de nanotubes de carbone**

Soutenue le 1<sup>er</sup> octobre 2004 devant la commission d'examen :

MM.	N. Birge	Rapporteur
	H. Bouchiat	
	L. Dumoulin	
	C. Glattli	
	S. Guéron	Invitée
	F. Hekking	Rapporteur
	G. Montambaux	Président
	C. Texier	Invité



# Remerciements

Je tiens évidemment à commencer par remercier H el ene Bouchiat et Sophie Gu eron qui ont co-encadr e ce travail de th ese. Elles ont bien s ur  et e disponibles pour discuter et interpr eter les r esultats. Mais elles  etaient aussi pr esentes et avec bonne humeur pour les parties les moins dr oles de la physique exp erimentale quand les exp eriences ne marchent pas ou que les  echantillons ne sont pas bons. Je les remercie donc pour m'avo ir appris ce qu' etait une exp erience et comment pr esenter un r esultat ainsi que pour la formation compl ementaire en pu ericulture.

Comme cette th ese a  et e un v eritable travail d' equipe, ces remerciements s'adressent aussi  a tous les membres et anciens membres de l' equipe qui ont particip e  a la bonne ambiance, aux discussions et exp eriences : Richard, Bertrand, Lionel, Alistair, Saco, Philippe, Xavier.

Je suis  egalement tr es reconnaissant  a Gilles Montambaux et Christophe Texier pour l'int er et qu'ils ont port e  a ces exp eriences et les nombreuses discussions et nouvelles id ees qui en ont d ecoul e. Un grand merci  a Christophe que j'ai poursuivi jusqu'aux Houches, le privant de quelques randonn ees, pour clarifier un grand nombre de points th eoriques et qui  etait toujours pr et  a r epondre.

Pour les discussions th eoriques, je remercie aussi Alessandro de Martino qui a pass e plusieurs jours au tableau noir pour nous expliquer sa th eorie sur la supraconductivit e des nanotubes ainsi que Nicolas Dupuis qui m'a beaucoup aid e pour le mod ele simple d ecrivant le transport dans l' etat normal des nanotubes.

Je remercie Alik Kasumov sans qui cette th ese n'aurait pas pu se faire. C'est lui en effet qui a invent e la technique de fabrication des  echantillons de nanotubes et nous a aid e  a la d evelopper  a Orsay. Mais il a surtout un rire exceptionnel tr es communicatif.

Je voudrais remercier Alexandre Glotter, Odile St ephane et Mathieu Kociak de l' equipe de C. Colliex qui m'ont initi e au microscope  lectronique  a transmission et  etaient toujours pr ets  a m'aider en cas de besoin.

Mes remerciements vont  egalement  a Miguel Ocio et Fran ois Ladieu chez qui nous avons r ealis e les mesures d'aimantation. Merci  a Fran ois de s' etre autant investi dans ces exp eriences et une pens ee sp eciale pour Miguel.

Comme tout travail exp erimental, cette th ese n'aurait pas  et e possible sans un soutien technique. Je remercie donc particuli erement Gilles Guillier qui nous a beaucoup aid es dans les p eriodes difficiles de fuite de la dilution ainsi que tout le personnel de l'atelier. Merci  a Yvette Dufour pour la reprographie de ce manuscrit.

Lors de cette thèse je suis allé dans le laboratoire de Philippe Poulin à Bordeaux pour fabriquer des échantillons. Je les remercie, Philippe et toute son équipe, pour le très bon accueil qu'ils m'ont réservé et l'aide qu'ils m'ont apporté pendant ces quelques jours.

Ce manuscrit a également bénéficié des remarques constructives de Norman Birge, revenu des Etats Unis pour la soutenance, et Frank Hekking que je remercie d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse ainsi que les autres membres du jury : C. Glattli et L. Dumoulin.

Enfin j'aimerais remercier ceux avec qui j'ai partagé (presque) tous mes gâteaux et cafés : Safia, François, David et Benoît.

Je remercie tout autant ceux qui m'ont soutenu en dehors du labo : Layla, Sebastien, Lionel, Nathalie, ma famille et les Ouazi et la chorba de Mohand.

Je termine par un énorme merci à Safia pour ses précieux encouragements et pour m'avoir accompagné dans cette aventure.

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction : Physique du fil unidimensionnel</b>	<b>9</b>
<b>I</b>	<b>Localisation faible dans les réseaux et détermination directe de la longueur de cohérence de phase</b>	<b>11</b>
<b>2</b>	<b>Physique Mésoscopique et Localisation Faible</b>	<b>13</b>
2.1	Effet AB et interférences électroniques . . . . .	14
2.2	Fluctuations universelles de conductance . . . . .	15
2.3	La localisation faible . . . . .	16
2.3.1	Magnétoconductance d'un fil quasi-1D . . . . .	19
2.3.2	Oscillations AAS . . . . .	21
2.4	Effet de la température sur les interférences . . . . .	22
2.5	Temps et longueur de cohérence de phase . . . . .	22
2.5.1	Temps de vie de quasi-particule . . . . .	23
2.5.2	Temps de relaxation de la phase du Cooperon . . . . .	24
2.5.3	Calcul dans le cas d'un fil quasi-1D . . . . .	26
2.6	Validité de la théorie de la localisation faible . . . . .	27
2.7	Situation expérimentale . . . . .	27
<b>3</b>	<b>Localisation faible dans les réseaux</b>	<b>29</b>
3.1	Calcul des oscillations AAS dans un réseau . . . . .	29
3.2	Oscillations AAS dans le réseau carré . . . . .	31
3.3	Rapport des harmoniques . . . . .	33
3.4	Magnétoconductance positive du réseau carré . . . . .	34
<b>4</b>	<b>Détermination directe de <math>L_\varphi</math></b>	<b>37</b>
4.1	Les hétérojonctions . . . . .	37
4.2	Réalisation des réseaux . . . . .	38
4.3	Caractéristiques des réseaux . . . . .	40
4.3.1	Densité électronique . . . . .	40
4.3.2	Largeur, libre parcours moyen et liens coupés . . . . .	40
4.4	Mesure directe de $L_\varphi$ . . . . .	42

4.5	Détermination des autres paramètres de transport . . . . .	47
4.5.1	Détermination de $W$ et $l_e$ . . . . .	47
4.5.2	Détermination de $L_\varphi$ à haute température . . . . .	48
4.6	Comparaison quantitative à la théorie de localisation faible . . . . .	49
4.6.1	Comparaison quantitative pour $L_\varphi(T)$ . . . . .	49
4.6.2	Ajustement des oscillations . . . . .	49
4.6.3	Evaluation du nombre de liens coupés . . . . .	50
4.7	Effet de la tension de grille . . . . .	52
4.8	Effet géométrique du réseau sur le temps de cohérence de phase . . . . .	54
4.9	Contribution des interactions à la conductivité . . . . .	55
4.10	Conclusion . . . . .	56
<b>II Supraconductivité des cordes de nanotubes de carbone</b>		<b>59</b>
<b>5</b>	<b>Les nanotubes de carbone</b>	<b>61</b>
5.1	Structure atomique . . . . .	62
5.2	Structure électronique . . . . .	63
5.2.1	Le plan de graphène . . . . .	63
5.2.2	Les nanotubes . . . . .	64
5.2.3	Fonctions d'ondes électroniques . . . . .	66
5.2.4	Limitations du modèle de liaisons fortes . . . . .	66
<b>6</b>	<b>Transport dans les fils unidimensionnels</b>	<b>69</b>
6.1	Le fil sans interactions . . . . .	69
6.1.1	Le fil parfait . . . . .	69
6.1.2	Diffusion par une impureté . . . . .	70
6.1.3	Le fil quasi-1D . . . . .	71
6.2	Le fil avec interactions . . . . .	72
6.2.1	Le fil propre . . . . .	72
6.2.2	Transport tunnel dans un liquide de Luttinger . . . . .	73
6.2.3	Le fil 1D avec une impureté . . . . .	75
<b>7</b>	<b>Théories de la supraconductivité dans les nanotubes de carbone</b>	<b>77</b>
7.1	Les mécanismes d'appariement envisagés dans un nanotube individuel . . . . .	77
7.1.1	L'interaction électron/électron . . . . .	77
7.1.2	L'interaction électron/phonon . . . . .	78
7.2	Ecrantage dans une corde de nanotubes . . . . .	80
7.3	Théorie de <i>Egger</i> et <i>de Martino</i> . . . . .	81
7.3.1	Développement de l'interaction attractive dans la corde . . . . .	81
7.3.2	Les sauts de phase . . . . .	81
7.3.3	Limitations du modèle . . . . .	84

<b>8</b>	<b>Fabrication des échantillons de nanotubes</b>	<b>87</b>
8.1	Fabrication des nanotubes . . . . .	87
8.1.1	La méthode par arc . . . . .	87
8.1.2	La méthode HipCO (High pressure CO conversion) . . . . .	88
8.2	Fabrication des fentes . . . . .	88
8.2.1	La nanosoudure laser . . . . .	92
<b>9</b>	<b>Interlude : transport dans un échantillon multiparoi</b>	<b>95</b>
9.1	Résultats expérimentaux . . . . .	95
9.2	Interprétations . . . . .	96
9.3	Effet du champ magnétique . . . . .	99
9.4	Effet photovoltaïque . . . . .	100
<b>10</b>	<b>Transport dans l'état normal des cordes de nanotubes</b>	<b>103</b>
10.1	Résultats expérimentaux . . . . .	103
10.1.1	Analyse à l'aide du modèle du liquide de Luttinger . . . . .	106
10.1.2	Effet Kondo . . . . .	107
10.1.3	Blocage de Coulomb dynamique . . . . .	108
10.1.4	Loi d'échelle tension/température . . . . .	109
10.1.5	Grande gamme de résistances . . . . .	109
10.2	Structure de bande d'une corde sans désordre . . . . .	111
10.3	Désordre dans les nanotubes . . . . .	111
10.3.1	Le libre parcours moyen . . . . .	112
10.3.2	Le couplage inter-tubes . . . . .	113
10.3.3	Comparaison avec les polymères conducteurs . . . . .	117
10.3.4	Simulations numériques . . . . .	119
10.3.5	Conclusion . . . . .	121
<b>11</b>	<b>Supraconductivité des cordes de nanotubes</b>	<b>123</b>
11.1	Observation de la supraconductivité . . . . .	123
11.1.1	Mesure de la résistance . . . . .	124
11.1.2	Résistance différentielle . . . . .	124
11.2	Influence des contacts normaux . . . . .	125
11.3	Longueur de cohérence supraconductrice . . . . .	127
11.3.1	Evaluation de la longueur de cohérence supraconductrice . . . . .	128
11.3.2	Pourquoi tous les échantillons ne transitent pas ? . . . . .	128
11.4	Influence du nombre de tubes . . . . .	130
11.5	Effet du champ magnétique . . . . .	130
11.5.1	Champ critique : effet orbital ou paramagnétique ? . . . . .	130
11.5.2	Anisotropie du champ critique . . . . .	131
11.5.3	Dimensionnalité . . . . .	132
11.6	Une supraconductivité unidimensionnelle . . . . .	133
11.6.1	Les sauts de phase . . . . .	133

11.6.2	Les courants critiques . . . . .	134
11.6.3	Fluctuations supraconductrices au delà de $T^*$ . . . . .	136
11.7	Comparaison avec la théorie de <i>Martino, Egger</i> . . . . .	137
11.8	Mesure de bruit dans les cordes de nanotubes . . . . .	139
11.8.1	Qu'est-ce que le bruit ? . . . . .	139
11.8.2	Comment entendre le bruit ? . . . . .	141
11.8.3	Bruit thermique . . . . .	142
11.8.4	Bruissement de grenaille . . . . .	142
11.9	Suppression de la supraconductivité par dépôt de matériaux organiques . . . . .	146
11.9.1	Mesures de transport . . . . .	146
11.9.2	Spectroscopie Raman . . . . .	149
11.10	Conclusion . . . . .	149
<b>12</b>	<b>Le magnétisme des nanotubes</b>	<b>153</b>
12.1	Les fibres de nanotubes . . . . .	154
12.2	Le superparamagnétisme des nanoparticules de fer . . . . .	155
12.3	Magnétisme dans l'état normal . . . . .	156
12.4	Modèle simple pour l'effet Meissner . . . . .	158
12.4.1	Estimation de la susceptibilité . . . . .	158
12.4.2	Anisotropie de l'effet Meissner . . . . .	158
12.5	Mesure de l'aimantation des fibres de nanotubes . . . . .	159
12.5.1	Le cycle d'hystérésis . . . . .	159
12.5.2	Aimantation non hystérétique . . . . .	160
12.5.3	Mesure à deux échantillons . . . . .	164
<b>13</b>	<b>Conclusions</b>	<b>167</b>
13.1	Détermination de $L_\varphi$ dans les réseaux de fils quantiques . . . . .	167
13.2	Transport dans les cordes de nanotubes de carbone . . . . .	168
13.2.1	Transport dans l'état normal . . . . .	168
13.2.2	Supraconductivité des cordes de nanotubes . . . . .	168
13.2.3	Effet Meissner des cordes de nanotubes . . . . .	169
<b>A</b>	<b>Annulation du flux lors des réflexions sur les bords d'un fil quantique.</b>	<b>171</b>
<b>B</b>	<b>Elargissement des harmoniques des oscillations AAS</b>	<b>173</b>
<b>C</b>	<b>Câblage du réfrigérateur à dilution</b>	<b>175</b>
	Bibliographie . . . . .	176

# Chapitre 1

## Introduction : Physique du fil unidimensionnel

Dans les conducteurs de faible dimension, le confinement des électrons augmente l'effet des interactions électroniques et du désordre. Ceci fait apparaître des problèmes fondamentaux sur la nature des excitations du système électronique qui ne sont plus des quasi-particules individuelles comme dans la théorie de Landau des liquides de Fermi, ce qui donne lieu à des propriétés de transport surprenantes.

Voyons tout d'abord ce qu'on appelle un fil unidimensionnel (1D). Dans un conducteur, la fonction d'onde des électrons de conduction est caractérisée par la longueur d'onde de Fermi  $\lambda_F$ . En l'absence de désordre on peut alors traiter un fil conducteur de section  $S$  comme un guide d'onde pour les électrons. Comme pour les ondes lumineuses, seuls certains modes peuvent se propager dans ce guide d'onde. Ils sont appelés canaux de conduction et leur nombre est donné par :  $N_c = S/\lambda_F^2$ . La limite 1D est atteinte lorsque  $N_c = 1$  quand un seul mode de propagation existe au niveau de Fermi.

La résistance de ce fil 1D, dans le cas où il serait sans interaction électronique et sans désordre, placé entre deux électrodes macroscopiques ( $N_c^{electrode} = \infty$ ) possède une valeur finie<sup>1</sup>  $R_Q = 1/G_Q = h/e^2$  [1, 2]. C'est une résistance de contact créée par le passage d'un mode de propagation dans une infinité. La caractéristique courant-tension d'un tel fil est linéaire comme pour la loi d'Ohm.

La présence d'une impureté dans ce fil fait apparaître une barrière de potentiel sur laquelle l'onde électronique diffuse : une partie est réfléchiée avec une amplitude de probabilité  $r$ , une partie est transmise avec l'amplitude de probabilité  $t$ . Dans ce cas la conductance du fil s'écrit  $G = G_Q T$  où  $T = |t|^2$  est la transmission du fil. On remarque que la caractéristique est toujours linéaire. S'il est clair que cette approche ne s'applique pas à 1D strictement puisque des interactions sont toujours présentes, elle permet de décrire le transport dans un fil contenant un grand nombre de canaux de conduction.

Que se passe-t-il si l'on prend en compte l'interaction électron-électron ? Dans un fil avec  $N_c = 1$ , les interactions ne sont pas écrantées et les électrons ne peuvent plus être décrits

---

<sup>1</sup>Le spin n'est pas pris en compte ici. La pris en compte de celui-ci donne le résultat  $R_Q = h/2e^2$

comme des quasi-particules individuelles. Les excitations de basse énergie du système qui transportent le courant sont des excitations collectives de grande longueur d'onde, les ondes de densité de charge. Le liquide électronique est alors décrit par la théorie de Tomonaga-Luttinger. Un électron injecté dans ce liquide se sépare en deux ondes de densité de charge dont la charge et la vitesse sont renormalisées par un paramètre caractérisant l'interaction électronique :  $g$ . Cependant la résistance de ce fil placé entre des contacts de type liquide de Fermi n'est pas affectée par les interactions [3, 4].

En fait ce n'est qu'en rajoutant du désordre que l'effet des interactions devient dramatique. En effet, à cause des interactions la densité d'états d'un liquide de Luttinger s'annule au niveau de Fermi à température nulle. Si une impureté est introduite dans le fil, la probabilité que l'électron passe cette barrière et donc la conductance du fil sont proportionnelles à la densité d'états et s'annule comme une loi de puissance en fonction de la tension appliquée. Ceci signifie que la loi d'Ohm n'est plus vérifiée dans un tel système.

Les deux systèmes considérés dans cette thèse, les fils réalisés dans un gaz bidimensionnel d'électrons (2DEG) et les cordes de nanotubes de carbone, sont des conducteurs désordonnés contenant quelques dizaines de canaux de conduction. Ils se situent entre la limite purement unidimensionnelle ( $N_c = 1$ ) et la limite du grand nombre de canaux de conduction. Il n'est donc pas évident de prévoir à quel point leurs propriétés de transport sont affectées par les interactions et le désordre.

Dans la première partie de cette thèse nous présentons la théorie de la localisation faible qui décrit comment les interférences électroniques se manifestent dans un système désordonné contenant un grand nombre de canaux de conduction comme les métaux. Nous montrons ensuite comment appliquer cette théorie au cas d'un réseau carré de fils constituant un nombre macroscopique d'anneaux. Ceci nous a permis de mettre au point une nouvelle méthode pour déterminer sans paramètre ajustable la longueur de cohérence de phase, qui est un paramètre clé du transport mésoscopique. En effet cette longueur contrôle les interférences électroniques et est directement reliée aux interactions électroniques dans le système. Nous avons mesuré celle-ci expérimentalement dans un réseau de fils réalisés dans un 2DEG qui contiennent moins de 10 canaux de conduction ce qui permet de tester la théorie de localisation faible dans un régime différent des métaux où elle est bien établie. La longueur de cohérence déterminée, ainsi que la signature des interférences électroniques sur la magnétorésistance semblent indiquer que la théorie de la localisation faible, valable pour les fils métalliques, s'applique toujours dans cette limite d'un petit nombre de canaux.

Dans une deuxième partie nous nous sommes intéressés aux cordes de nanotubes de carbone. Dans ces systèmes, contenant de 100 à 40 canaux de conduction, nous avons mis en évidence une transition supraconductrice surprenante dans une limite où l'on s'attend à de fortes interactions électroniques. Cette transition dépend fortement du désordre et de la dimensionnalité de l'échantillon. Nous avons ensuite réalisé les premières expériences visant à mettre en évidence le mécanisme microscopique de cette supraconductivité en tentant de modifier le spectre de phonons des nanotubes. Finalement nous tentons de confirmer cette supraconductivité et de mieux la caractériser par des mesures magnétiques d'effet Meissner.

## Première partie

Localisation faible dans les réseaux et  
détermination directe de la longueur de  
cohérence de phase



## Chapitre 2

# Physique Mésoscopique et Localisation Faible

Les propriétés de transport d'un métal macroscopique sont décrites en bonne approximation par une approche classique du mouvement électronique. Dans cette approche, le désordre dans l'échantillon est complètement caractérisé par une longueur, le libre parcours moyen élastique ( $l_e$ ). Il représente la distance moyenne entre deux chocs élastiques. Le transport électronique ne mettant en jeu que les électrons à la surface de Fermi, il est possible de relier  $l_e$  au temps  $\tau_e = l_e/v_F$  entre deux collisions. La conductivité est alors donnée par la formule de Drude :

$$\sigma_D = \frac{ne^2\tau_e}{m} \quad (2.1)$$

avec  $m$  la masse de l'électron et  $n$  la densité électronique. Le désordre créé par des impuretés sans degré de liberté interne provoque des collisions élastiques pour les électrons puisqu'il ne peut pas y avoir d'échange d'énergie. Par contre leur moment est affecté et donc leur direction de propagation est modifiée sur une distance typique  $l_e$ . A des distances  $L \gg l_e$  le mouvement électronique est alors diffusif. En plus du désordre statique, d'autres types de collisions rendent aléatoire la phase de la fonction d'onde électronique. Ce sont les phonons et les interactions entre électrons principalement. Lors de ces processus l'énergie de l'électron considéré n'est pas conservée, la phase de la fonction d'onde varie de façon aléatoire et détruit la cohérence quantique. De même les impuretés magnétiques peuvent être couplées aux électrons de conduction par un processus de type Kondo au cours duquel un électron de conduction saute sur l'impureté et retourne dans le métal. Si globalement l'énergie est conservée, l'électron de conduction passe par un état d'énergie différent quand il interagit avec l'impureté magnétique, ce qui rend la variation de phase aléatoire [5, 6].

L'approche classique est valable à l'échelle macroscopique et à haute température car le nombre de collisions inélastiques est très important . Ceci rend la phase des fonctions d'onde électroniques aléatoire détruisant par là-même tout effet de cohérence quantique.

On peut limiter ces processus en travaillant sur des échantillons contenant peu d'impuretés magnétiques et à basse température pour limiter l'interaction électron/phonon et électron/électron. La longueur sur laquelle l'électron garde une phase bien déterminée, la

longueur de cohérence de phase ( $L_\varphi$ ), atteint alors généralement quelques microns en dessous de 1 K. Un échantillon métallique de quelques microns peut donc être complètement cohérent quantiquement ce qui se traduit directement dans des propriétés électroniques mesurables expérimentalement. C'est à cette échelle ( $L < L_\varphi$ ) que se situe la physique mésoscopique. Le caractère ondulatoire des électrons est conservé ce qui se traduit principalement par des effets d'interférences électroniques présentés dans le paragraphe suivant. On distingue alors deux types de systèmes :

- a) les systèmes contenant peu de désordre ( $L < l_e$ ) dans lesquels le mouvement électronique est balistique,
- b) les systèmes diffusifs où la diffusion élastique est plus efficace ( $l_e < L$ ). C'est le régime qui va nous intéresser par la suite.

## 2.1 Effet AB et interférences électroniques

Nous allons nous intéresser dans la première partie de cette thèse aux interférences électroniques qui sont une conséquence directe de la cohérence de phase des électrons. Nous allons voir comment l'analyse de ces interférences permet de remonter aux mécanismes responsables de la perte de cohérence de phase électronique.

L'une des plus spectaculaires signatures de la cohérence de phase et des interférences électroniques est l'effet Aharonov-Bohm (A-B). Cette expérience (dans le cas des métaux) consiste à mesurer le courant ou la conductance d'un anneau mésoscopique traversé par un flux magnétique (Fig. 2.1). L'expérience est équivalente à celle des trous d'Young en optique. Le courant (ou la conductance) à travers l'anneau joue alors le rôle de l'intensité lumineuse.

Dans une description quantique chaque chemin pour aller du point A au point B de l'anneau est caractérisé par une amplitude de diffusion possédant un module et une phase. On note l'amplitude complexe associée au chemin 1 ou 2 de la figure 2.1 :

$$A_{1,2} = |A_{1,2}|e^{i\varphi_{1,2}}$$

Le courant ou la conductance sera donné comme l'intensité en optique par :

$$I(\phi) = |A_1 + A_2|^2 \quad (2.2)$$

La phase accumulée par l'électron lors de son mouvement diffusif dans le bras 1 ou 2 de l'anneau est :

$$\varphi_{1,2} = \int_{bras_{1,2}} (\vec{k}_F - \frac{e}{\hbar}\vec{A}) \cdot d\vec{l} = \varphi_{1,2}^0 - \frac{e}{\hbar} \int_{bras_{1,2}} \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad (2.3)$$

$\vec{A}$  est le potentiel vecteur et  $\varphi_{1,2}^0$  est une phase géométrique acquise lors du trajet qui dépend de la réalisation particulière du désordre. Le courant sera donc donné par :

$$\begin{aligned} I(\phi) &= |A_1|^2 + |A_2|^2 + 2|A_1||A_2| \cos\left(\oint_{anneau} \frac{\vec{A} \cdot d\vec{l}}{\hbar} + \Delta\varphi^0\right) \\ &= |A_1|^2 + |A_2|^2 + 2|A_1||A_2| \cos\left(2\pi\frac{\phi}{\phi_0} + \Delta\varphi^0\right) \end{aligned}$$

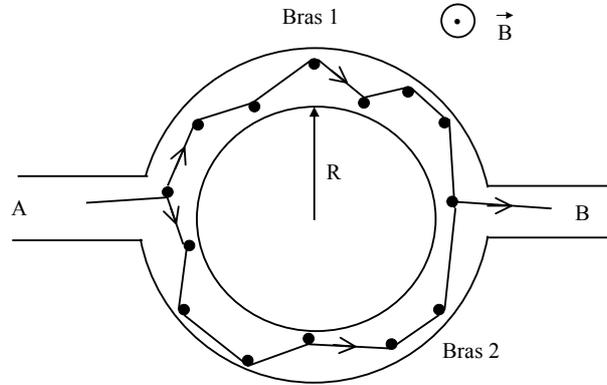


FIG. 2.1 – Anneau Aharonov-Bohm. 2 trajectoires de diffusions sont possibles pour aller de A à B présentant chacune une réalisation de désordre particulière.

$\phi$  est le flux créé par le champ magnétique dans l'aire délimitée par l'anneau et  $\phi_0 = h/e$  est le quantum de flux.

Le courant dans l'anneau est donc une fonction périodique du flux ( $\phi$ ) qui le traverse dont la phase ( $\Delta\varphi^0$ ) est fixée par la configuration du désordre dans l'anneau. Ces interférences quantiques responsables de l'effet AB se manifestent à travers d'autres effets surprenants mettant en jeu la compréhension de problèmes fondamentaux tels que le rôle du désordre et les interactions électroniques.

## 2.2 Fluctuations universelles de conductance

Ces interférences sont aussi observables dans un fil simple. Dans un fil de largeur finie il existe différents chemins de diffusion pour aller d'un bout à l'autre. Il peut donc apparaître une différence de phase entre les chemins qui dépend de la réalisation particulière du désordre dans le fil. La valeur de la conductance est une transcription de la figure d'interférences de l'onde électronique à travers l'échantillon désordonné. Ainsi si un seul centre diffuseur bouge d'une distance supérieure à la longueur d'onde de l'onde incidente  $\lambda_F$ , la figure d'interférences change complètement ce qui affecte fortement la conductance. On peut montrer que l'amplitude des fluctuations de conductance lorsqu'on explore toutes les configurations du désordre est universelle et d'ordre  $e^2/h$  [7, 8]. Le préfacteur numérique précis dépend de la géométrie de l'échantillon mais pas de sa taille (à condition qu'il soit plus petit que  $L_\varphi$ ) ni du désordre ( $l_e$ ).

Ce phénomène peut être révélé par l'application d'un champ magnétique. On modifie alors les phases accumulées par les différentes trajectoires électroniques et donc la figure

d'interférences. On obtient une conductance  $G(B)$  variant de façon non périodique en fonction du champ magnétique. Pour une configuration de désordre donnée, la courbe  $G(B)$  est reproductible d'où la dénomination "empreinte digitale magnétique" (magnetofingerprint). L'amplitude de ces oscillations est la même que précédemment.

On voit que ces deux effets (AB et UCF) dépendent de la réalisation particulière du désordre sur une échelle  $L_\varphi$ . Ils ne résistent donc pas à une moyenne sur le désordre et disparaissent dans un échantillon macroscopique. En effet on peut considérer un échantillon macroscopique de volume  $L^d$  comme un ensemble de blocs cohérents de taille  $L_\varphi^d$ , où  $d$  est la dimensionnalité, que l'on assemble sans prendre en compte d'effets de cohérence entre les blocs. Chaque bloc présente une réalisation de désordre, en ajoutant les effets obtenus sur chaque bloc une moyenne sur le désordre est bien réalisée. Si on ajoute  $N = (L/L_\varphi)^d$  blocs, l'amplitude relative de l'effet AB ou des UCF est divisée par un facteur  $\sqrt{N} = (L/L_\varphi)^{d/2}$  :

$$\frac{\delta G_{AB,UCF}}{G} \approx \left(\frac{L_\varphi}{L}\right)^{d/2}$$

Nous allons voir maintenant qu'il subsiste toutefois certains chemins particuliers d'interférences qui sont robustes à une moyenne sur le désordre (ou moyenne d'ensemble). Ils sont responsables de contributions observables dans des échantillons de taille  $L \gg L_\varphi$ .

## 2.3 La localisation faible

Une quantité qui joue un rôle central dans l'analyse de ces interférences est la probabilité, pour un électron d'énergie  $E_F$ , d'aller d'un point  $r$  à un point  $r'$  :  $P(r, r')$ . On peut décomposer cette probabilité sur les chemins de diffusion multiple sur les impuretés :

$$P(r, r') = \sum_{\mathcal{C}, \mathcal{C}'} A_{\mathcal{C}}(r, r') A_{\mathcal{C}'}^*(r, r') \quad (2.4)$$

Les  $A_{\mathcal{C}}$  sont les amplitudes de diffusions introduites précédemment. La phase associée à une trajectoire  $\mathcal{C}$  de longueur  $l(\mathcal{C})$  se comporte comme :

$$A_{\mathcal{C}} \sim e^{ik_F l(\mathcal{C})} \quad (2.5)$$

Cette probabilité  $P$  peut être reliée à la conductance ou au courant si on généralise l'équation (2.2) à  $n$  chemins.

La phase accumulée par un couple de chemins est  $k_F(l(\mathcal{C}) - l(\mathcal{C}'))$ . Une telle contribution ne résiste généralement pas à une moyenne sur le désordre car la différence  $l(\mathcal{C}) - l(\mathcal{C}')$  est au moins de l'ordre de  $l_e$ . La phase est donc une quantité aléatoire grande devant l'unité car  $k_F l_e \gg 1$  dans un échantillon diffusif. Cette remarque montre que pour résister à la moyenne d'ensemble il faut que la différence de phase accumulée soit nulle. Il n'existe que deux types de trajectoires satisfaisant cette condition.

a) Soit  $\mathcal{C} = \mathcal{C}'$  qui correspond à la figure (2.2a). L'ensemble de ces chemins donne une contribution à la probabilité  $P(r, r')$  appelée diffuson et notée  $P_D(r, r')$ . On peut montrer

que cette contribution à la probabilité conduit à la conductance de Drude :  $G_D = \sigma_D S/L$ . Il s'agit d'une contribution incohérente.

b) Une autre possibilité est de coupler les chemins, en prenant deux trajectoires symétriques par renversement du temps :  $\mathcal{C} = \mathcal{C}'^T$ . La seule manière de réaliser cela est que les deux chemins ainsi couplés forment un boucle comme sur la figure (2.2b). La contribution de ces trajectoires à la probabilité  $P(r, r')$  met en jeu le Cooperon, noté  $P_c$ , qui est représenté sur la figure (2.2b) par la boucle. De telles trajectoires contribuent à augmenter la probabilité de retour à l'origine  $P(r, r)$ . Comme on le voit sur la figure 2.2 l'apparition de la boucle nécessite un croisement des deux chemins. La condition  $l(\mathcal{C}) = l(\mathcal{C}')$  n'est donc pas strictement satisfaite. Cette violation n'est toutefois pas dramatique puisqu'elle est locale. Elle est à l'origine du fait que les trajectoires de la figure (2.2b) n'apportent qu'une petite correction à la conductance de Drude. On peut montrer qu'elle est d'ordre  $1/g$  où  $g$  est la conductance sans dimension telle que  $G = \frac{e^2}{h}g$ . En l'absence de champ magnétique les effets d'interférences augmentent la rétrodiffusion (la probabilité de retour à l'origine) et diminuent donc la conductance : on parle de localisation faible.

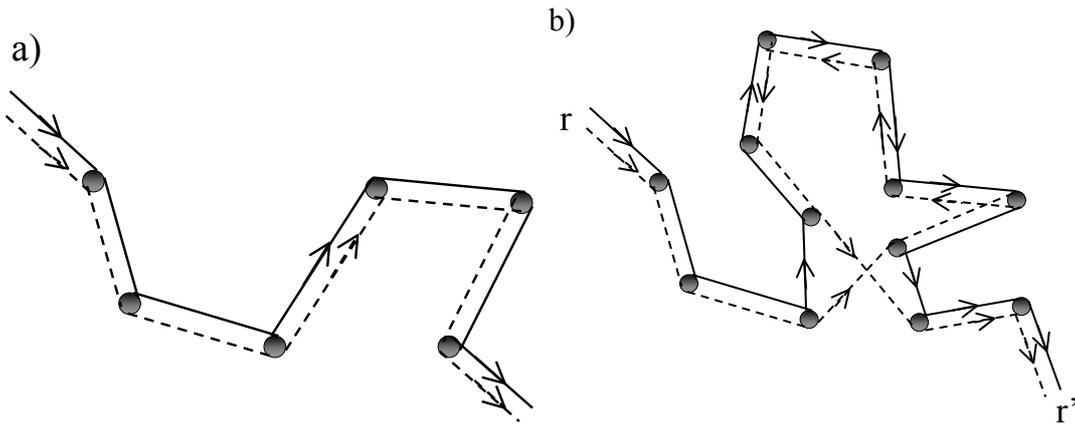


FIG. 2.2 – A gauche, chemin de diffusion classique : le diffuson. Les deux chemins sont parcourus dans le même sens. A droite, la boucle représente les interférences entre deux trajectoires conjuguées par renversement du sens du temps. On désigne aussi ces boucles "orbites".

Pour que les deux trajectoires symétriques par renversement du temps puissent interférer, il faut que l'électron conserve sa phase au moins sur la longueur de la boucle. Ceci signifie que le Cooperon décrit une contribution cohérente au transport. Les interférences entre trajectoires symétriques par renversement du temps sont donc limitées par  $L_\varphi$  puisque les collisions inélastiques brisent la cohérence de phase.

### Comment calculer $P_D$ et $P_C$ ?

Le Diffuson et le Cooperon décrivent la propagation diffusive des électrons et obéissent tous deux à une équation de diffusion :

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} - D\vec{\nabla}^2\right)P(\vec{r}, \vec{r}', t) = \delta(\vec{r} - \vec{r}')\delta(t) \quad (2.6)$$

Dans le cas du Cooperon, on multiplie la solution de l'équation par  $e^{-t/\tau_\varphi}$  afin de limiter le temps de parcours des boucles à  $\tau_\varphi$  ou de façon équivalente la taille des boucles à  $L_\varphi = \sqrt{D\tau_\varphi}$ .

### Effet du champ magnétique

Nous nous intéressons maintenant à l'effet d'un champ magnétique sur les corrections de localisation faible. Si on applique un champ magnétique des différences apparaissent puisqu'il brise l'invariance par renversement du sens du temps. On a vu que chaque trajectoire en présence d'un champ accumule une phase donnée par (2.3). La phase du diffuson est toujours nulle puisque les deux trajectoires sont identiques. Si l'on note  $\phi$  le flux créé par le champ magnétique dans l'aire délimitée par une boucle, chaque trajectoire contribuant au Cooperon accumule une phase  $2\pi\phi/\phi_0$  affectant au couple de trajectoires une phase  $4\pi\phi/\phi_0$ . Chaque boucle contribuant au Cooperon oscille donc avec une période  $\phi_0/2$ . En présence de champ magnétique l'équation de diffusion est affectée par le potentiel vecteur  $\vec{A}$  :

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} - D(\vec{\nabla} - 2ie\vec{A})^2\right)P(\vec{r}, \vec{r}', t) = \delta(\vec{r} - \vec{r}')\delta(t) \quad (2.7)$$

C'est la charge  $2e$  qui intervient car le Cooperon décrit les interférences entre deux chemins électroniques.

La correction quantique à la conductance est obtenue en sommant toutes les contributions de ces boucles. Une trajectoire fermée donne une contribution proportionnelle à  $\exp(4i\pi\phi/\phi_0)$  où  $\phi$  est le flux (de signe aléatoire) enclos par la trajectoire diffusive. On comprend que les trajectoires de longueur telle que  $\phi \geq \phi_0$  se moyennent à 0.

a) Sur un plan infini la surface englobée par une trajectoire diffusive fermée est de l'ordre de  $S = Dt$  (Fig. 2.3a). Le flux englobé par cette trajectoire est donc  $\phi = BDt$ . Ainsi le champ magnétique limite les trajectoires à des temps tels que :  $BDt < \phi_0$  ce qui correspond à un temp caractéristique  $\tau_B = \phi_0/DB$ .

b) Dans un fil infini quasi-1d ( $L_\varphi \gg W$ ) la trajectoire est limitée transversalement par la largeur  $W$  et la longueur parcourue est de l'ordre de  $\sqrt{Dt}$  (Fig. 2.3b). Le temps de parcours des boucles est donc limité par la relation  $BW\sqrt{Dt} < \phi_0$  ce qui donne un temps caractéristique  $\tau_B = \frac{1}{D}\left(\frac{\phi_0}{WB}\right)^2$ .

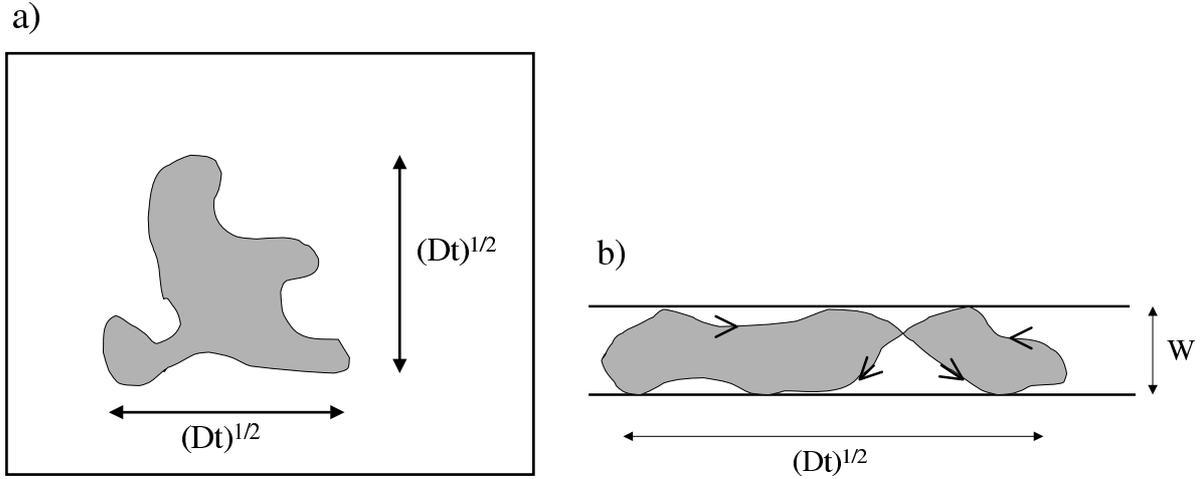


FIG. 2.3 – a) : orbite du Cooperon dans un plan. Les deux dimensions d'une trajectoire diffusives sont limitées par  $\sqrt{Dt}$ . b) : diffusion dans un fil quasi-1d. La trajectoire est limitée transversalement par la largeur du fil.

Le champ magnétique limite donc la taille des orbites dans le Cooperon et on peut donc représenter cet effet par l'introduction d'une nouvelle longueur qui joue le même rôle que la longueur de cohérence de phase :  $L_B = \sqrt{D\tau_B}$ , la taille caractéristique d'une orbite englobant un flux  $\phi_0$ . On peut montrer qu'il faut alors remplacer la longueur de cohérence de phase par :

$$\frac{1}{L_\varphi(B)^2} = \frac{1}{L_\varphi(0)^2} + \frac{1}{L_B^2} \quad (2.8)$$

L'application d'un champ magnétique détruit donc la contribution cohérente au transport et ramène la probabilité de retour à l'origine et donc la conductance à sa valeur classique. Ceci permet de comprendre le phénomène de **magnétoconductance positive** : la conductance d'un système mésoscopique augmente avec le champ magnétique.

### 2.3.1 Magnétoconductance d'un fil quasi-1D

Intéressons nous plus particulièrement au cas du fil 1D de largeur  $W$  ( $W \ll L_\varphi$ ) qui correspond notamment au cas des fils constituant les réseaux que nous avons étudiés expérimentalement. La taille transverse des orbites est limitée par  $W$ .  $L_B$  représente donc la taille longitudinale de l'orbite englobant  $\phi_0$ . La correction exacte qu'il faut introduire dans la longueur de cohérence de phase est [9] :

$$\frac{1}{L_\varphi(\phi)^2} = \frac{1}{L_\varphi(0)^2} \left[ 1 + \frac{1}{3} \left( 2\pi \frac{BW_{\text{eff}} L_\varphi(0)}{\phi_0} \right)^2 \right] \quad (2.9)$$

La correction à la conductivité s'écrit :

$$\Delta\sigma = -\frac{1}{Vol} \frac{e^2}{\pi\hbar} \int dr \int dt P_C(r, r, t) e^{-t/\tau_\phi(B)} \quad (2.10)$$

Le terme  $\int dr P(r, r, t)$  représente le nombre total de trajectoires fermées de longueur  $t$  et  $\Delta\sigma$  somme les contributions de toutes les trajectoires quelque soit leur longueur. Cette somme est pondérée par un facteur phénoménologique  $e^{-t/\tau_\phi}$  qui limite le temps de parcours des boucles à  $\tau_\phi$  ou de façon équivalente leur taille à  $L_\phi$ .

En dimension 1 la solution de l'équation de diffusion est :

$$P(r, r, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi Dt}} \quad (2.11)$$

Dans la limite  $L \gg L_\phi$  qui nous intéresse on obtient :  $\Delta\sigma = -\frac{e^2}{h} L_\phi(B)$ . C'est la correction négative à la conductance qui disparaît sur une échelle de champ :  $B_c = \phi_0/(WL_\phi(0))$ .

### Application aux réseaux de gaz 2D

La formule (2.9) peut se réécrire pour un réseau d'anneaux de pas  $a$  englobant un flux  $\phi = Ba^2$  par anneau :

$$\frac{1}{L_\phi(\phi)^2} = \frac{1}{L_\phi(0)^2} \left[ 1 + \frac{1}{3} \left( 2\pi \frac{\phi}{\phi_0} \frac{W_{\text{eff}} L_\phi(0)}{a^2} \right)^2 \right] \quad (2.12)$$

où  $W_{\text{eff}} = W$  dans la limite  $\sqrt{\hbar/eB} \gg W \gg l_e$ .

Dans les réseaux que nous avons mesurés expérimentalement on est dans une limite  $l_e \gg W$ . Dans ce cas la largeur qui intervient dans  $L_\phi^{\text{eff}}$  est renormalisée à cause de phénomènes d'annulation de flux lors de la réflexion de la trajectoire électronique sur les bords de l'échantillon. En effet on peut montrer qu'une trajectoire fermée qui n'inclut que des réflexions sur les bords n'englobe pas de flux (*cf.* Annexe A). On comprend alors que si  $l_e \gg W$  une boucle de longueur  $L_\phi$  comporte un grand nombre de réflexions sur les bords et n'englobe pas un flux  $\phi = WL_\phi B^2$  mais un flux plus faible. On peut traduire ce phénomène en faisant apparaître une largeur effective  $W_{\text{eff}} = W \sqrt{(3W)/(C_1 l_e)}$  obtenue par des méthodes semi-classiques [10]. Le coefficient numérique  $C_1$  dépend de la manière dont les électrons sont réfléchis par les bords du fil. En effet suivant la rugosité des bords confinant le 2DEG la réflexion des électrons sur ceux-ci peut être diffusive ( $C_1 = 4\pi$ ) ou spéculaire ( $C_1 = 9.5$ ).

Une réflexion est *diffusive* lorsque la longueur d'onde de Fermi est inférieure à la rugosité des bords. L'électron peut alors être réfléchi dans n'importe quelle direction avec la même probabilité.

Une réflexion est *spéculaire* lorsque la longueur d'onde de Fermi est plus grande que la rugosité des bords. L'électron est alors réfléchi suivant les lois de l'optique géométrique.

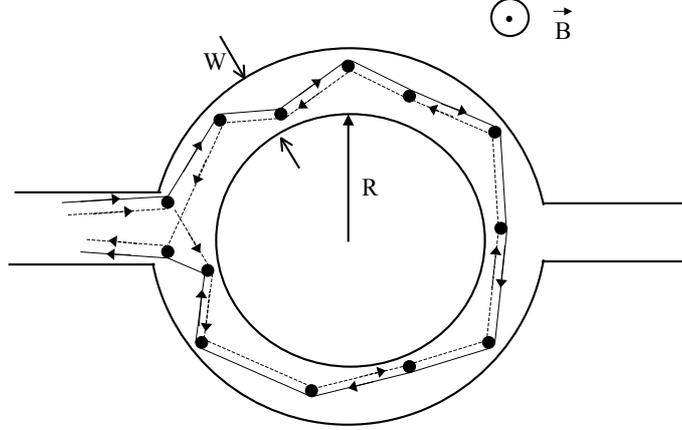


FIG. 2.4 – Trajectoire de localisation faible contribuant aux oscillations AAS.

### 2.3.2 Oscillations AAS

Dans le cas d'un anneau, les boucles de localisation faible renversées par le sens du temps faisant le tour de celui-ci créent des oscillations dans la conductance qui survivent à la moyenne sur le désordre [11]. Considérons une telle boucle dans un anneau de rayon  $R$  et de largeur  $W$  (Fig. 2.4). Le flux englobé par la trajectoire est  $\phi(\mathcal{C}) = B\pi R^2 + \delta\phi(\mathcal{C})$ . Pour une trajectoire parcourue en un temps  $t$ ,  $\delta\phi(\mathcal{C}) \approx B\sqrt{Dt}W$ . Si l'on revient à la correction à la conductance, ces trajectoires apportent des contributions :

$$\Delta\sigma \approx - \sum_{n=-\infty}^{+\infty} e^{4ni\pi\phi/\phi_0} \sum_{\mathcal{C}} e^{4i\pi\delta\phi(\mathcal{C})/\phi_0} \quad (2.13)$$

Le  $n$  dans le premier terme correspond au nombre de tours que fait la trajectoire fermée autour de l'anneau. Le deuxième terme est en fait identique à celui qui donne la magnétoconductance dans un fil et se traduit par l'apparition du même  $L_\varphi(B)$  que précédemment. On aboutit donc au résultat :

$$\Delta\sigma \approx \sum_{n=1}^{+\infty} \cos(4n\pi\phi/\phi_0) e^{-2n\pi R/L_\varphi(B)} \quad (2.14)$$

On obtient une magnétoconductance pseudo-périodique en flux avec des harmoniques en  $2n/\phi_0$  et qui s'atténue sur la même échelle de champ que la magnétoconductance du fil 1D.

Cet effet a été mesuré expérimentalement sur un cylindre [12] dont la hauteur est supérieure à  $L_\varphi$  afin de réaliser la moyenne d'ensemble.

## 2.4 Effet de la température sur les interférences

### Interférences non-moyennées sur le désordre

Prenons maintenant en compte l'élargissement du niveau de Fermi par la température dans un échantillon de taille  $L \gg L_\varphi$ . Deux trajectoires qui interfèrent peuvent alors avoir des énergies différentes. Leurs phases évoluent donc différemment dans le temps à cause du terme  $e^{-iEt/\hbar}$ . Pour que deux trajectoires contribuent significativement il faut donc que le déphasage accumulé pendant le temps de traversée de l'échantillon ( $\tau_D = L^2/D$ ) soit petit, c'est-à-dire :  $\delta E < \hbar D/L^2$ . L'énergie caractéristique qui apparaît est appelée énergie de corrélation ou de Thouless :  $E_C = \hbar D/L^2$ . C'est la bande d'énergie sur laquelle les électrons peuvent interférer.

Si le niveau de Fermi est élargi de  $k_B T$  il faut ajouter donc  $N = k_B T/E_C$  chemins d'interférences de façon incohérente [13] et on obtient en dimension 1 :

$$\delta G(T) = \delta G(T=0) \sqrt{\frac{E_C}{k_B T}} = \delta G(T=0) \left(\frac{L_T}{L}\right) \quad (2.15)$$

On voit naturellement apparaître la longueur thermique  $L_T^2 = \hbar D/(k_B T)$ . Le calcul exact amène à des préfacteurs numériques différents [13]. La dépendance en température des effets d'interférences non moyennés sur le désordre n'est donc pas uniquement gouvernée par la dépendance en température de  $L_\varphi$  mais aussi par la longueur thermique. Ceci a été observé expérimentalement sur l'effet Aharonov-Bohm [14].

### Localisation faible

En revanche si on s'intéresse à la conductance moyennée sur le désordre, le moyennage thermique n'a pas d'action sur les deux contributions incohérentes et cohérentes. En effet il ne subsiste après la moyenne d'ensemble que des trajectoires conjuguées par renversement du sens du temps (Cooperon) qui ont par définition la même énergie et donc une différence de phase indépendante de l'énergie. La dépendance en température des interférences responsables de la localisation faible est donc uniquement contrôlée par  $L_\varphi$ . On voit donc bien l'avantage de réaliser une expérience dans laquelle une moyenne sur le désordre est faite : on détermine ainsi sans ambiguïté la dépendance en température de la longueur de cohérence de phase.

## 2.5 Temps et longueur de cohérence de phase

Nous avons vu que les interférences électroniques ont lieu sur une longueur  $L_\varphi$  qui peut être reliée au temps de cohérence de phase par la relation :  $L_\varphi^2 = D\tau_\varphi$ . Ce temps définit le temps de vie du Cooperon. Il n'est pas évident qu'il coïncide avec le temps de vie d'une quasi-particule ( $\tau_{qp}$ ). Cependant les interférences ne pouvant avoir lieu sur un temps plus

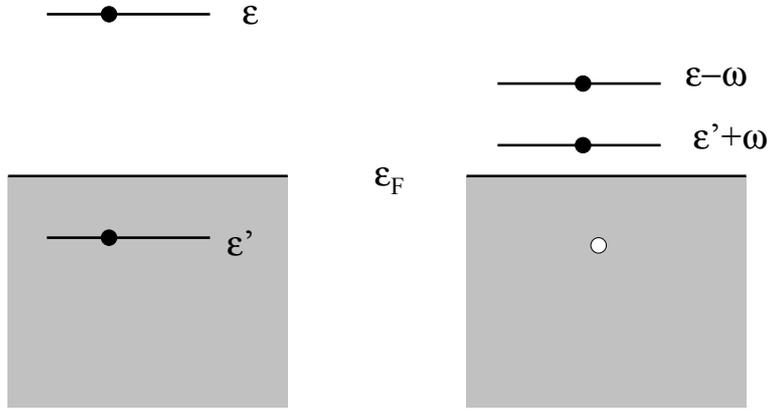


FIG. 2.5 – Une quasi-particule d'énergie  $\epsilon$  interagit avec une autre de la mer de Fermi.

long, on peut conclure que  $\tau_\varphi \leq \tau_{qp}$ . Les mécanismes de décohérence sont de plusieurs natures : interaction électron/phonon, impuretés magnétiques ou électron/électron, cependant dans le régime de basse température dans lequel nous allons nous placer, la décohérence est dominée par les interactions électron/électron sur lesquelles nous allons nous concentrer.

### 2.5.1 Temps de vie de quasi-particule

Nous allons voir que  $\tau_{qp}$  dépend fortement du désordre. En effet la diffusion, en augmentant le temps de traversée de l'échantillon, augmente la probabilité qu'un électron interagisse avec un autre. Ce calcul, fait dans [15], a été rediscuté dans [16]. L'interaction électron-électron est prise en compte de façon perturbative ce qui est justifié dans le cas des métaux par le très bon écrantage électronique.

Si un électron est injecté avec une énergie  $\epsilon > \epsilon_F$  alors il peut interagir avec un électron de la mer de Fermi d'énergie  $\epsilon' < \epsilon_F$  pour occuper deux états d'énergie  $\epsilon - \omega$  et  $\epsilon' + \omega$  afin de respecter la conservation de l'énergie (Fig. 2.5).

En utilisant la règle d'or de Fermi et en moyennant sur le désordre, le temps de vie d'une quasi-particule d'énergie  $\epsilon$  peut être relié à la probabilité de retour à l'origine [16] :

$$\frac{1}{\tau_{qp}(\epsilon)} = \frac{1}{\pi\nu_0} \int_0^\epsilon d\omega \int_0^\infty dt P(t) \sin \omega t \quad (2.16)$$

Sachant que  $P(t) = \int dr P(r, r, t)$  est de la forme  $Vol/(4\pi Dt)^{d/2}$  pour des particules diffusant dans un espace libre de dimension  $d$ , l'intégrale sur le temps donne :  $\frac{1}{\omega} \left(\frac{\omega}{E_c}\right)^{d/2}$

Pour les interférences électroniques le temps de vie qui nous intéresse est celui d'une quasi-particule au niveau de Fermi mais à température finie. Pour obtenir le temps de vie à température finie il faut introduire les facteurs de Fermi dans la relation précédente. Le facteur à introduire est :

$$F(\epsilon, \epsilon', \omega) = f_{\epsilon'}(1 - f_{\epsilon-\omega})(1 - f_{\epsilon'+\omega}) + (1 - f_{\epsilon'})f_{\epsilon-\omega}f_{\epsilon'+\omega} \quad (2.17)$$

Le premier terme de cette fonction assure qu'il y a bien un électron à l'énergie  $\epsilon'$  et que les états finaux d'énergie  $\epsilon - \omega$  et  $\epsilon' + \omega$  sont libres. Le deuxième correspond à la désintégration d'un état de trou.

Cette fonction intégrée sur  $\epsilon'$  et prise en  $\epsilon = 0$  donne  $2/\sinh(\beta\omega)$  qu'on approxime par :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\sinh(\beta\omega)} &= \frac{T}{\omega} & \text{si } \omega < T \\ &= 0 & \text{si } \omega > T \end{aligned} \quad (2.18)$$

Cette fonction qui découle du principe de Fermi assure donc bien qu'il ne peut pas y avoir de transfert d'énergie plus grand que la température. Le temps de vie s'exprime alors comme :

$$\frac{1}{\tau_{qp}(0, T)} \propto T \int_0^T \frac{d\omega}{\omega^2} \left( \frac{\omega}{E_C} \right)^{d/2} \quad (2.19)$$

Ce résultat, valable pour  $d=3$ , ne peut pas s'étendre directement à plus basse dimension. En effet l'intégrale (2.19) diverge pour  $d \leq 2$  à cause de la borne inférieure  $\omega = 0$ . Ceci signifie que pour ces dimensions les faibles transferts d'énergie dominent la décohérence électronique. Une façon de résoudre ce problème est de remarquer que le temps de vie d'une quasi-particule est limité par le temps  $\tau_{qp}$ . Son énergie, et donc tout transfert d'énergie, ne peut pas être mieux définie qu'à  $1/\tau_{qp}$  près. Il faut donc éliminer dans (2.19) les contributions des transferts d'énergie inférieurs à cette borne. On obtient ainsi une relation autocohérente pour  $\tau_{qp}$  :

$$\frac{1}{\tau_{qp}(0, T)} \propto T \int_{1/\tau_{qp}(0, T)}^T \frac{d\omega}{\omega^2} \left( \frac{\omega}{E_C} \right)^{d/2} \quad (2.20)$$

Le résultat de l'intégration est dominé par la borne inférieure et conduit, en  $d=1$ , à un terme proportionnel à  $\sqrt{\tau_{qp}}$ . La dépendance en température du temps de vie de quasi-particule est alors :

$$\tau_{qp} \propto T^{-2/3} \text{ pour } d = 1 \quad (2.21)$$

## 2.5.2 Temps de relaxation de la phase du Cooperon

Un autre problème consiste à calculer le "temps de vie" du Cooperon. Il n'est cependant pas possible d'introduire directement les interactions electron-electron dans le calcul du temps de déphasage affectant le Cooperon. Pour étudier cette question, il a été proposé

[15] de décrire l'interaction entre électrons comme l'interaction d'un électron avec un champ  $V(r, t)$  fluctuant. Le déphasage supplémentaire des trajectoires contribuant au Cooperon peut être écrit  $\langle e^{i\Phi(t)} \rangle_{\mathcal{C}, T}$  où la double moyenne désigne le moyennage sur les fluctuations thermiques de  $V$  et le moyennage sur les chemins fermés  $\mathcal{C}$ . La phase accumulée par le Cooperon est donnée par :

$$\Phi = \frac{e}{\hbar} \int_0^t d\tau [V(r(\tau), \tau) - V(r(t - \tau), \tau)] \quad (2.22)$$

### Interprétation

Le premier terme est associé à la trajectoire du Cooperon qui évolue dans le sens du temps, le deuxième est dû à la trajectoire renversée par le sens du temps. On peut noter que ce potentiel électrique, pour avoir un effet sur le Cooperon, doit osciller à des fréquences plus grandes ou de l'ordre de  $1/\tau_\phi$  sinon sa valeur sera la même au point de départ et au point d'arrivée de la boucle d'interférence et la phase accumulée donnée par l'intégrale du potentiel sera nulle. Ce point est important pour comprendre l'effet d'une irradiation d'un conducteur mésoscopique par des ondes électro-magnétiques. On comprend maintenant qu'à basse fréquence ( $\omega < \tau_\phi$ ) un champ électrique n'a pas d'effet sur le Cooperon alors qu'un champ magnétique même s'il paraît statique pour le Cooperon modifie la phase accumulée lors de la trajectoire et contribue au déphasage. En revanche à haute fréquence le déphasage peut aussi bien être causé par un champ électrique qu'un champ magnétique comme on vient de le voir.

### Calcul

La moyenne thermique peut être réalisée en utilisant la nature gaussienne des fluctuations ce qui permet d'écrire que :  $\langle e^{i\Phi} \rangle_{\mathcal{C}, T} = \langle e^{-\frac{1}{2}\langle \Phi^2 \rangle_T} \rangle_{\mathcal{C}}$ . Au temps courts ( $\langle \phi^2 \rangle \ll 1$ ) on peut développer l'exponentielle et la moyenne devient  $e^{-\frac{1}{2}\langle \Phi^2 \rangle_{T, C}}$  avec :

$$\langle \Phi^2 \rangle = \frac{e^2}{\hbar^2} \left\langle \int d\tau_1 d\tau_2 [V(r(\tau_1), \tau_1) - V(r(\bar{\tau}_1), \tau_1)] [V(r(\tau_2), \tau_2) - V(r(\bar{\tau}_2), \tau_2)] \right\rangle \quad (2.23)$$

où  $\bar{\tau} = t - \tau$ . Supposons pour simplifier le calcul que les fluctuations du potentiel sont locales en temps, c'est-à-dire :

$$\langle V(r, t) V(r', t') \rangle = \delta(t - t') \langle V(r) V(r') \rangle \quad (2.24)$$

On peut alors développer le terme  $\phi^2$ , effectuer l'intégrale sur  $\tau_2$  qui ne fait intervenir que des fonctions  $\delta$  et on obtient :

$$\langle \Phi^2 \rangle = \frac{e^2}{\hbar^2} \left\langle \int_0^t d\tau [V(r(\tau)) - V(r(\bar{\tau}))]^2 \right\rangle \quad (2.25)$$

On remarque que le terme entre crochets correspond à la tension  $\Delta V$  mesurée entre le point  $r(\tau)$  et le point  $r(\bar{\tau})$ . On peut donc utiliser la formule de Nyquist qui, à partir

du théorème fluctuation-dissipation, relie le bruit en tension d'un échantillon à sa résistance :  $\langle \Delta V^2 \rangle_T(\omega) = 2k_B T R$  (cf section 11.8). La résistance d'un échantillon de section  $S$  et de longueur  $|r(\tau) - r(\bar{\tau})|$  s'écrit :

$$R = \frac{|r(\tau) - r(\bar{\tau})|}{\sigma_D S} \quad (2.26)$$

Il reste maintenant à moyenner cette expression sur les chemins de diffusion  $C$ . Pour des temps inférieurs au temps de traversée du fil  $\tau_D$ , le transport entre deux points est diffusif, il n'y a pas d'effet de bord et on peut donc écrire  $|r(\tau) - r(\bar{\tau})| \sim \sqrt{D\tau}$ . La dernière intégration sur le temps donne alors un terme en  $t^{3/2}$ . On obtient finalement l'expression :

$$\langle e^{i\Phi} \rangle_{C,T} \approx e^{\frac{-e^2 k_B T \sqrt{D}}{\hbar^2 \sigma_D S} t^{3/2}} = e^{(-t/\tau_N)^{3/2}} \quad (2.27)$$

On obtient donc une relaxation non exponentielle de la phase mais qui est bien approximée par la fonction  $e^{-t/2\tau_N}$ . Le temps caractéristique de relaxation de phase du Cooperon est donc :

$$\tau_\varphi = 2\tau_N = \left( \frac{2\sqrt{2}\hbar^2 \sigma_D S}{e^2 k_B T \sqrt{D}} \right)^{2/3} \quad (2.28)$$

On voit qu'on obtient la même dépendance en température que pour  $\tau_{qp}$ . En fait les deux calculs effectués de façon rigoureuse donnent exactement le même résultat (2.28). La dépendance en température de la longueur de cohérence de phase nous renseigne donc directement sur les mécanismes responsables de la décohérence électronique.

### 2.5.3 Calcul dans le cas d'un fil quasi-1D

Nous allons maintenant réécrire ce résultat pour un fil quantique quasi-1D réalisé dans un gaz bidimensionnel d'électrons (hauteur nulle) de largeur  $W \ll L_\varphi$  et de longueur  $L$  comme ceux que nous avons étudiés expérimentalement. Dans cette géométrie bidimensionnelle il faut remplacer la section  $S$  dans (2.28) par la largeur du fil  $W$ . La conductivité est donnée par la formule d'Einstein :

$$\sigma_0 = e^2 \nu_0 D \quad (2.29)$$

$\nu_0$  est la densité d'états par unité de surface. Pour un gaz 2D on a  $\nu_0 = 2m^*/(\pi\hbar^2)$ . En injectant ces deux relations dans la formule (2.28) on obtient :

$$\tau_\varphi = 2 \left( \frac{\sqrt{D} m^* W}{\pi k_B T} \right)^{2/3} \quad (2.30)$$

Soit pour  $L_\varphi$ , qui est la grandeur que nous allons mesurer dans les expériences,

$$L_\varphi = \sqrt{D\tau_\varphi} = \sqrt{2} \left( \frac{D^2 m^* W}{\pi k_B T} \right)^{1/3} \quad (2.31)$$

## 2.6 Validité de la théorie de la localisation faible

La théorie de localisation faible s'applique au régime métallique diffusif qui est un régime de faible désordre caractérisé par  $k_F l_e \gg 1$ . En revanche, elle cesse d'être valable lorsqu'on augmente le désordre et que l'on s'approche du régime de localisation forte dans lequel les fonctions sont localisées exponentiellement sur une échelle  $\xi_{loc}$ .

On a vu que les corrections quantiques de localisation faible à la conductance sont d'ordre  $1/g$ . On peut montrer que cette théorie cesse d'être valable lorsque les corrections deviennent importantes, i.e quand  $g < 1$ . On entre alors dans le régime de localisation forte. C'est le critère de Thouless.

Comme on a  $g = \frac{\sigma_0}{G_Q} L^{d-2}$ . Ce critère montre qu'un conducteur quasi-1D ( $L_\varphi \gg W$ ) est toujours localisé au delà d'une certaine longueur appelée longueur de localisation :  $\xi_{loc}$ .

Ceci a été montré par l'étude des lois d'échelle entre conductance et longueur [17]. Il ressort que pour des tailles ( $L$  ou  $L_\varphi$ ) inférieures à  $\xi_{loc}$  la conductance d'un fil quasi-1D varie linéairement avec l'inverse de la longueur de l'échantillon (régime diffusif) et au delà la conductance décroît exponentiellement (régime localisé).

Nous allons voir maintenant que ce critère peut aussi se traduire sur une condition reliant  $L_\varphi$  et  $L_T$ . En effet pour un système quasi-1D, on peut montrer en reprenant l'expression (2.31) que si  $L_\varphi = L_T$  alors  $L_\varphi = \frac{\hbar}{e^2} \sigma_0 S$  et donc  $L_\varphi = L_T = \xi_{loc}$  car :

$$R(L_\varphi) = \frac{1}{\sigma_0} \frac{L_\varphi}{S} = R_Q \quad (2.32)$$

Un échantillon n'est donc conducteur que si  $L_\varphi > L_T$  sinon il entre dans le régime de localisation forte.

## 2.7 Situation expérimentale

Les interférences électroniques et la théorie de localisation faible ont été étudiées de façon intensive dans les fils métalliques quasi-1D et utilisées pour déterminer la longueur de cohérence de phase. A basse température ( $T < 1$  K) la loi en  $T^{-1/3}$  caractéristique de l'interaction électron-électron a été vérifiée jusqu'à 40 mK [6]. Les signes de saturation observés dans certaines expériences [18], qui indiquent de façon inattendue un temps de cohérence de phase fini à température nulle, semblent s'expliquer par la présence d'impuretés magnétiques dans les fils métalliques limitant la cohérence de phase grâce à un processus de retournement de spin [5, 6].

Dans les semi-conducteurs la situation n'est pas aussi bien comprise. Le problème de ces expériences est qu'elles nécessitent de bien connaître les paramètres intrinsèques du fil (largeur, libre parcours moyen) qui sont plus difficiles à déterminer que dans les métaux (sections 4.2 et 4.3). Les expériences sont moins nombreuses et la plupart de celles-ci, exploitant les fluctuations de conductance, l'effet Aharonov-Bohm ou la localisation faible, montrent une saturation du temps de cohérence de phase en dessous de 300 mK qui n'est pas comprise [19]. Cependant l'absence de saturation jusqu'à 150 mK dans la référence [20]

indique qu'il doit s'agir d'un mécanisme extrinsèque limitant la cohérence de phase comme les impuretés magnétiques dans le cas des métaux. De plus il n'existe aucune mesure de  $L_\varphi$  à aussi température que dans les métaux pour des fils quasi-1D. La seule observation à plus basse température a été faite dans des points quantiques et montre à nouveau une saturation en dessous de 100 mK [21]. Mais ce système est différent du fil puisqu'il est 0-dimensionnel et n'obéit pas à la même physique. Il n'est donc pas évident de conclure sur une saturation du temps de cohérence de phase dans les semi-conducteurs à très basse température.

Maintenant que nous avons rappelé quelques résultats pour un fil diffusif, nous allons étudier des effets de la géométrie non triviale de nos échantillons qui sont des réseaux carrés de fil quasi-1D.

# Chapitre 3

## Localisation faible dans les réseaux

Dans ce chapitre nous considérons les effets de localisation faible dans des réseaux carrés infinis comme celui de la figure 3.1. Un réseau est un objet macroscopique de taille  $L \gg L_\varphi$  que l'on peut représenter comme un ensemble de  $N = (L/L_\varphi)^2$  échantillons mésoscopiques de taille  $L_\varphi^2$  indépendants comportant chacun une réalisation particulière de désordre. Ainsi les phénomènes mésoscopiques sont moyennés sur le désordre. On a vu que dans ce cas seule la localisation faible est encore présente. Dans une telle géométrie la localisation faible se manifeste de deux façons : d'une part par les oscillations AAS dues à la géométrie annulaire, d'autre part par une magnétoconductance positive due à la pénétration du champ magnétique dans la largeur finie des fils composant le réseau.

### 3.1 Calcul des oscillations AAS dans un réseau

Nous présentons dans cette partie le calcul des oscillations AAS qui apparaissent dans la magnétoconductance du réseau. Pour cela nous allons tout d'abord considérer que les liens constituant le réseau ont une largeur nulle. Ceci élimine donc la magnétoconductance positive due à la pénétration du champ. On verra dans un deuxième temps comment inclure l'effet de la largeur finie des liens et retrouver la forme complète de la magnétoconductance observée expérimentalement. Nous allons nous concentrer sur le réseau carré mais l'approche présentée est valable pour toute géométrie de réseau.

Nous avons vu que les corrections de localisation faible à la conductivité peuvent s'écrire comme l'intégrale du Cooperon sur le volume du système considéré (équation (2.10)). Le calcul n'est donc pas simple dans le cas d'un réseau. Les premiers calculs pour un réseau régulier (dont tous les liens sont équivalents) ont été réalisés par Douçot et Rammal [22, 23]. Pascaud et Montambaux [24] ont ensuite montré que l'équation (2.10) pouvait être résolue de façon efficace et systématique en introduisant le déterminant spectral  $S(\gamma) = \det(\gamma - \Delta)$  du laplacien défini sur le réseau où le paramètre  $\gamma$  est relié à  $L_\varphi$  par  $\gamma = 1/L_\varphi^2$ . La relation entre la localisation faible et  $S(\gamma)$  est donnée par :

$$\langle \Delta\sigma \rangle = -\frac{2e^2}{\pi\hbar} \frac{1}{\text{Vol}} \frac{\partial}{\partial \gamma} \ln S(\gamma) \quad (3.1)$$

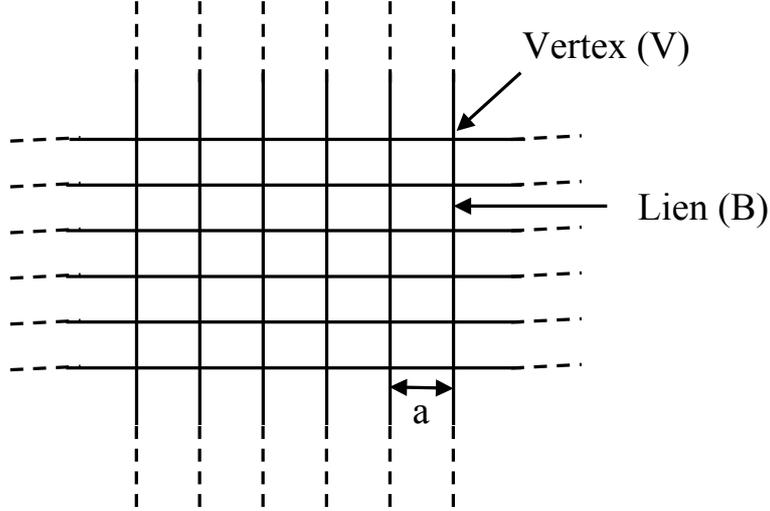


FIG. 3.1 – Réseau carré de pas  $a$  contenant B liens et V vertex.

L'efficacité de cette approche repose sur le fait que  $S(\gamma)$  s'exprime de manière systématique pour n'importe quel réseau comme le déterminant d'une matrice contenant toute l'information sur le réseau. La formule (3.1) permet de calculer numériquement la magnétoconductance d'un réseau. Elle peut également être analysée à l'aide d'un développement analytique sous la forme d'une somme de contributions des orbites périodiques  $\mathcal{C}$  [25, 26] dans lequel les trajectoires décrivant les interférences électroniques interviennent explicitement :

$$\frac{\partial}{\partial \gamma} \ln S(\gamma) = \frac{\mathcal{L}}{2\sqrt{\gamma}} + \frac{V - B}{2\gamma} + \frac{1}{2\sqrt{\gamma}} \sum_{\mathcal{C}} l(\tilde{\mathcal{C}}) \alpha(\mathcal{C}) e^{-\sqrt{\gamma}l(\mathcal{C}) + i\theta(\mathcal{C})} \quad (3.2)$$

$B$  est le nombre de liens et  $V$  le nombre de vertex (Fig. 3.1).  $\mathcal{L}$  est le volume du réseau c'est à dire la longueur totale de tous les fils. L'orbite  $\mathcal{C}$  décrit l'ensemble des chemins fermés équivalents par permutation circulaire  $(i_1, i_2, \dots, i_n)$  où  $i_1, i_2, \dots, i_n$  désignent les liens orientés. Chaque orbite est affectée d'un poids  $\alpha(\mathcal{C}) = \epsilon_{i_1 i_2} \epsilon_{i_2 i_3} \dots \epsilon_{i_n i_1}$  où les  $\epsilon_{ij}$  sont les amplitudes de transmission pour deux liens orientés consécutifs arrivant à un vertex et en repartant tels que :

$$\begin{aligned} \epsilon_{ij} &= \frac{2}{m_\alpha} - 1 & \text{si} & \quad \alpha \begin{array}{c} \rightarrow i \\ \bullet \\ \leftarrow j=i \end{array} \\ &= \frac{2}{m_\alpha} & \text{si} & \quad \alpha \begin{array}{c} \nearrow i \\ \bullet \\ \searrow j \end{array} \\ &= 0 & \text{sinon} & \end{aligned} \quad (3.3)$$

$m_\alpha$  est la coordinance du vertex. La longueur d'une orbite est notée  $l(\mathcal{C})$  et le flux réduit compris dans cette orbite  $\theta(\mathcal{C}) = 4\pi\phi(\mathcal{C})/\phi_0$ .  $\tilde{\mathcal{C}}$  est l'orbite primitive associée à  $\mathcal{C}$ . Une

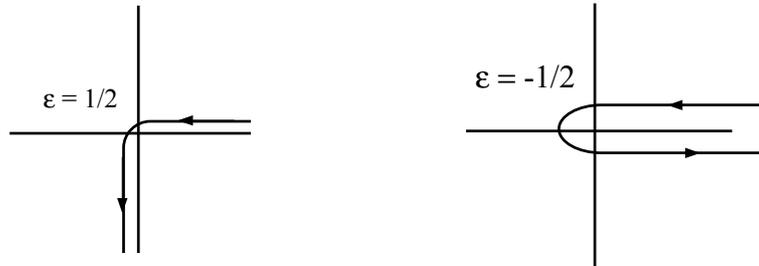
orbite est dite primitive si elle ne peut pas être décomposée en une répétition d'orbites plus petites. A partir de cette formule générale on peut calculer le développement en orbites périodiques pour le réseau carré.

## 3.2 Oscillations AAS dans le réseau carré

Afin d'utiliser la formule (3.2) sur un réseau régulier on peut organiser le développement des orbites en fonction du flux qu'elles englobent  $\theta(\mathcal{C})$ . Notons  $\Phi$  le flux par cellule élémentaire. Chaque famille oscille donc avec sa propre périodicité. En procédant ainsi on calcule en fait l'amplitude de chaque composante de Fourier des oscillations AAS.

### Calcul du premier terme

Nous allons voir maintenant comment calculer le premier terme de ce développement dans le cas particulier du réseau carré. Le développement en orbites présenté dans cette thèse a été calculé par Christophe Texier (C.T.) et Gilles Montambaux (G.M.). Dans le réseau carré il n'y a que deux possibilités pour les transmissions : l'électron est soit transmis, soit réfléchi.



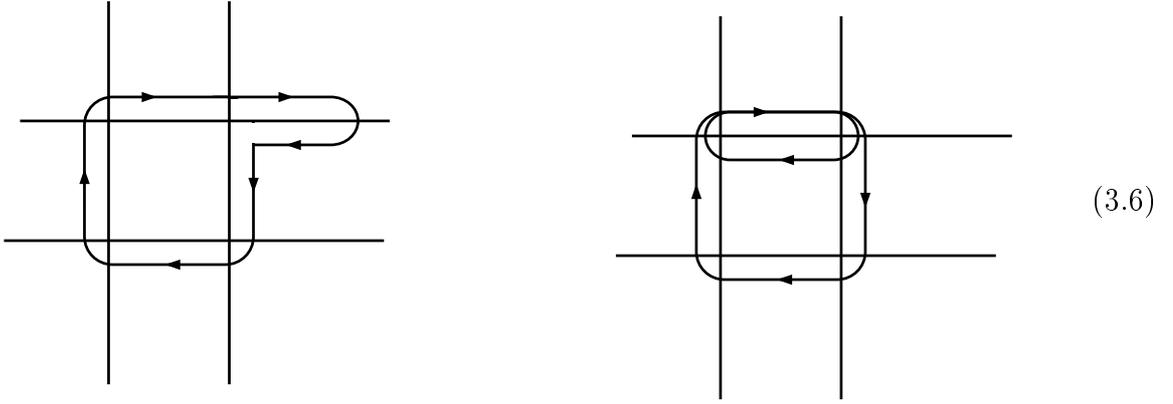
$$(3.4)$$

Si nous nous intéressons aux trajectoires responsables de la périodicité  $\phi_0/2$  il faut calculer les termes correspondant aux orbites encerclant une seule cellule élémentaire. La plus petite orbite enserrant un flux est celle qui fait le tour d'un carré de longueur  $4a$  ( $\mathcal{C}_+$ ) et la même renversé par le sens du temps ( $\mathcal{C}_-$ ) (car les liens sont orientés). La transmission est  $1/2$  à chaque vertex donc  $\alpha(\mathcal{C}_\pm) = (\frac{1}{2})^4$ . La différence entre ces deux trajectoires est que le flux englobé sera opposé ( $\theta(\mathcal{C}_+) = -\theta(\mathcal{C}_-)$ ). Le premier terme du développement pour l'harmonique  $\phi_0/2$  est donc :

$$l(\tilde{\mathcal{C}})\alpha(\mathcal{C})e^{-\sqrt{\gamma}l(\mathcal{C})}(e^{i\theta(\mathcal{C})} + e^{-i\theta(\mathcal{C})}) = 4a\left(\frac{1}{2}\right)^4 e^{-\frac{4a}{L\varphi}} 2 \cos\left(4\pi\frac{\phi}{\phi_0}\right) \quad (3.5)$$

### Calcul du deuxième terme : avantage du réseau

Le terme suivant dans le développement de cette harmonique est relié aux trajectoires englobant le même flux mais de longueur  $6a$  :



Il est intéressant de regarder les orbites correspondant à une période d'oscillations  $\phi_0/4$ . Ce sont des orbites qui encerclent deux cellules élémentaires. Dans un ensemble d'anneaux de type "collier" la seule solution est de faire deux fois le tour de l'anneau et de parcourir un chemin de taille  $8a$  alors que dans un réseau l'orbite peut encercler deux cellules adjacentes et parcourir un chemin de taille  $6a$  (Fig. 3.2). Pour un  $L_\varphi$  donné, le contenu en harmoniques du réseau est donc plus riche que celui de la série d'anneau car la deuxième harmonique décroît en  $e^{-6a/L_\varphi}$  au lieu de  $e^{-8a/L_\varphi}$ .

### Résultat final

Le dénombrement des orbites a ainsi été effectué jusqu'à l'ordre 2 pour les 3 premières harmoniques ce qui donne comme résultat :

$$\begin{aligned}
 \langle \Delta\sigma(\phi, L_\varphi) \rangle = & -\frac{e^2}{\pi\hbar} \frac{L_\varphi}{2} \left[ 2 - \frac{L_\varphi}{a} + e^{-2a/L_\varphi} + \frac{7}{4} e^{-4a/L_\varphi} + \frac{5}{2} e^{-6a/L_\varphi} + \dots \right. \\
 & + \frac{1}{2} \cos(\theta) e^{-4a/L_\varphi} \left( 1 - \frac{3}{2} e^{-2a/L_\varphi} + \dots \right) \\
 & + \frac{3}{8} \cos(2\theta) e^{-6a/L_\varphi} \left( 1 - \frac{19}{12} e^{-2a/L_\varphi} + \dots \right) \\
 & \left. + \frac{3}{8} \cos(3\theta) e^{-8a/L_\varphi} \left( 1 - \frac{15}{8} e^{-2a/L_\varphi} + \dots \right) + \dots \right] \quad (3.7)
 \end{aligned}$$

La première ligne de ce développement correspond aux orbites qui n'englobent pas de flux. Elles n'interviennent pas pour les oscillations AAS mais elles jouent un rôle dans l'enveloppe



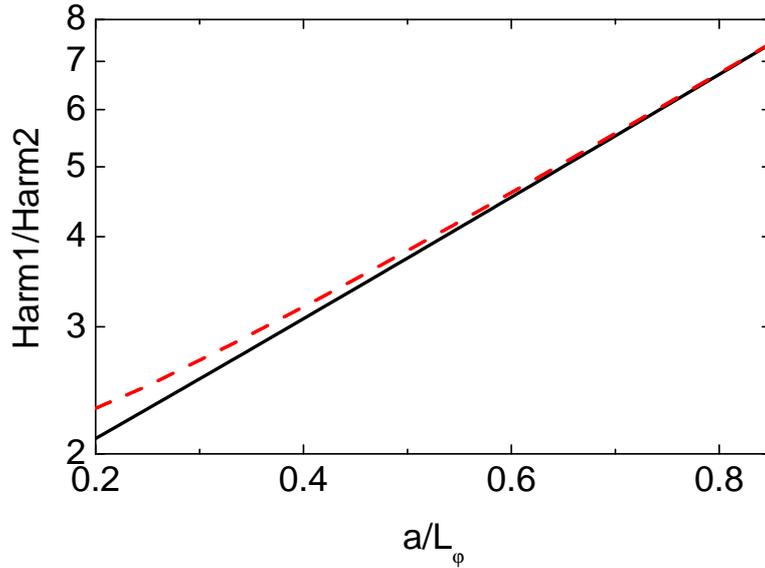


FIG. 3.3 – Rapport des deux premières harmoniques des oscillations AAS. En trait plein le rapport calculé au 1er ordre grâce au développement limité (3.7), en pointillés le résultat du calcul numérique de la magnétoconductance.

harmoniques du réseau carré analytiquement à partir de (3.7) ou bien numériquement à partir de (3.1). Le calcul analytique au premier ordre donne :

$$R_{12} = \frac{4}{3}e^{\frac{2a}{L_\phi}} + \frac{1}{9} + \dots \quad (3.8)$$

On voit sur la figure 3.3 qui montre à la fois le résultat de ce calcul et celui du calcul numérique que le développement limité est satisfaisant jusqu'à  $L_\phi/a \approx 2$ .

### 3.4 Magnétoconductance positive du réseau carré

Outre les oscillations AAS le Cooperon est responsable d'une magnétoconductance positive pour le réseau à cause de la largeur finie des fils. Comme nous l'avons vu précédemment le champ magnétique détruit les effets de localisation faible dans un fil en introduisant un taux de déphasage effectif supplémentaire (2.12) .

Pour reconstruire la magnétoconductance complète du réseau il suffit de remplacer  $L_\phi$  par  $L_\phi(\phi)$  dans l'expression  $\langle \Delta\sigma(\phi, L_\phi) \rangle$  . On peut donc formellement séparer les deux effets du champ magnétique en écrivant la conductance  $\langle \Delta\sigma(\phi, L_\phi(\phi)) \rangle$ . Les oscillations AAS sont données par la fonction  $\langle \Delta\sigma(\phi, L_\phi(0)) \rangle$  et l'enveloppe *externe* de magnétoconductance positive par la fonction  $\langle \Delta\sigma(0, L_\phi(\phi)) \rangle$  (Fig. 3.4).

Ainsi on peut retrouver l'enveloppe de la courbe grâce au développement limité précédent en injectant le  $L_\phi(B)$  de la formule (2.12) (Fig. 3.4). Cependant il est possible de

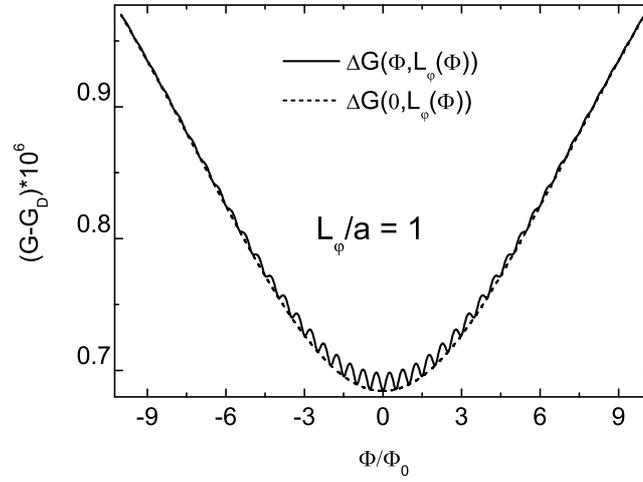


FIG. 3.4 – Magnétoconductance calculée à partir de la formule (3.7), (3.9) et (2.12) pour  $W_{\text{eff}} = 0.09a$  et  $L_\varphi = a$ .

calculer le déterminant spectral de façon exacte en champ nul pour un réseau carré. Ce calcul réalisé par C.T. et G.M. donne :

$$\langle \Delta\sigma(0, L_\varphi(\phi)) \rangle = -\frac{e^2 L_\varphi}{h S} \left[ \coth \frac{a}{L_\varphi} - \frac{L_\varphi}{a} + \frac{2}{\pi} \tanh \frac{a}{L_\varphi} K \left( \frac{1}{\cosh \frac{a}{L_\varphi}} \right) \right] \quad (3.9)$$

où  $K(x)$  est l'intégrale elliptique complète du premier type et  $S$  est la section des fils composant le réseau à  $d = 3$ , la largeur des fils à  $d = 2$  et 1 à  $d = 1$ .

On peut vérifier que dans la limite  $a \gg L_\varphi$  on retrouve la limite 1D  $\langle \Delta\sigma(0, L_\varphi) \rangle \simeq -\frac{e^2}{\pi h} L_\varphi$ , alors que dans la limite  $L_\varphi \gg a$  on obtient  $\langle \Delta\sigma(0, L_\varphi) \rangle \simeq -\frac{e^2}{\pi^2 h} a \ln(L_\varphi/a)$  qui est réminiscent de la magnétoconductance d'un plan.



# Chapitre 4

## Détermination de la Longueur de Cohérence de Phase dans un Réseau Carré de GaAs/AlGaAs

Nous avons utilisé la théorie de localisation faible développée précédemment pour les réseaux afin de déterminer  $L_\varphi$  sans paramètre ajustable dans des réseaux carrés réalisés dans un gaz bidimensionnel d'électrons d'une hétérojonction GaAs/AlGaAs [27]. En effet la longueur de cohérence de phase a été intensivement étudiée dans les métaux et il existe un très bon accord entre la théorie et les expériences [6]. De même les oscillations AAS ont été observées dans des réseaux métalliques [28, 29]. Cependant il n'existe pas de mesures dans les 2DEG à basse température ( $T < 0.2\text{K}$ ) [20, 30, 31, 32]. Il est important de tester cette théorie dans ces systèmes qui présentent des paramètres physiques très différents des métaux : très peu de canaux de conduction et très grande longueur d'écrantage.

### 4.1 Les hétérojonctions

Les réseaux d'anneaux ont été réalisés dans une hétérojonction GaAs/GaAlAs fabriquée par D. Mailly et B. Etienne au LPN<sup>1</sup>. Cette hétérojonction est constituée de deux semi-conducteurs de bandes interdites différentes. Le bas de la bande de conduction du GaAs étant plus bas que celui du AlGaAs les électrons ont tendance à s'échapper de la couche AlGaAs pour peupler le GaAs. Les atomes donneurs de silicium implantés dans le AlGaAs qui ont perdu un électron se retrouvent alors chargés positivement. Ceci crée un champ électrique qui ramène les électrons vers la couche de AlGaAs. Sous ces deux effets les électrons se retrouvent confinés à l'interface des deux couches semi-conductrices dans un puits de potentiel comme présenté sur la figure 4.1. Les électrons piégés dans une direction de l'espace forment alors un plan dont l'épaisseur est inférieure à la longueur d'onde de Fermi  $\lambda_F$ . On parle alors de gaz bidimensionnel d'électrons (2DEG).

---

<sup>1</sup>Laboratoire de Photonique et Nanostructures, Marcoussis.

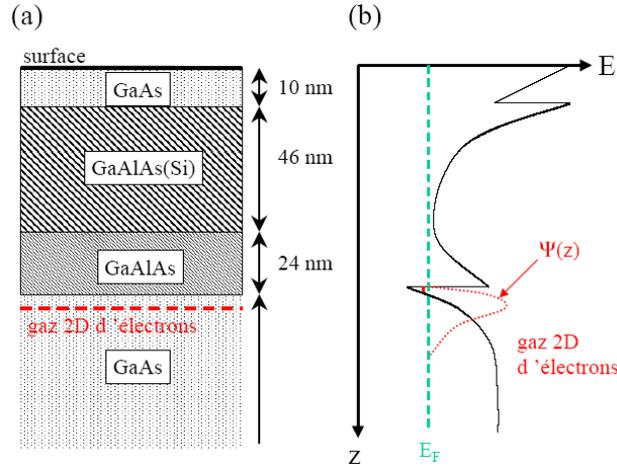


FIG. 4.1 – (a) schéma de l'hétérojonction semi-conductrice. (b) Potentiel ressenti par les électrons. Le puits de potentiel se forme à l'interface, la fonction d'onde électronique a donc une extension finie suivant  $z$ , il se forme un gaz bidimensionnel d'électrons (2DEG). Les impuretés (Si) sont séparées spatialement du 2DEG.

Le désordre vu par les électrons est créé par les donneurs (Si). Ces ions créent un potentiel aléatoire au niveau du 2DEG assez faible car ils sont situés à une grande distance du gaz d'électrons (Fig. 4.1). Ceci explique les grandes valeurs de libre parcours moyen et donc de mobilité électronique observées dans les hétérojonctions :  $l_e \approx 10 \mu\text{m}$  et  $\mu_e \approx 10^6 \text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ .

## 4.2 Réalisation des réseaux

Les réseaux carrés de fils sont réalisés dans ces hétérojonctions par des techniques de lithographie électronique et de gravure ionique réactive. D. Mailly a ainsi réalisé des réseaux de  $10^6$  anneaux de  $1 \mu\text{m}$  de côté et de largeur gravée  $W_0 = 500\text{nm}$  recouvrant une surface de  $1 \text{mm}^2$  (Fig. 4.2). En fait la largeur réelle des fils ne peut pas être mesurée directement. En effet lors de la gravure on enlève une partie des donneurs des couches exposées afin de modifier le potentiel de confinement des électrons et de créer une déplétion aux endroits gravés. Ainsi la largeur électronique des fils ( $W$ ) est différente de la largeur du masque de gravure (généralement on a  $W < W_0$ ). On ne peut donc pas considérer la largeur des fils ni la densité électronique comme des paramètres fixés d'avance, ce qui rend l'analyse des données de localisation faible plus difficile dans les semi-conducteurs que dans les métaux.

Une grille électrostatique en or est ensuite déposée sur l'hétérojonction  $100\text{nm}$  au dessus du 2DEG afin de pouvoir moduler la densité électronique du réseau.

Les expériences ont été réalisées sur deux réseaux notés A et B. L'échantillon A était connecté dans la géométrie  $R_{12,12}$  et l'échantillon B dans la géométrie  $R_{14,14}$  suivant les notations définies sur la figure 4.2. La grille électrostatique du réseau A n'était pas connectée.

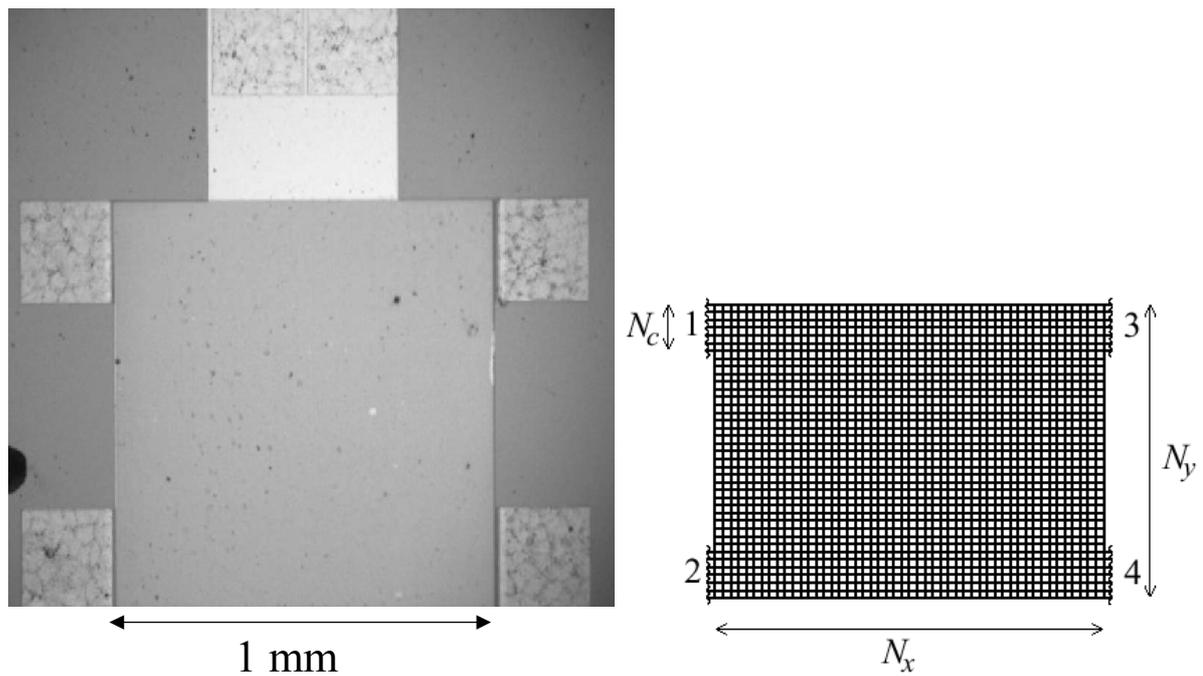


FIG. 4.2 – A gauche : photo d'un réseau utilisé pour les mesures de  $L_\varphi$  avec 4 contacts ohmiques. Le contact du haut est relié à une grille métallique déposée sur l'isolant qui recouvre le 2DEG. A droite : réseau de  $N_x \times N_y$  cellules possédant 4 électrodes connectées à  $N_c$  liens. Chaque contact occupe 10% des liens sur un côté comme dans nos expériences. Pour le réseau A la résistance est mesurée par les contacts 1 et 2, on la note  $R_{12,12}$ . La résistance du réseau B est mesurée entre 1 et 4, on la note  $R_{14,14}$ .

Dans la suite, sauf indication, les données expérimentales réfèrent à l'échantillon A.

## 4.3 Caractéristiques des réseaux

### 4.3.1 Densité électronique

Nous avons déterminé la densité électronique ( $n_e$ ) dans les réseaux par des mesures d'effet Shubnikov-de Haas [33]. Cette information est très intéressante dans un gaz bidimensionnel d'électrons car  $n_e$  est directement reliée au vecteur d'onde de Fermi  $k_F$  par la formule :

$$k_F^2 = \frac{4}{s} \pi n_e \quad (4.1)$$

où  $s$  est la dégénérescence de spin.

Pour déterminer  $n_e$  nous avons donc mesuré la magnétorésistance des échantillons. Sous l'effet du champ magnétique le spectre d'énergie des électrons est quantifié, ils se répartissent en niveaux de Landau donnés par :

$$E_n = (n + \frac{1}{2}) \hbar \omega_c \quad (4.2)$$

où  $n$  est un entier et  $\omega_c = \frac{eB}{m^*}$  est la fréquence cyclotron. Les trajectoires classiques associées à ces énergies correspondent à des orbites cyclotrons. En passant du niveau  $n$  à  $n + 1$  le flux englobé par l'orbite augmente de  $\phi_0$ .

Du point de vue du transport on observe un maximum de conductance quand un niveau de Landau traverse le niveau de Fermi et un minimum quand le niveau de Fermi est au milieu de 2 niveaux de Landau puisque la conductance est proportionnelle à la densité d'états au niveau de Fermi. La conductance oscille donc en fonction de l'inverse du champ magnétique avec une période  $\Delta$  :

$$\Delta (1/B) = \frac{2e}{\hbar n_e} \quad (4.3)$$

La figure 4.3 montre une courbe de magnétorésistance pour l'échantillon A de laquelle nous déduisons une densité électronique  $n_e = 4.4 \times 10^{15} \text{m}^{-2}$ . Les valeurs obtenues pour les différents échantillons en fonction de la tension de grille sont regroupées dans le tableau 4.1.

### 4.3.2 Largeur, libre parcours moyen et liens coupés

Les autres paramètres des réseaux  $W$ ,  $l_e$  ne peuvent pas être déterminés directement. Ils sont extraits des mesures de localisation faible décrites dans la prochaine section. En effet pour un réseau la conductance est donnée par :

$$G = \frac{e^2 k_F W l_e}{h L_{\text{eff}}} \quad (4.4)$$

$V_g$	-0.3 V	0 V	+0.3 V
échantillon A		$4.4 \cdot 10^{11}$	
échantillon B	$3.7 \cdot 10^{11}$	$4.5 \cdot 10^{11}$	$5 \cdot 10^{11}$

TAB. 4.1 – Densité électronique en  $\text{cm}^{-2}$  mesurée par effet Shubnikov-de Haas dans les deux échantillons utilisés pour les mesures de localisation faible.

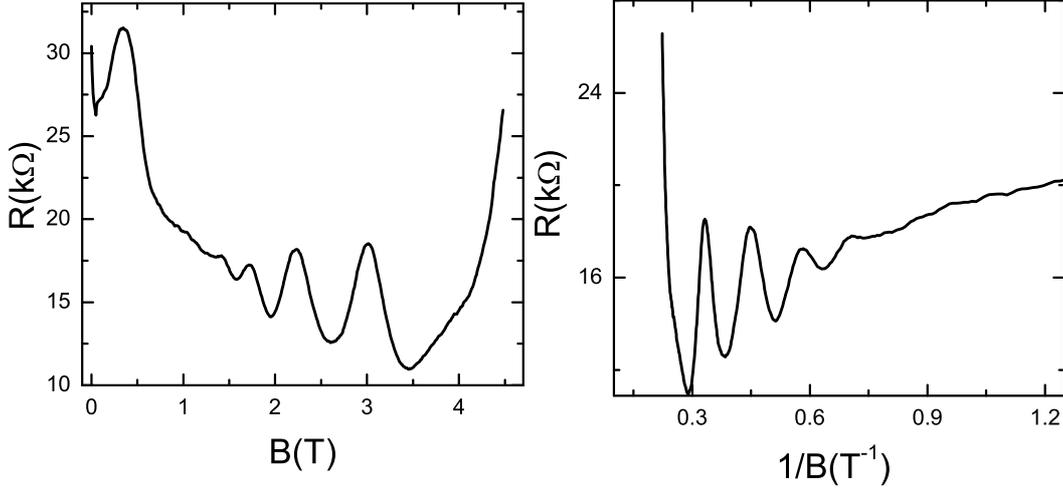


FIG. 4.3 – A gauche : résistance en fonction du champ magnétique. A droite : Résistance en fonction de l'inverse du champ. La périodicité  $0.11 \text{ T}^{-1}$  correspond à une densité électronique de  $4.4 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ .

où  $L_{\text{eff}}$  dépend de la géométrie du réseau et de la façon dont il est connecté (nombre de liens connectés et symétrie des contacts) (Fig. 4.2).

Ceci résulte de la combinaison de toutes les résistances de chaque lien suivant les lois d'addition des résistances classiques. Ce calcul a été effectué numériquement par C.T. pour différentes sortes de contacts. Le calcul donne pour un réseau carré de  $N \times N$  cellules, contacté par les électrodes 1 et 2 (Fig. 4.2) une résistance qui évolue comme :

$$R_{12,12}/R_{\text{lien}} = \frac{L_{\text{eff}}}{a} = 3.25 + 15.33/N \quad \text{pour } N_c = N/10 \quad (4.5)$$

où  $R_{\text{lien}}$  est la résistance d'un lien. La résistance entre les points 1 et 4 vaut :

$$R_{14,14}/R_{\text{lien}} = \frac{L_{\text{eff}}}{a} = 3.48 + 15.26/N \quad (4.6)$$

Cependant il peut y avoir un nombre assez important de liens coupés dans le réseau ce qui modifie grandement cette valeur. Il est possible d'évaluer classiquement l'effet de liens coupés sur la résistance du réseau en injectant de façon aléatoire un certain nombre

de liens de conductance nulle. La résistance calculée jusqu'à des concentrations de liens coupés de 30% dépend très peu de la taille du réseau. L'évolution de la résistance avec cette concentration est représentée sur la figure 4.4.

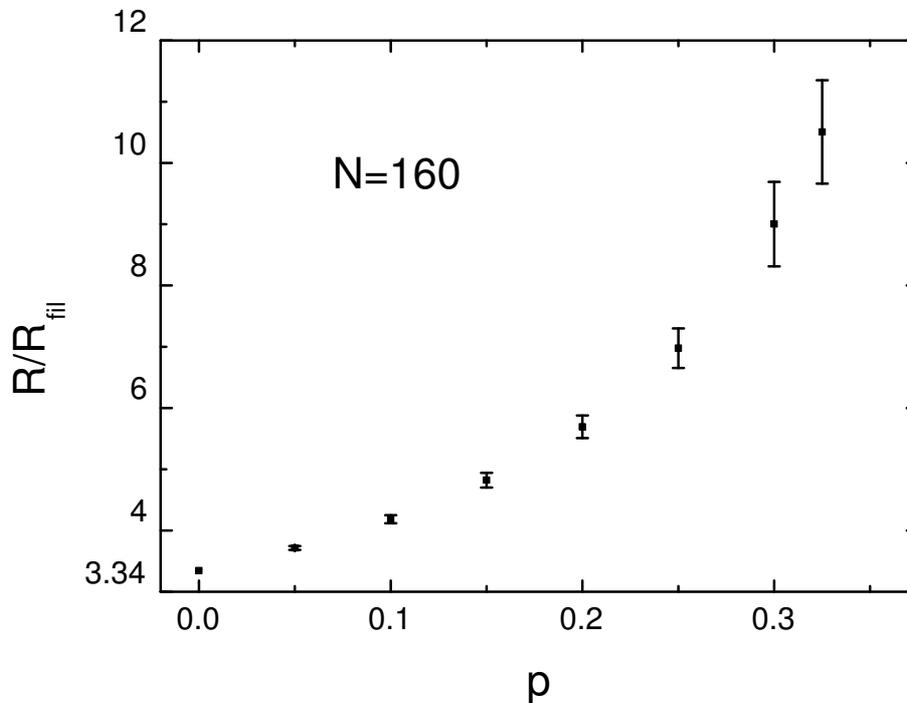


FIG. 4.4 – Calcul numérique de la résistance du réseau de  $N \times N$  cellules calculée entre les contacts 1 et 2 ( $N_c = N/10$ ) en fonction de la concentration de liens coupés pour une taille  $N=160$ . Cette courbe permet de déduire le nombre de lien coupé à partir de la résistance mesurée à condition de connaître  $W$  et  $l_e$ . Les barres indiquent les fluctuations de la résistance pour chaque distribution de liens coupés.

Comme on ne connaît pas a priori la densité de liens coupés une mesure de conductance d'un réseau nous donnera donc uniquement le rapport  $\frac{Wl_e}{L_{\text{eff}}}$ .

#### 4.4 Mesure directe de $L_\varphi$

Nous allons voir maintenant comment extraire  $L_\varphi$  sans paramètre ajustable à partir de la magnétoconductance des réseaux dans le régime de localisation faible. Sur la figure 4.5 représentant la magnétoconductance entre  $-60$  G et  $60$  G d'importantes oscillations AAS sont visibles. La période de  $12.6$  G correspond à un flux  $\phi_0/2$  dans un anneau carré du réseau d'aire  $a^2 = 1\mu\text{m}^2$ . Il ressort clairement que ces oscillations ne sont pas de pures sinusoïdes ce qui traduit un important contenu en harmoniques plus élevées de la période  $\phi_0/2$ . En effet à  $25$  mK trois harmoniques sont présentes dans le spectre de Fourier de

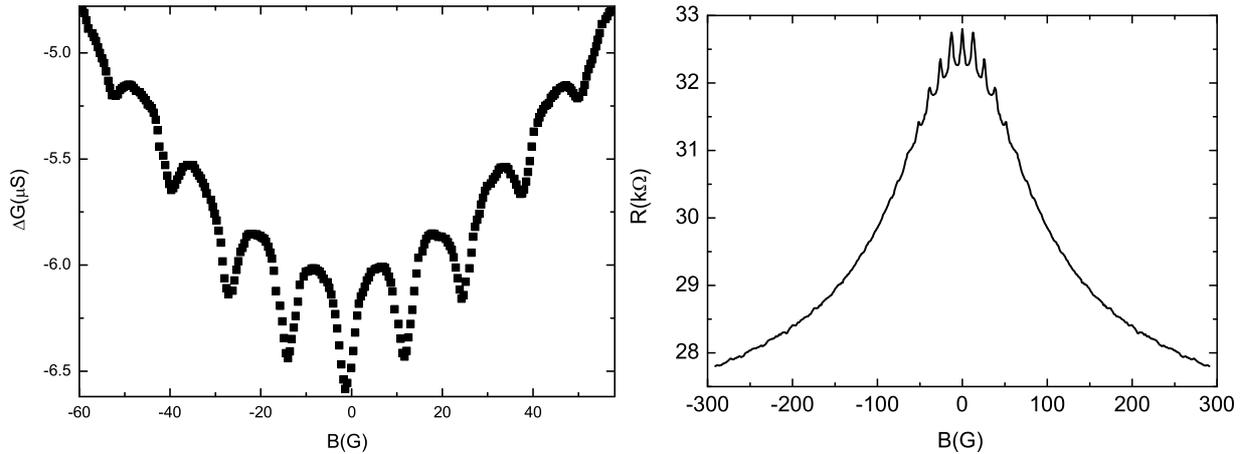


FIG. 4.5 – Magnétoconductance d'un réseau à 25 mK présentant des oscillations AAS de période 12.5 G correspondant à un flux  $\phi_0/2$  dans un carré de  $1 \mu\text{m}$  de côté.

la magnétoconductance (Fig. 4.6). Pour un gamme de champ plus forte (Fig. 4.5) entre  $-300$  G et  $300$  G les oscillations disparaissent au delà de  $60$  G. On voit alors clairement la magnétoconductance positive qui correspond à la localisation faible dans les fils constituant le réseau qui est détruite par la pénétration du flux dans la largeur finie des fils. A plus hautes températures les oscillations AAS disparaissent complètement, il ne reste plus alors que la magnétoconductance positive de plus faible amplitude (Fig. 4.9).

### Rapport $R_{12}$ et élargissement des harmoniques 1 et 2

Pour extraire  $L_\varphi$  sans paramètre ajustable il faut analyser les données à bas champs présentant de fortes oscillations AAS. Comme on le voit sur la figure 4.6 la transformée de Fourier des courbes de magnétoconductance présente plusieurs pics de largeur finie. Cette largeur peut s'expliquer par la pénétration du champ dans la largeur finie des fils qui va réduire la longueur de cohérence du Cooperon comme on l'a vu dans le paragraphe précédent et faire disparaître les oscillations AAS à fort champ. Cette extinction des oscillations avec le flux se traduit dans le spectre de Fourier par un élargissement des pics correspondant aux différentes harmoniques. Une distribution de longueur des fils pourrait aussi expliquer ce phénomène car chaque anneau aurait alors une période légèrement différente des autres. La TF constitue un histogramme des périodes. Une dispersion des périodes élargit évidemment les harmoniques.

Nous avons vérifié numériquement, en insérant l'effet de largeur finie dans la correction de localisation faible (équation 2.12), que la valeur des élargissements observés correspond bien à un élargissement causé par la largeur finie des fils. Dans la suite nous avons donc uniquement considéré cet élargissement et éliminé l'effet de distribution de taille.

On peut calculer analytiquement à partir de (3.7) que l'élargissement des pics dû à la pénétration du champ magnétique dans les fils ne modifie pas l'aire des pics (voir annexe

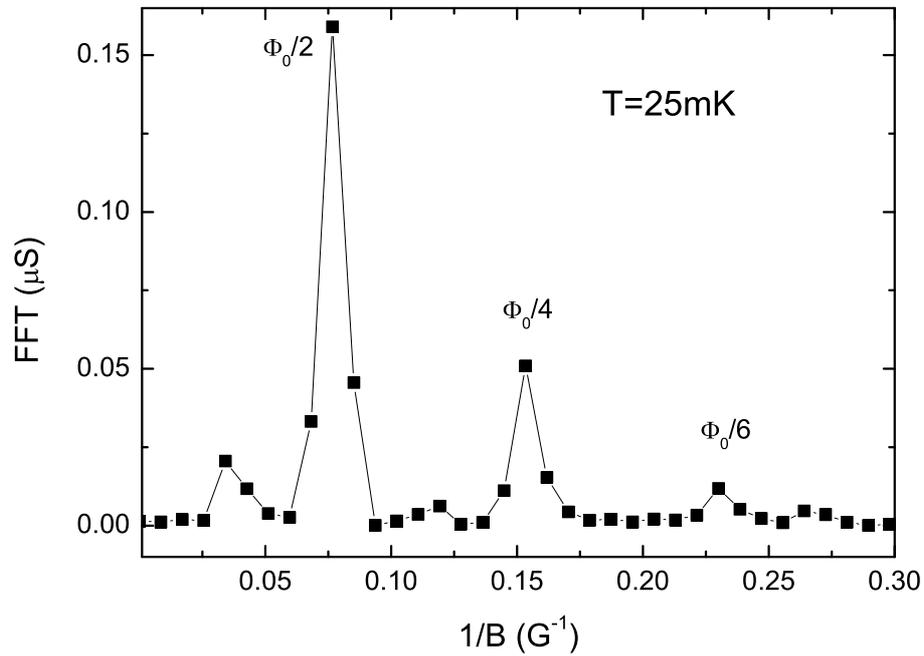


FIG. 4.6 – FFT numérique de la magnétoconductance à 25 mK après soustraction d'une enveloppe moyenne. Les 3 pics correspondent à des périodicités  $\phi_0/2$ ,  $\phi_0/4$  et  $\phi_0/6$ . Le premier petit pic en  $1/B=0.04$  correspond à l'harmonique  $\phi_0$  car la moyenne sur le désordre n'est pas parfaite même avec  $10^6$  cellules.

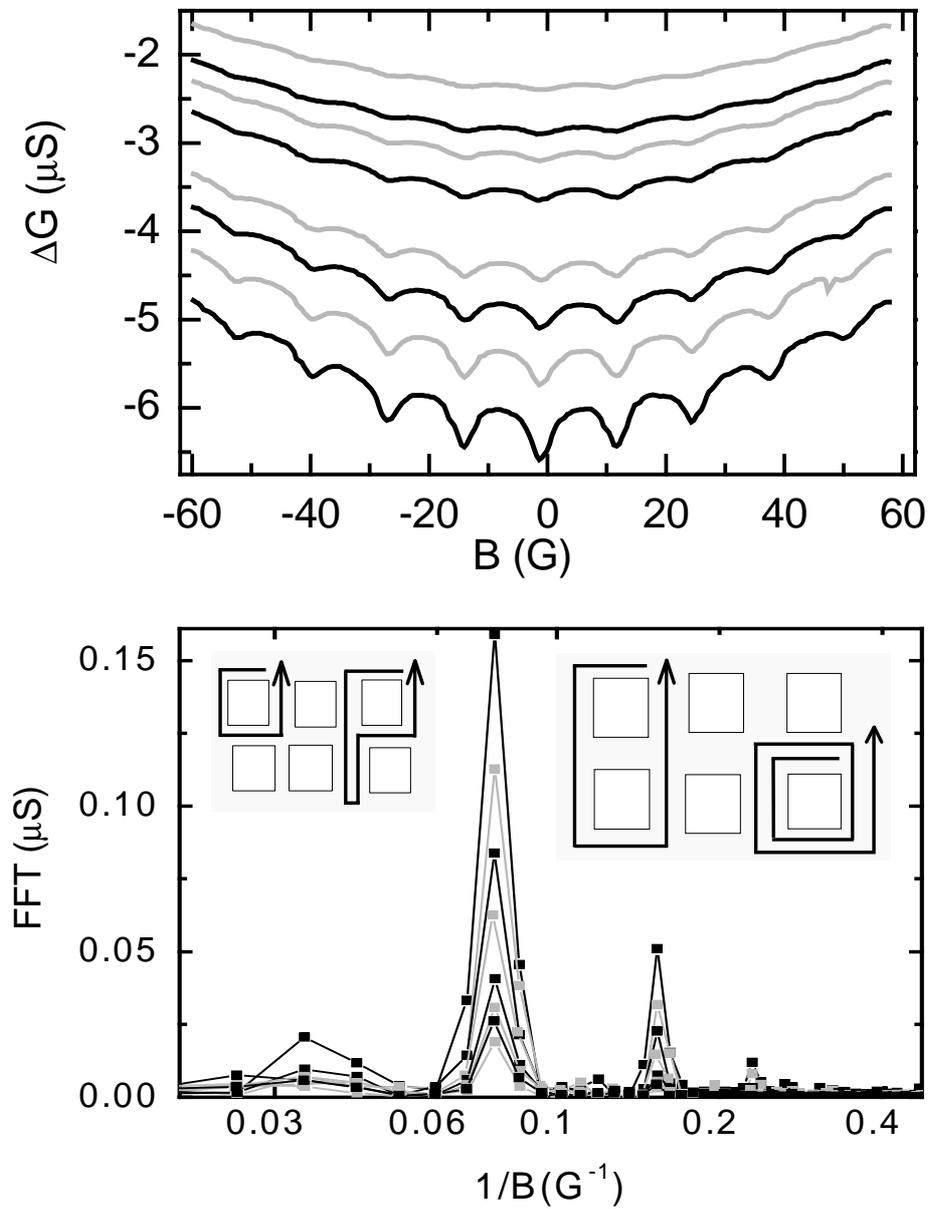


FIG. 4.7 – FFT numérique de la magnetoconductance à différentes températures de 25 mK à 220 mK.

B). C'est pourquoi il convient de considérer le rapport des aires des deux premiers pics ( $R_{12}$ ) afin de le comparer à la valeur calculée numériquement.

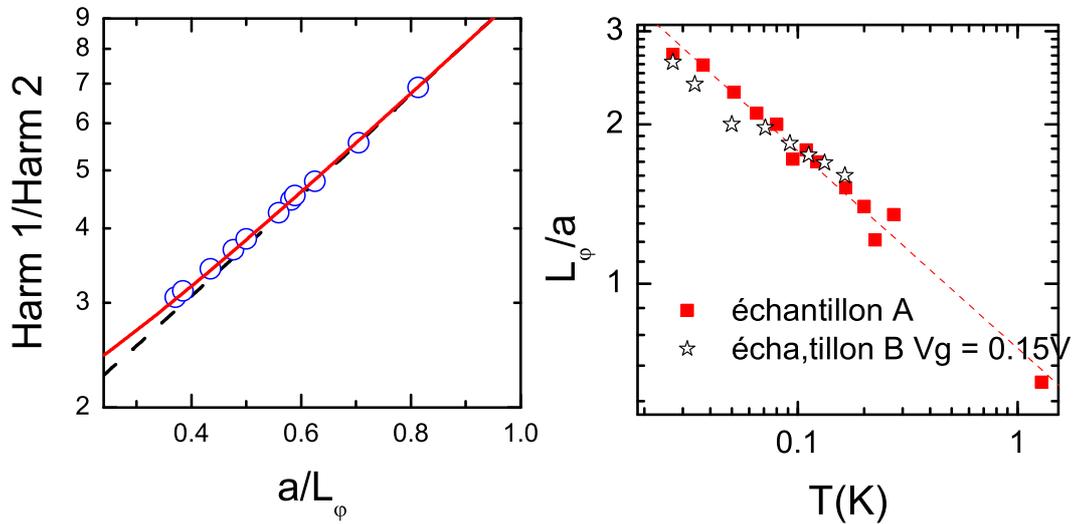


FIG. 4.8 – Reconstitution de la courbe  $L_\varphi(T)$ . A gauche la courbe théorique 3.3 sur laquelle est reportée les rapports des harmoniques déterminés expérimentalement ( $\circ$ ) afin de lire la valeur  $L_\varphi/a$  correspondante. A droite la courbe  $L_\varphi(T)$  ainsi reconstituée pour deux échantillons en échelle log-log. La droite est l'ajustement linéaire pour l'échantillon A qui donne une pente de  $-0.36$ .

### Relation entre $R_{12}$ et $L_\varphi$

Une fois ce rapport  $R_{12}$  obtenu, il suffit de se reporter à la courbe de la figure 3.3 pour extraire la valeur  $\frac{L_\varphi}{a}$  correspondant. On obtient ainsi la dépendance en température de  $L_\varphi$  en réalisant ce traitement pour chaque courbe de magnétoconductance mesurée entre 25 mK et 250 mK (Fig. 4.7). On trouve finalement (Fig. 4.8) :

$$L_\varphi \propto T^{-x} \text{ avec } x = 0.36 \pm 0.05 \quad (4.7)$$

Cet exposant est compatible avec la théorie AAK qui prédit un exposant  $1/3$  pour un système diffusif unidimensionnel dans lequel la décohérence se fait par les interactions électron-électron (voir la discussion de la section 2.5.3).

## 4.5 Détermination des autres paramètres de transport

### 4.5.1 Détermination de $W$ et $l_e$

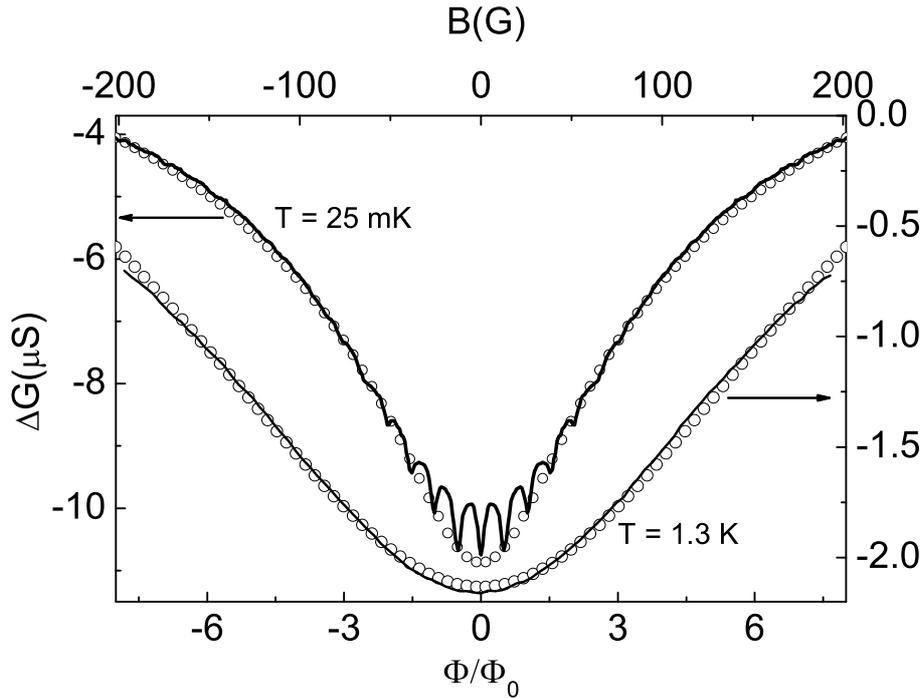


FIG. 4.9 – Magnétoconductance fort champ. Les lignes continues sont les données expérimentales, les points sont les ajustements avec la formule (3.9). A 30 mK les paramètres sont  $l_e$  et  $W$ . A 1.3 K les paramètres sont  $L_\varphi$  et  $l_e$ .

Une fois  $L_\varphi$  déterminé il est possible d'extraire  $W$  et  $l_e$  à partir de l'enveloppe de localisation faible. Nous avons utilisé les équations (3.9) et (2.12) pour des conditions aux

limites spéculaires c'est à dire un paramètre  $C_1 = 9.5$ . Il semble que ce sont les bonnes conditions pour les fils réalisés dans ce type d'hétérojonctions [34, 20]. On peut alors ajuster par cette formule l'enveloppe extérieure de la courbe  $\Delta G/G_D = \Delta\sigma/\sigma_D$  où  $G_D$  et  $\sigma_D$  sont respectivement la conductance et la conductivité de Drude (Fig. 4.9).  $G_D$  est évaluée à fort champ quand la localisation faible est détruite. Cependant d'autres phénomènes peuvent alors intervenir comme les oscillations Shubnikov-de Haas qui modifient aussi la conductance. La valeur de  $G_D$  est donc approximative.

L'ajustement de la courbe dépend de 2 paramètres  $W$  et  $l_e$ . En effet, la conductivité de Drude est donnée par  $\sigma_D = \frac{e^2}{h} k_F l_e$  ce qui donne en utilisant la formule 3.9 à  $d = 2$  :

$$\frac{\Delta G}{G_D} = -\frac{L_\varphi(\phi)}{W k_F l_e} \left[ \coth \frac{a}{L_\varphi(\phi)} - \frac{L_\varphi(\phi)}{a} + \frac{2}{\pi} \tanh \frac{a}{L_\varphi(\phi)} K \left( \frac{1}{\cosh \frac{a}{L_\varphi(\phi)}} \right) \right] \quad (4.8)$$

On obtient donc séparément  $W$  et  $l_e$  à partir de  $W_{\text{eff}}$  qui intervient dans  $L_\varphi(\phi)$  et du produit  $W l_e$  qui intervient dans l'amplitude<sup>2</sup>.

En suivant cette procédure à différentes températures, nous avons trouvé que les paramètres  $W$  et  $l_e$  ne varient pas en température, ce qui est un test de la pertinence de nos ajustements. Les valeurs obtenues pour l'échantillon A sont  $W_{\text{eff}} = 85$  nm et  $l_e = 220$  nm ce qui conduit à  $W = 170$  nm (*cf* tableau 4.3). Ceci montre que le réseau est bien dans une limite diffusif telle que  $L_\varphi \gg l_e$ . Par contre la limite  $l_e \gg W$  n'est pas tout-à-fait atteinte.

## Evaluation du nombre de canaux

Connaissant  $k_F^{-1} = 6$  nm grâce aux mesures d'effet Shubnikov-de Haas, nous pouvons estimer le nombre de canaux transverses avec la formule :  $M = 2 \frac{W k_F}{\pi}$  qui donne  $M = 9$ . Ceci donne un nombre de canaux effectifs sur une échelle  $a$  de l'ordre de 1 puisque  $M_{\text{eff}} = M l_e / a = 2$ .

### 4.5.2 Détermination de $L_\varphi$ à haute température

A l'aide de cette valeur de  $W$  stable en température, il est maintenant possible de déterminer  $L_\varphi$  à plus haute température quand les oscillations AAS ne sont plus visibles. L'ajustement de l'enveloppe requiert alors 2 paramètres  $L_\varphi$  et  $l_e$  (Fig. 4.9). On obtient finalement  $L_\varphi = 0.72 a$  à 1.3 K (Fig. 4.8). Les différentes manières d'obtenir les paramètres du réseau sont récapitulées dans le tableau (4.2).

Basse température	$k_F$	Oscillations Shubnikov-de-Haas
	$G_D$	Valeur de la conductance à fort champ ( $\approx 300$ G)
	$L_\varphi$	Extrait des oscillations AAS entre $-60$ G et $60$ G TF de la magnétoconductance $\rightarrow$ détermination de $R_{12} \rightarrow$ courbe $R_{12}(L_\varphi)$
	$W, l_e$	Ajustement de l'enveloppe <i>externe</i> de la magnétoconductance $\frac{\Delta G}{G_D} = \frac{\Delta \sigma}{\sigma_D} = f(W, l_e)$ car $L_\varphi$ connu (voir équations (3.9) et (2.12)) et $\sigma_D = e^2/hk_F l_e$ . On laisse une liberté de 10% sur $G_D$ car la détermination n'est pas très précise.
Haute température	$W$	Valeur fixée à basse température.
	$L_\varphi, l_e$	Ajustement de l'enveloppe externe de la courbe de magnétoconductance. $\frac{\Delta G}{G_D} = f(L_\varphi, l_e)$ car $W$ est fixé.

TAB. 4.2 – Récapitulatif des moyens de détermination de tous les paramètres à partir de la magnétoconductance.

## 4.6 Comparaison quantitative à la théorie de localisation faible

### 4.6.1 Comparaison quantitative pour $L_\varphi(T)$

Connaissant tous les paramètres de transport du réseau, on peut alors comparer quantitativement les valeurs mesurées de  $L_\varphi$  à la prédiction théorique de AAK [15] écrite pour un fil quasi-1D (équation 2.31). Nous trouvons un très bon accord sans paramètre ajustable (Fig. 4.10). Cette théorie s'applique dans le cas d'un fil diffusif avec un grand nombre de canaux de conduction dans une limite où les interactions électron-électron sont traitées perturbativement (voir paragraphe 2.5). Il est donc surprenant de trouver un si bon accord avec cette théorie (voir Fig. 4.8) pour deux raisons :

(a) nous avons affaire à un petit nombre de canaux où on s'attend à ce que les corrélations soient très importantes,

(b) il n'est pas évident que le résultat de AAK, établi pour un fil, s'applique de façon simple à la géométrie du réseau.

Il a été suggéré théoriquement récemment [35] que le  $L_\varphi$  extrait de mesures AB ou AAS dans un anneau unique de périmètre  $L$  se comporterait plutôt comme  $L_\varphi \propto (LT)^{-\frac{1}{2}}$ . Cette prédiction est discutée dans la section (4.8).

### 4.6.2 Ajustement des oscillations

Enfin, nous avons calculé numériquement la partie oscillante des courbes de localisation faible en prenant en compte la largeur finie des fils, déterminée grâce à la formule 3.9, à travers le  $L_\varphi$  effectif. Nous obtenons ainsi la magnétoconductance totale (extinction des oscillations AAS + enveloppe de localisation faible). Notons que l'amplitude de la partie

<sup>2</sup>On rappelle que  $k_F$  est déterminé par des mesures d'oscillations Shubnikov-de-Haas.

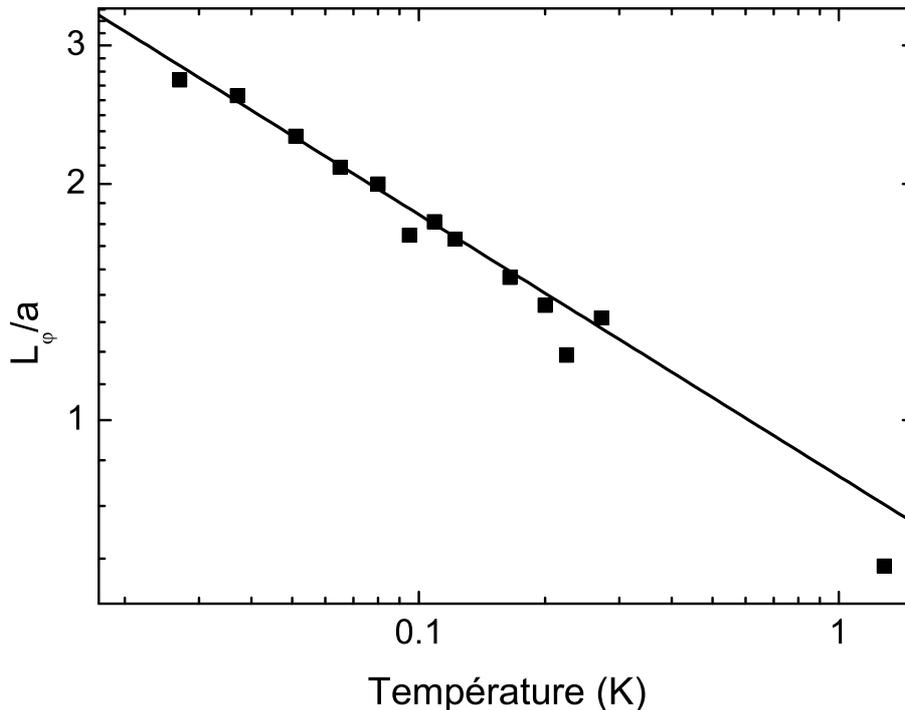


FIG. 4.10 – Comparaison entre la variation de  $L_\varphi$  avec la température déterminée expérimentalement et la prédiction AAK qui utilise les paramètres  $W$ ,  $l_e$  et  $n_e$  déduits des mesures. Il n’y a pas de paramètre ajustable.

oscillante et celle de l’enveloppe sont découplées dans notre cas à cause des fils coupés dans le réseau ce qui n’est pas pris en compte dans le calcul. D’une part les liens coupés diminuent la conductance du réseau (Fig 4.4) ce qui fait décroître de la même manière l’amplitude des oscillations et de l’enveloppe. Les liens cassés diminuent aussi le nombre d’anneaux dans le réseau ce qui baisse le nombre d’orbites possibles pour les oscillations AAS. Les liens coupés ont donc un effet plus important sur les oscillations AAS que sur la magnétoconductance positive. L’enveloppe a été soustraite afin de ne regarder que l’extinction des oscillations à fort champ à cause du  $L_\varphi$  effectif qui tend vers 0.

Ainsi nous obtenons un très bon accord entre la théorie et l’expérience (Fig. 4.11) avec un unique paramètre ajustable, l’amplitude des oscillations, qui est relié au nombre de fils coupés.

### 4.6.3 Évaluation du nombre de liens coupés

Comme nous connaissons tous les paramètres du réseau, il est possible d’évaluer la résistance d’un lien de longueur  $a$  d’après la formule de Drude. On obtient pour le réseau  $A$ ,  $R_{lien} = 4.15 \text{ k}\Omega \pm 0.85$  et un rapport  $R/R_{lien} = 6.5 \pm 1.3$ . Ceci correspond d’après la courbe de la figure (4.4) à 15 % à 25 % de liens coupés ce qui paraît compatible avec

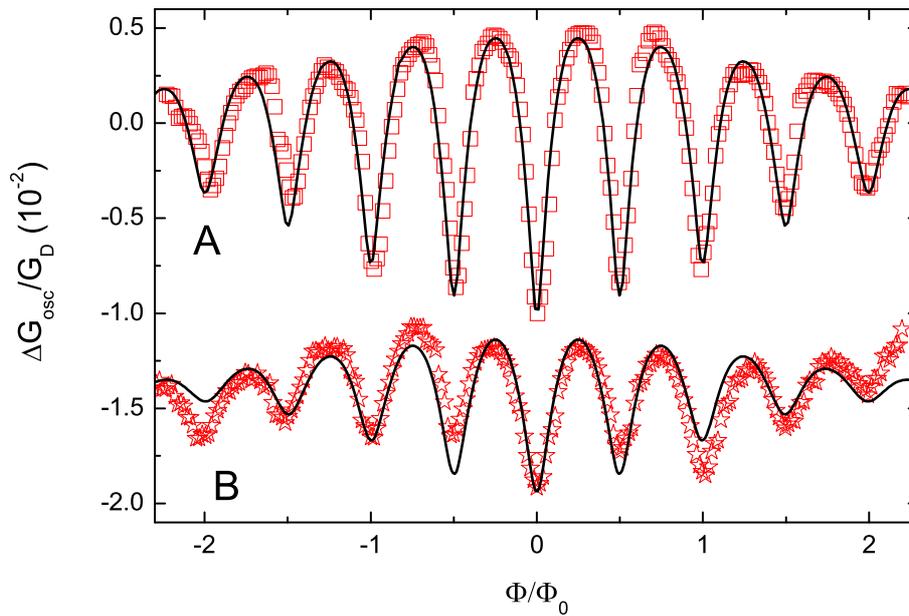


FIG. 4.11 – Comparaison entre expérience (symboles) et théorie (ligne continue) pour la partie oscillante de la conductance pour l'échantillon A ( $\square$ ) avec  $V_g = 0$  V et l'échantillon B ( $\star$ ) (décalé vers le bas pour la visibilité) avec  $V_g = -0.15$  V. Le seul paramètre ajustable est l'amplitude des oscillations. La courbe expérimentale doit être multipliée par 2 pour l'échantillon A et par 1.6 pour l'échantillon B.

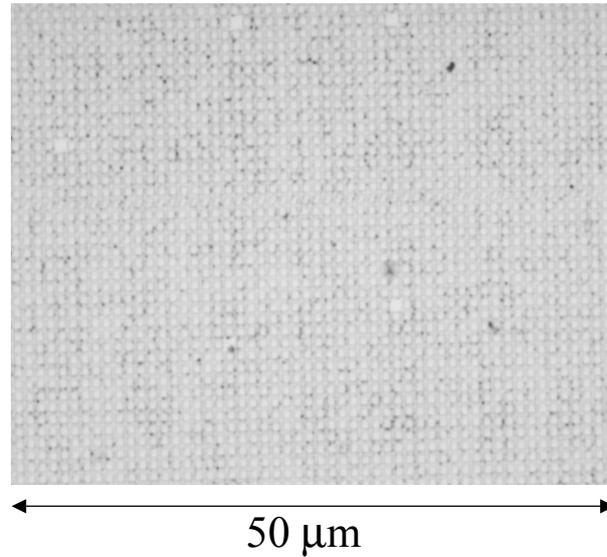


FIG. 4.12 – Agrandissement du réseau sur lequel on peut distinguer les anneaux et les liens déformés.

une observation du réseau au microscope (Fig. 4.12). L'incertitude provient de l'erreur sur  $W$  et  $l_e$  lors des ajustements (surtout à cause de la détermination de  $G_D$ ) qu'on estime de l'ordre de 10%.

Ce pourcentage paraît assez élevé et pourrait perturber l'évaluation des orbites AAS et donc le rapport  $R_{12}$  qui nous sert à déterminer  $L_\varphi$ . Cependant, l'effet des liens coupés n'agit que sur le préfacteur de l'amplitude de chaque harmonique, ce qui introduit une correction logarithmique dans la relation entre  $R_{12}$  et  $L_\varphi/a$  (rappelons que  $R_{12} \sim e^{L_\varphi/a}$  d'après (3.7)).

## 4.7 Effet de la tension de grille

### Dépendance de $L_\varphi$

Pour l'échantillon B nous avons fait varier la tension de grille entre  $-100$  mV et  $300$  mV ce qui permet de varier la résistance entre  $30$  k $\Omega$  et  $400$  k $\Omega$ . Un bon filtrage de la grille est alors nécessaire pour éviter une saturation de  $L_\varphi$  et retrouver une loi proche de  $T^{-1/3}$ . Nous n'avons observé quasiment aucune dépendance de  $L_\varphi$  avec la tension de grille (Fig. 4.13).

### Dépendance de $W$ et $l_e$

Il est possible de déterminer pour chaque tension de grille les paramètres  $W$  et  $l_e$ . Cependant comme nous n'avons pas de courbe de magnétorésistance au delà de  $60$  G les

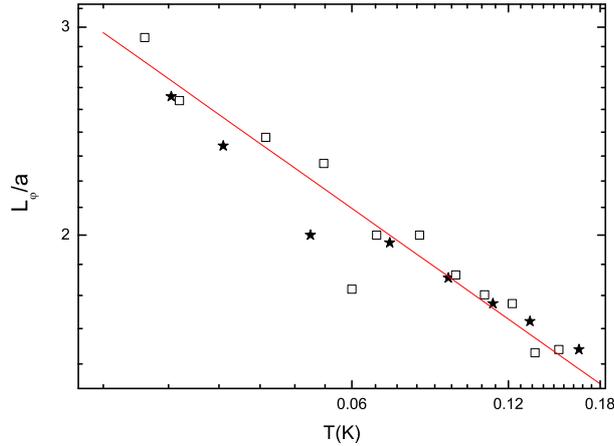


FIG. 4.13 –  $L_\phi(T)$  à  $V_g = 0$  (carrés) et  $0.3$  V (étoiles). L'ajustement linéaire de  $L_\phi^{(0V)}(T)$  donne une pente de  $-0.31$ .

paramètres  $W$  et  $l_e$  extraits de l'enveloppe sont beaucoup moins précis que pour l'échantillon A. Les résultats sont regroupés dans le tableau (4.3). Nous n'avons pas observé de changement pour  $W$  avec notre précision expérimentale mais  $l_e$  diminue d'un facteur 1.5 quand  $V_g$  varie entre  $-0.15$  V et  $+0.3$  V.  $G_D$ , qui est proportionnelle au produit  $Wl_e$ , décroît simultanément d'un facteur 4.

On pense donc que cette variation supplémentaire de la conductance s'explique par le fait que la grille coupe des liens dans le réseau faisant ainsi augmenter sa résistance comme on l'a déjà vu (Fig. 4.4). Ceci est en accord avec l'observation précédente qui ne montrait presque aucune variation de  $L_\phi$  avec la tension de grille. En effet on a déjà vu que la tension de grille avait un effet très faible sur  $k_F$  donc si  $W$  et  $l_e$  varient très peu, on s'attend à ce que  $L_\phi$  ne varie pas non plus. Comme on le voit dans le tableau (4.3) les valeurs de

$V_g$		-0.15 V	0 V	+0.3 V
échantillon A	$R_D$		$26k\Omega$	
	$l_e$		220 nm	
	$W$		170 nm	
échantillon B	$R_D$	195 k $\Omega$	92k $\Omega$	47k $\Omega$
	$l_e$	170 nm	250 nm	260 nm
	$W$	240 nm	270 nm	200 nm

TAB. 4.3 – Paramètres des deux réseaux extraits de l'enveloppe de la courbe de localisation faible.

résistance mesurées pour l'échantillon B paraissent anormalement élevées car la largeur et le libre parcours moyen élastique sont du même ordre que l'échantillon A. Ceci peut s'expliquer par un plus grand nombre de liens coupés dans le réseau. Cependant il faudrait

invoquer un nombre de liens coupés très important pour expliquer de telles résistances.

## 4.8 Effet géométrique du réseau sur le temps de cohérence de phase

Récemment a été soulevée la question de l'influence de la géométrie sur le temps de cohérence de phase des oscillations AAS [35]. Ceci repose sur le fait que le calcul de la relaxation de la phase pour un fil (paragraphe 2.28) n'est plus valable dans le cas d'un anneau pour les trajectoires faisant au moins un tour, c'est-à-dire celles qui contribuent aux oscillations AAS. En effet, on peut reprendre le même calcul du terme  $\langle e^{-\frac{1}{2}(\Phi^2)_T} \rangle_{C_n}$  pour une trajectoire faisant  $n$  tours de l'anneau. La différence par rapport au fil est que le terme  $|r(\tau) - r(\bar{\tau})|$  est toujours indépendant du temps car la trajectoire est plus longue que la taille du système qu'on soit dans un régime de temps court ou long par rapport à  $\tau_D$ . La différence entre deux points de la trajectoire dans ce cas ne dépend plus du temps car l'électron a déjà exploré tout l'échantillon, c'est le régime ergodique. On obtient alors une relaxation de la phase toujours exponentielle  $e^{-\gamma t}$  avec  $\gamma = \sqrt{\tau_D}/\tau_N^{3/2}$  où  $\tau_N$  est défini dans la section (2.5.2). L'amplitude des harmoniques des oscillations de la conductance décroissent donc comme  $e^{-n(L/L_N)^{3/2}}$ .

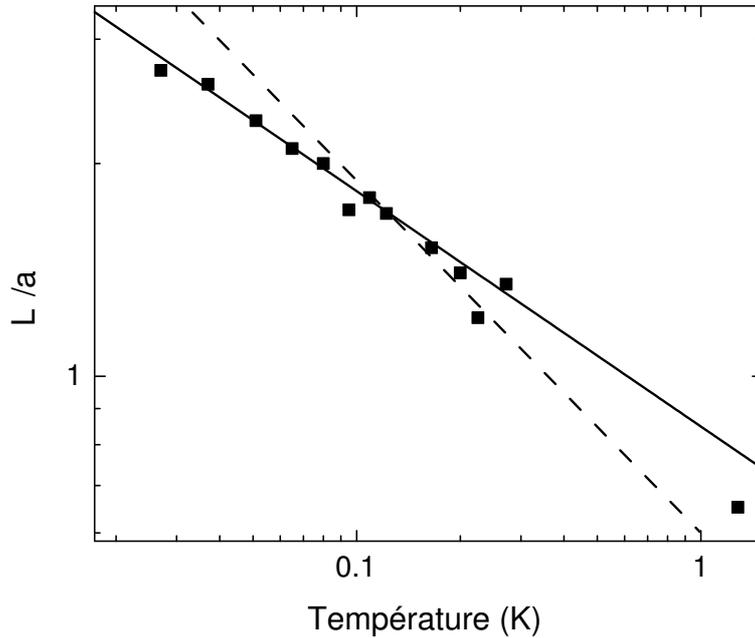


FIG. 4.14 – Comparaison des différentes prédictions théoriques avec nos mesures pour les variations de  $L_\varphi$  avec la température. Les points sont les données expérimentales, en trait plein la prédiction de AAK [15], en pointillés une loi en  $T^{-1/2}$  prédit dans la référence [35].

Ceci signifie que dans le cas d'un anneau le rapport des harmoniques est du type  $e^{-(L/L_N)^{3/2}}$ . On peut maintenant analyser nos résultats en supposant que ce calcul peut s'étendre au cas d'un réseau d'anneaux. Il suffit de remplacer dans nos expression  $L_\varphi$  par une longueur effective :

$$L_\varphi^{\text{eff}} = \frac{8}{\pi} \sqrt{\frac{L}{L_N}} L_N \quad (4.9)$$

Ainsi notre méthode d'extraction, dans cette hypothèse, permet d'obtenir la longueur  $L_\varphi^{\text{eff}}$  dont le comportement est en  $T^{-1/2}$  ce que nous n'avons pas observé expérimentalement (Fig. 4.14).

Ce résultat suggère aussi que le calcul de l'enveloppe de la magnétoconductance ne doit plus se faire de la façon dont nous l'avons fait. Comme on l'a vu, l'enveloppe est donnée par la fonction  $\Delta\sigma(0, L_\varphi)$  qui est la somme de termes provenant de l'harmonique 0 et d'harmoniques plus élevées, si l'on se réfère par exemple au développement limité (3.7). Or le résultat précédent montre que la relaxation de la phase se fait de façon différente pour les trajectoires faisant le tour de l'anneau et celles qui ne le font pas. On ne peut pas remplacer simplement  $L_\varphi$  par un  $L_\varphi^{\text{eff}}$  comme pour l'analyse des harmoniques, le  $L_\varphi$  extrait des oscillations ne peut donc plus servir à ajuster l'enveloppe comme nous l'avons fait pour déterminer les autres paramètres de transport. Ceci pourrait expliquer en partie le découplage observé entre l'amplitude des oscillations et celle de l'enveloppe et que nous expliquons par la présence de liens coupés dans le paragraphe (4.6.2).

Le  $L_\varphi \propto T^{-1/3}$  qu'on extrait est donc en contradiction avec cette prédiction. On peut imaginer plusieurs explications. D'une part, le réseau est proche de la localisation forte ( $L_\varphi \sim L_T$ ) et donc de la non-validité de cette théorie de transport diffusif. D'autre part ce résultat théorique, pour un anneau, ne prend pas en compte la dimensionnalité du réseau. En effet, la diffusion dans un réseau n'est 1D que dans la limite  $L_\varphi \ll a$  et 2D quand  $L_\varphi \gg a$  avec un  $L_\varphi$  qui varie dans ce cas en  $T \ln(T)$ . Ceci est vrai pour les trajectoires responsables de l'enveloppe de la magnétoconductance. Par contre les trajectoires contribuant aux oscillations AAS, décrivent des boucles autour des cellules élémentaires comme dans un anneau pour lequel  $L_\varphi$  correspond toujours à une loi unidimensionnelle.

## 4.9 Contribution des interactions à la conductivité

Une autre manière de tester les interactions électroniques est de mesurer la variation de la résistance avec la température en champ magnétique fort (300 G) lorsque la localisation faible a disparu. En effet il existe une correction à la conductance dans un échantillon cohérent qui provient des interactions électron-électron. Les interactions sont responsables d'un creux dans la densité d'états qui se traduit par une correction à la conductivité  $\Delta\sigma_{ee}(T)$ , reliée à la probabilité de retour à l'origine, qui dépend de la température mais pas du champ magnétique [36]. C. T. a calculé cette correction dans le cas d'un réseau carré. L'expression obtenue est très complexe mais on peut retrouver 2 limites simples.

Dans la limite  $L_T \ll a$  on retrouve la correction du fil infini :  $\Delta\sigma_{ee}(T) \propto L_T$ . Dans la limite opposée on obtient un résultat similaire à celui du plan infini :  $\Delta\sigma_{ee}(T) \propto \ln(L_T/l_e)$ .

Pour comparer le calcul aux données expérimentales il y a un paramètre ajustable : l'amplitude de la correction qui est reliée à la force des interactions. L'accord entre la théorie et les expériences est beaucoup moins bon que pour les corrections de localisation faible. De plus le désaccord ne va pas dans le même sens à haute et à basse température (Fig. 4.15). On peut noter qu'à basse température ( $T \approx 25$  mK) nous arrivons dans le régime  $L_\varphi = L_T$ . On est alors proche de la transition métal-isolant comme nous l'avons vu dans le premier chapitre et la théorie de localisation faible ne s'applique plus.

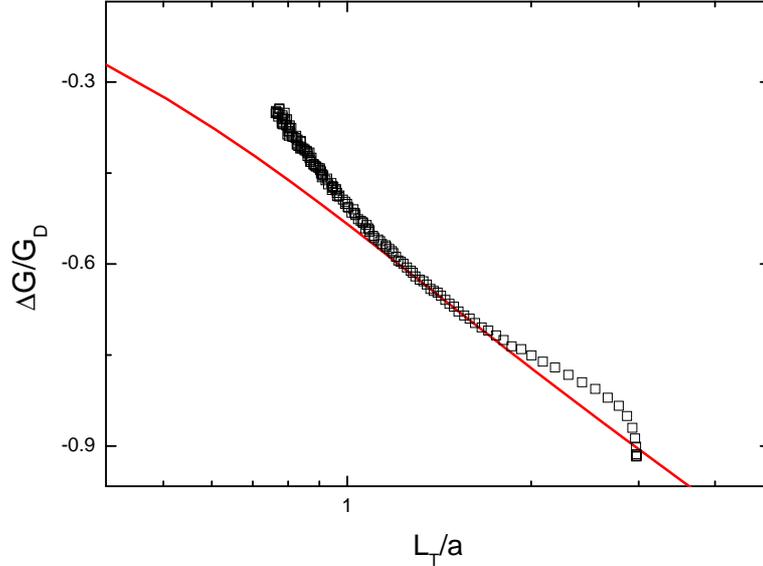


FIG. 4.15 – Contribution e-e à la conductivité. Variation de la conductance avec la température en échelle semi-log à fort champ magnétique ( $H=300$  G). En trait plein le calcul de C.T., les points sont les résultats expérimentaux.

## 4.10 Conclusion

Nous avons montré dans cette partie que la magnétoconductance des réseaux réalisés en gaz 2D est très bien décrite par la théorie du transport quantique diffusif normalement valable pour les métaux. Ceci est très surprenant dans une limite où la conductance sans dimension sur une échelle  $a$ ,  $MI_e/a$ , est de l'ordre de 1 et jusqu'à des températures telles que  $L_\varphi \sim L_T$ . Nous avons vu que cette limite correspond au passage à la localisation forte dans un fil et marque donc la limite de validité de la théorie AAK. Cette limite ne peut pas être atteinte dans les métaux qui contiennent environ 1000 canaux et sont toujours nettement dans le régime  $L_\varphi \gg L_T$ . De plus grâce à cette théorie nous avons montré qu'il est possible d'extraire sans paramètre ajustable  $L_\varphi$  en analysant le rapports des différentes harmoniques des oscillations AAS. Nous avons alors trouvé que  $L_\varphi$  suit une loi  $T^{-1/3}$  **sans saturation jusqu'à 25 mK**. Ceci suggère qu'à l'instar des métaux il n'existe pas de mécanisme de

saturation intrinsèque du temps de cohérence de phase électronique jusqu'aux plus basses températures explorées. Cependant certaines questions restent ouvertes. Il a récemment été suggéré que la décroissance des harmoniques des oscillations AAS est contrôlée par un  $L_\varphi$  effectif suivant une loi en  $T^{-1/2}$ . De plus la dépendance en température de la correction à la conductivité venant des interactions électron-électron est difficilement interprétable.



## Deuxième partie

# Supraconductivité des cordes de nanotubes de carbone



# Chapitre 5

## Les nanotubes de carbone

Dans cette partie nous nous intéressons au transport dans les cordes de nanotubes de carbone, qui sont un assemblage de quelques dizaines de nanotubes en parallèle. La structure particulière de ces nanotubes en fait une des rares réalisations expérimentales de liquide électronique unidimensionnel. Dans ce type de liquide, l'écrantage des interactions électroniques est beaucoup moins efficace que dans un métal tri-dimensionnel et il n'est plus possible de les décrire grâce à la théorie des liquides de Fermi. Nous verrons dans le chapitre 6 que dans ces systèmes, appelés liquides de Luttinger (LL), les excitations de basse énergie sont des ondes de densité de charge caractérisées par une densité d'états qui s'annule à l'énergie de Fermi. Il apparaît alors des propriétés de transport originales, notamment un état isolant à basse température quelque soit le désordre présent dans l'échantillon. Cependant si l'interaction électronique est écrantée (par exemple par les autres nanotubes de la corde), il est théoriquement possible grâce à l'interaction électron-phonon, comme on le décrit dans le chapitre 7, qu'une interaction attractive se développe dans chaque nanotube et qu'un état supraconducteur se stabilise dans une corde de nanotubes. Nous présentons dans le chapitre 8 la méthode de soudure laser mise au point par A. Kasumov, qui permet de déposer des cordes suspendues en contact ohmique avec les électrodes. Nous avons développé cette même méthode et les premiers résultats de mesures de transport à basse température sur un échantillon multi-parois déposé à Orsay sont présentés dans le chapitre 9. Sur les échantillons de nanotubes déposés par A. Kasumov, nous avons mis en évidence une transition supraconductrice à des températures inférieures à 0.5 K dans des cordes de nanotubes qui contiennent de 300 à 40 tubes. Les comportements de ces cordes dans l'état normal, présentés dans le chapitre 10, peuvent être très divers et semblent en partie contrôlés par des taux de désordre différents comme le montrent l'analyse des résultats et les calculs théoriques que nous avons réalisés. La transition supraconductrice est analysée dans le chapitre 11. Nous avons montré que cette transition est contrôlée par le désordre et la dimensionnalité (nombre de tubes) de l'échantillon. Les premières expériences pour tester le rôle des phonons ont été réalisées et semblent indiquer que le caractère suspendu des cordes que nous mesurons joue un rôle dans la supraconductivité. Ces mesures de transport sont maintenant confirmées par la mise en évidence de l'effet Meissner dans un ensemble macroscopique de cordes de nanotubes alignées.

## 5.1 Structure atomique

Les nanotubes de carbone sont des macromolécules de carbone découvertes en 1991 par Iijima [37]. Leur structure atomique est celle d'un feuillet de graphène, qui est un réseau hexagonal d'atomes de carbone, replié pour former un tube. Les dimensions typiques d'un nanotube sont de l'ordre du nanomètre pour le diamètre et du micron pour la longueur (Fig. 5.1).

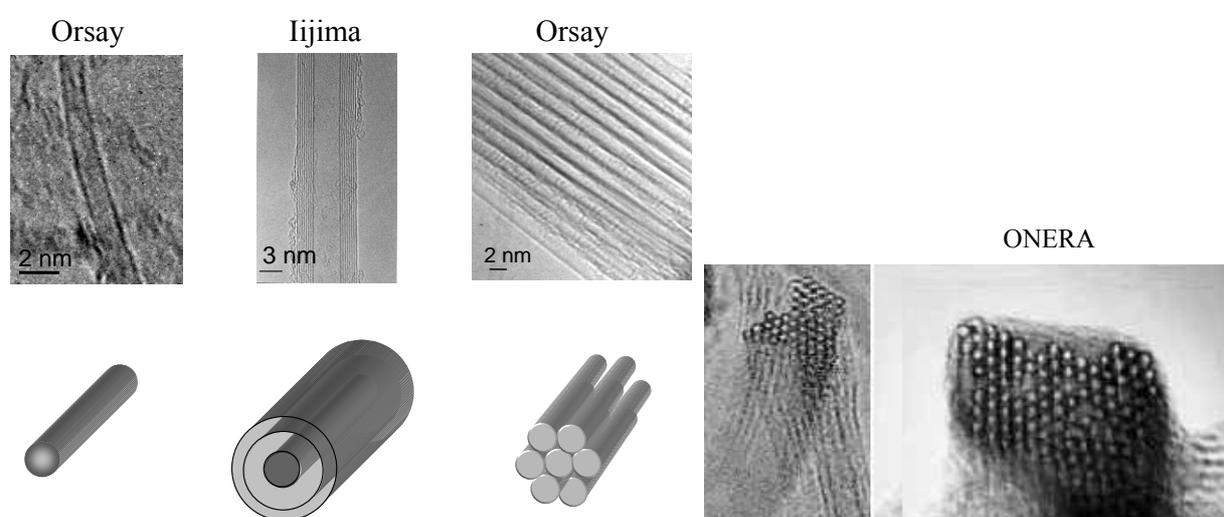


FIG. 5.1 – Les différents assemblages de nanotubes. De gauche à droite : le nanotube monoparoi individuel, le nanotube multiparoi et la corde de nanotubes mono-paroi. A droite, image d'une section de corde de nanotubes. On constate que la distance intertube (0.3 nm) est très inférieure au diamètre des tubes (1.4 nm).

Les nanotubes peuvent être synthétisés sous plusieurs formes (voir Fig. 5.1). On peut trouver des cordes de nanotubes constituées de tubes mono-paroi assemblés grâce aux forces de Van der Waals et formant un réseau triangulaire. C'est précisément de telles cordes que nous avons étudiées dans cette thèse. Les nanotubes dans ces cordes ont un diamètre moyen de 1.4 nm et une distance inter-tube de 0.3 nm. Il existe aussi des nanotubes multi-parois qui sont composés de plusieurs nanotubes concentriques. La distance inter-feuillet est de 3.5 Å. Enfin le nanotube monoparoi individuel obtenu à partir des cordes de nanotubes mises en solution avec un surfactant puis soumis plusieurs minutes aux ultra-sons pour séparer les nanotubes composant la corde.

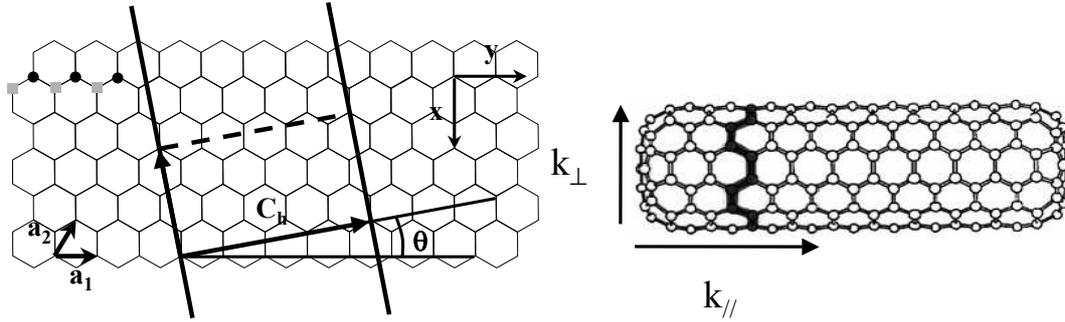


FIG. 5.2 – A gauche : un plan de graphène est un réseau hexagonal d'atomes de carbone. La maille élémentaire est définie par les vecteurs  $a_1$  et  $a_2$  de norme  $a_0 = 2.46 \text{ \AA}$ , elle contient deux atomes qui correspondent à deux sous-réseaux représentés sur le schéma par les symboles  $(\bullet)$  et  $(\square)$  en haut à gauche. Un nanotube est caractérisé par le vecteur hélicité  $\vec{C}_h = n\vec{a}_1 + m\vec{a}_2$  qui décrit la façon dont le feuillet de graphène est replié pour former le tube. On parle donc de nanotube  $(n,m)$ . La distance entre plus proche voisin est  $a_{cc} = a_0/\sqrt{3} = 1.42 \text{ \AA}$ . A droite le nanotube "armchair" qui correspond au repliement  $\vec{C}_h = (n,n)$ .

## 5.2 Structure électronique

### 5.2.1 Le plan de graphène

Nous allons tout d'abord déterminer la structure de bande du graphène pour en déduire celle du nanotube. L'atome de carbone possède une structure électronique  $[\text{He}]2s^22p^2$ . Dans le réseau hexagonal les atomes de carbone présentent 3 orbitales hybridées  $sp^2$  dans le plan et une orbitale  $p_z$  perpendiculaire au plan de graphène. Les orbitales  $sp^2$  donnent lieu à des liaisons  $\sigma$  très fortes qui contribuent à la cohésion et l'élasticité du graphène mais qui présentent un gap d'environ 8 eV au niveau de Fermi. Les orbitales  $p_z$  donnent lieu à des liaisons  $\pi$  moins fortes mais qui fournissent des états au niveau de Fermi. Ce sont donc elles qui nous intéressent pour les propriétés de transport électronique.

On peut calculer la structure de bande du graphène par un modèle de liaisons fortes pour lequel on note  $\gamma \sim 2.5 \text{ eV}$  l'intégrale de transfert entre deux atomes de carbone premiers voisins. Comme la cellule élémentaire du graphène contient deux atomes, les états propres se décomposent sur deux ondes de Bloch et le calcul en liaison fortes se ramène à

diagonaliser une matrice  $2 \times 2$  donnée par :

$$\begin{pmatrix} 0 & f(k) \\ f^*(k) & 0 \end{pmatrix}$$

où  $f(k) = \gamma \sum e^{i\vec{k} \cdot \vec{\tau}_\alpha}$ , les vecteurs  $\tau_\alpha$  joignent un atome à ses 3 plus proches voisins. La relation de dispersion est donc donnée par  $E(k) = \pm|f(k)|$  et les états propres sont de la forme :

$$|\Psi_k\rangle \propto |k_1\rangle + e^{i\theta(k)}|k_2\rangle \quad (5.1)$$

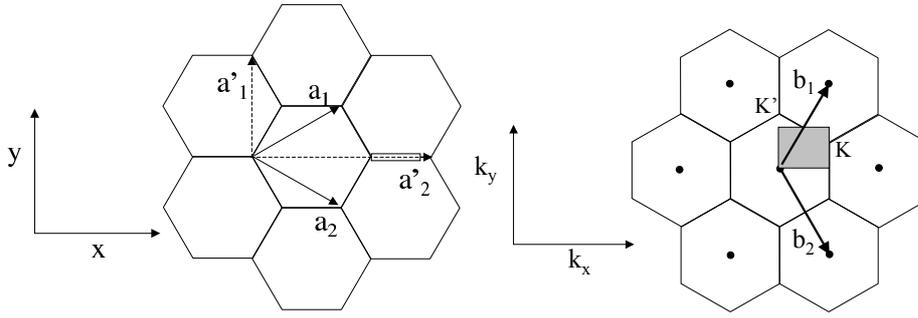


FIG. 5.3 – A gauche, la maille élémentaire du graphène définit par les vecteurs  $a_1$  et  $a_2$  de norme  $a_0$ . Pour le nanotube armchair on prendra plutôt la maille rectangulaire définie par  $a'_1$  et  $a'_2$ . A droite le réseau réciproque du graphène ( $\bullet$ ). La première zone de Brillouin correspond aux hexagones. Celle du nanotube armchair est en grisé.

où  $\theta(k)$  est l'argument de  $f(k)$ .

Dans la cellule élémentaire le deuxième atome a pour coordonnées  $(-\frac{1}{3}, -\frac{1}{3})$ , on obtient donc :

$$f(k) = e^{i\vec{k} \cdot \frac{(\vec{a}_1 + \vec{a}_2)}{3}} [1 + e^{i\vec{k} \cdot \vec{a}_1} + e^{i\vec{k} \cdot \vec{a}_2}] \quad (5.2)$$

Si l'on se replace dans la base  $(k_x, k_y)$ , définie sur la figure 5.2, on obtient :

$$E(k) = \pm \gamma_0 \left\{ 1 + 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3}k_x a_0}{2}\right) \cos\left(\frac{k_y a_0}{2}\right) + 4 \cos^2\left(\frac{k_y a_0}{2}\right) \right\}^2 \quad (5.3)$$

Cette relation de dispersion, tracée sur la figure 5.4, présente un gap nul uniquement en 6 points. Ces 6 points se réduisent à 2 (K et K') puisque tous les autres sont équivalents par translation d'un vecteur du réseau réciproque.

### 5.2.2 Les nanotubes

Le repliement des nanotubes de carbone impose une condition aux limites périodique sur la circonférence pour les fonctions d'onde qui se traduit sur les vecteurs d'ondes par :

$$\vec{C}_h \cdot \vec{k} = 2p\pi \quad (5.4)$$

Si on décompose le vecteur d'onde en une composante suivant la circonférence du tube ( $k_\perp$ ) et une composante longitudinale ( $k_\parallel$ ),  $k_\perp$  est quantifiée :

$$k_\perp = \frac{2p\pi}{|C_h|} \quad (5.5)$$

$k_\parallel$  décrit donc une série de droites perpendiculaires à  $\vec{C}_h$ . On peut ainsi reconstituer la structure de bande du nanotube en découpant celle du graphène par ces droites. On constate que pour différentes hélicités du nanotube, ces droites ne passent pas toujours par

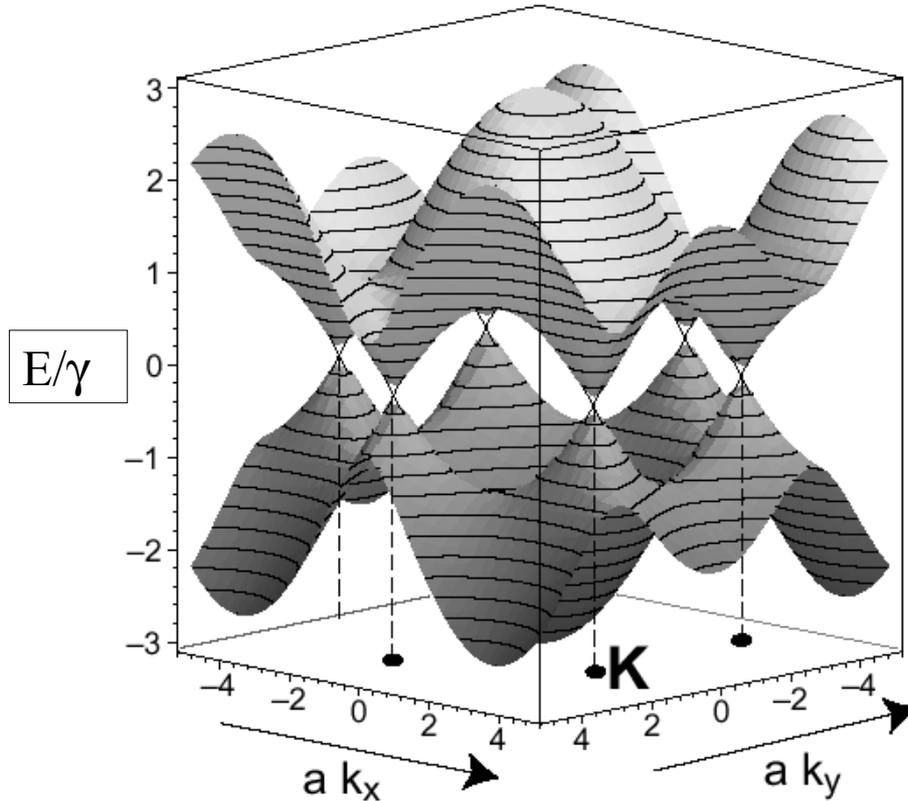


FIG. 5.4 – Relation de dispersion du feuillet de graphène. Seulement six points coupent le niveau de Fermi situé en  $E=0$ .

un des points  $K$  du graphène où le gap est nul. À demi-remplissage certains nanotubes sont donc métalliques si un des vecteurs d'ondes autorisés passe par un point  $K$ , les autres sont semi-conducteurs. Comme  $\vec{C}_h = (n,m)$  dans le réseau direct et  $K = (1/3, -1/3)$ , le vecteur d'onde  $\vec{k} = K$  n'est autorisé que si  $n-m$  est un multiple de 3 pour pouvoir vérifier la relation  $\vec{C}_h \cdot \vec{k} = 2\pi$ . Statistiquement  $1/3$  des nanotubes sont donc métalliques et en particulier tous les nanotubes armchairs de type  $(n,n)$  (voir Fig. 5.5).

La structure de bande des nanotubes métalliques est originale car elle présente un unique point au niveau de Fermi qui correspond à un état 2 fois dégénéré. Ceci signifie que le transport dans le nanotube se fait à travers 2 canaux de conduction ce qui en fait une des rares réalisations expérimentales de conducteur unidimensionnel. Un autre point important est la linéarité de la relation de dispersion près du niveau de Fermi qui est caractéristique d'un liquide électronique unidimensionnel et en fait un bon candidat pour explorer la physique des liquides de Luttinger que nous présenterons dans le chapitre 6. De plus les  $k_\perp$  autorisés étant distants de  $1/R$ , on peut considérer qu'une seule bande est mise en jeu pour le transport électronique. Ceci est justifié jusqu'à des énergies de l'ordre de  $\hbar v_F/R$  qui est voisin de 1 eV pour un nanotube de 1.4 nm de diamètre comme ceux que nous avons étudiés dans cette thèse. Ainsi même un nanotube dopé peut toujours être

considéré comme un conducteur unidimensionnel car le niveau de Fermi est toujours dans la zone de dispersion linéaire. En revanche, si l'on s'écarte du point de demi-remplissage les deux états au niveau de Fermi ne sont plus dégénérés.

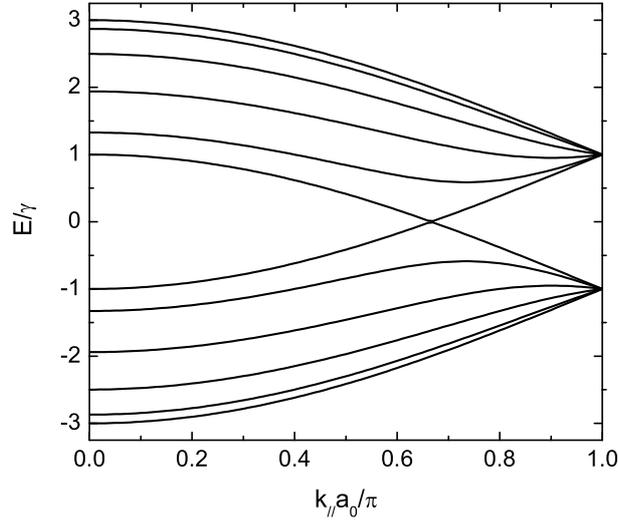


FIG. 5.5 – Relation de dispersion du nanotube armchair (5,5)

### 5.2.3 Fonctions d'ondes électroniques

Etudions maintenant les fonctions d'ondes électroniques au niveau de Fermi. Dans le cas du tube armchair on a vu que les composantes du vecteur d'onde de Fermi sont ( $k_{\perp} = \frac{1}{2}(b_1 + b_2), k_{//} = \frac{1}{6}(b_1 - b_2)$ ). Ceci donne pour la composante de la fonction d'onde sur la circonférence un terme  $e^{2i\pi y/(3a_{cc})}$  et une composante longitudinale en  $e^{\frac{2i\pi}{3a_0}x}$ . On peut ainsi représenter l'amplitude de cette fonction sur un des sous-réseaux de carbone comme sur la figure 5.6. La fonction de Bloch sur le deuxième sous réseau est évidemment identique. Pour avoir la fonction d'onde complète  $\psi(k)$  qui combine les fonctions d'onde de chaque sous-réseau il faut calculer le facteur de phase  $\theta(k_F)$  de l'expression 5.1. Comme  $f(k_F)$  s'annule il faut faire attention à la manière dont on calcule son argument car sa valeur dépend de la manière dont le vecteur d'onde tend vers  $k_F$  et donc de l'hélicité du nanotube. On peut montrer que pour le nanotube armchair l'argument tend vers 0 et que  $\psi(k)$  correspond donc exactement à la combinaison symétrique et antisymétrique des fonctions d'onde des deux sous-réseaux. La fonction qui en résulte est donc modulée le long du tube avec une période  $3a_0$  mais aussi le long de la circonférence du tube.

### 5.2.4 Limitations du modèle de liaisons fortes

Dans ce modèle de liaisons fortes nous n'avons pas pris en compte la courbure des nanotubes qui modifie le recouvrement des orbitales [38]. Celle-ci a un effet non négligeable

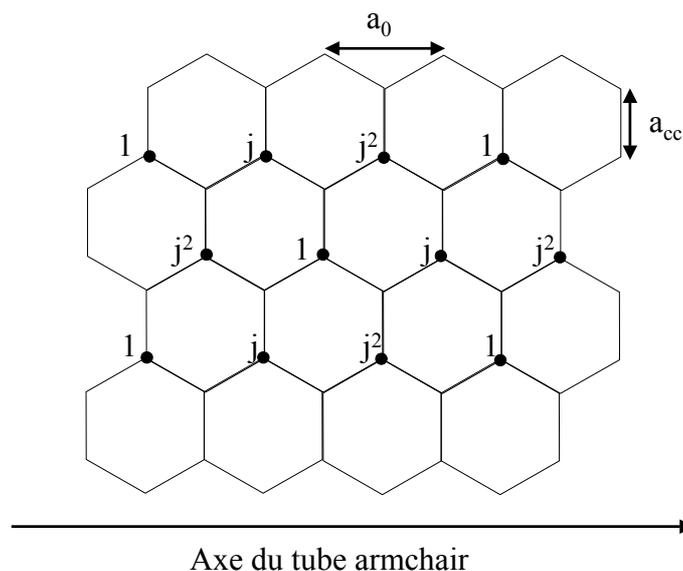


FIG. 5.6 – Amplitude de la fonction d’onde électronique au niveau de Fermi pour le nanotube armchair. Les  $\bullet$  représentent les atomes de carbone d’un même sous-réseau. On note  $j = e^{2i\pi/3}$  la racine troisième de l’unité.

puisqu’elle ouvre un gap au niveau de Fermi dans tous les tubes métalliques à l’exception des tubes armchairs. Cet effet a été mis en évidence aussi bien par des mesures de transport [39] que de spectroscopie tunnel (STS) [40]. Le gap qui est d’autant plus fort que le rayon est petit, puisque c’est un effet de courbure, s’écrit :

$$\delta E = \frac{\gamma_0 a_0^2}{16R^2} \sin(3\theta) \quad (5.6)$$

On peut aussi penser que de tels systèmes unidimensionnels vont présenter une transition de Peierls qui ouvrirait un gap au niveau de Fermi. Cependant cette transition n’apparaît pas pour les nanotubes grâce au coût important d’énergie élastique que demande la distorsion du réseau dans le plan, combiné à la faible densité électronique [41, 42].



# Chapitre 6

## Transport dans les fils unidimensionnels

Dans ce chapitre nous nous intéressons au caractère particulier du transport à une dimension et aux comportements originaux auxquels on peut s'attendre expérimentalement dans un tel système par rapport aux propriétés de transport d'un métal 3D. Nous nous focaliserons en particulier sur la linéarité de la relation courant-tension ou loi d'Ohm. Nous verrons que cette loi n'est plus valable dans le cas unidimensionnel lorsqu'on prend en compte à la fois les interactions électroniques et le désordre. Dans ce cas l'effet des interactions est très fort : en présence d'une seule impureté sur le fil, la conductance décroît en loi de puissance avec la température pour saturer à une température correspondant à l'énergie de Thouless qui dépend de la longueur du fil entre les deux contacts. L'exposant de la loi de puissance dépend des interactions.

### 6.1 Le fil sans interactions

#### 6.1.1 Le fil parfait

Nous savons qu'un fil unidimensionnel possède un seul vecteur d'onde autorisé au niveau de Fermi, i.e. un seul canal de conduction. On peut alors calculer la résistance d'un tel fil mesurée entre deux contacts macroscopiques en l'absence d'interaction et de désordre [43]. Le contact de gauche est au potentiel  $\mu_G$  et celui de droite  $\mu_D$ . Pour mesurer la résistance le contact de gauche est porté au potentiel  $V$ . On a alors  $\mu_G - \mu_D = eV$ . Pour calculer le courant il suffit de compter les électrons qui traversent le fil sous l'effet de ce potentiel. On suppose que les électrons dans les réservoirs obéissent à une statistique de Fermi. On obtient alors :

$$I = e \int f(\epsilon - eV) \frac{dn}{d\epsilon} v(\epsilon) d\epsilon - e \int f(\epsilon) \frac{dn}{d\epsilon} v(\epsilon) d\epsilon \quad (6.1)$$

A une dimension, la vitesse est définie par  $v = \frac{1}{\hbar} \frac{d\epsilon}{dk}$ . La densité d'états par unité de longueur s'écrit  $n(k) = k/2\pi$  ce qui permet de simplifier cette expression à l'aide de la relation :

$$\frac{dn}{d\epsilon} = \frac{dn}{dk} \frac{dk}{d\epsilon} = \frac{1}{\hbar v} \quad (6.2)$$

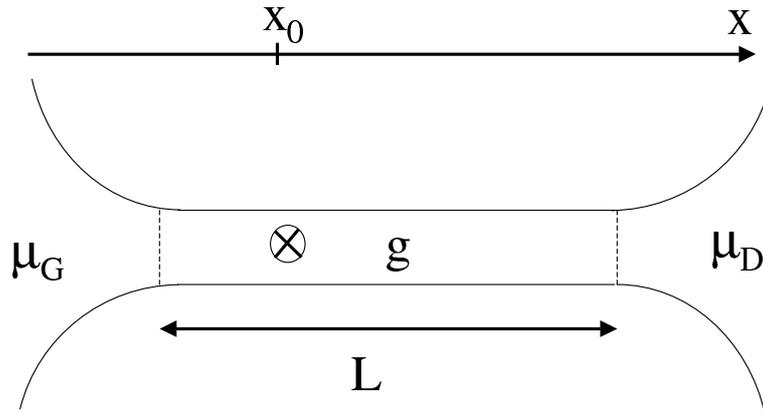


FIG. 6.1 – schéma d'un fil 1D avec une impureté localisée en  $x = x_0$  placée entre deux réservoirs aux potentiels  $\mu_G$  et  $\mu_D$ .  $g$  est le paramètre qui permet de décrire les interactions dans la théorie des liquides de Luttinger.

On peut alors écrire  $I = \frac{e}{h} \int [f(\epsilon - eV) - f(\epsilon)] d\epsilon$  qui devient à température nulle :

$$I = \frac{e}{h} eV \quad (6.3)$$

Dans un fil 1D le courant est donc indépendant de la vitesse, il ne dépend pas de la relation de dispersion des électrons dans les contacts. La résistance s'écrit uniquement en fonction de constantes universelles, c'est le quantum de résistance<sup>1</sup> [2].

$$R_Q = \frac{1}{G_Q} = \frac{h}{e^2} \approx 26 \text{ k}\Omega \quad (6.4)$$

Si la loi d'Ohm n'est pas strictement respectée puisque cette résistance ne dépend pas de la longueur du fil on a toujours une relation linéaire entre le courant et la tension. Il est important de noter aussi que ce calcul ne fait pas appel à la cohérence de phase des électrons.

### 6.1.2 Diffusion par une impureté

On peut maintenant étudier le rôle du désordre sur ce fil sans interaction [43]. Pour commencer nous allons étudier l'effet d'une barrière de potentiel représentée par un fonction  $\delta$  :

$$V(x) = V_0 \delta(x - x_0) \quad (6.5)$$

Un électron, représenté par sa fonction d'onde  $\Psi(x)$ , a alors une certaine amplitude de probabilité d'être réfléchi ( $r_k$ ) ou transmis ( $t_k$ ) par la barrière. La fonction d'onde électronique

<sup>1</sup>La prise en compte du spin divise par deux cette résistance

peut s'écrire :

$$\begin{aligned}\Psi(x) &= e^{ikx} + r_k e^{ikx} & \text{si } x < x_0 \\ &= t_k e^{ikx} & \text{si } x > x_0\end{aligned}\quad (6.6)$$

A partir de l'équation de Schrödinger on peut alors calculer les amplitudes de transmission et réflexion :

$$t_k = \frac{1}{1 + i \frac{mV_0}{\hbar^2 k}} \quad (6.7)$$

Un calcul de la résistance de ce fil donne le résultat  $R = R_Q/T$  où  $T = T(\epsilon_F) = |t_{k_F}|^2$  est la transmission du fil. Ainsi en présence de l'impureté la linéarité de la caractéristique courant-tension est préservée à faible tension. On peut décomposer cette résistance en une partie reliée à la résistance de contact ( $R_Q$ ) et une partie due à la diffusion sur l'impureté ( $R_Q \frac{1-T}{T}$ ).

### 6.1.3 Le fil quasi-1D

Ces deux formules peuvent se généraliser au cas d'un fil contenant  $N_c$  canaux de conduction. Dans le cas du fil balistique sans interaction on peut considérer les canaux en parallèle et la conductance s'écrit  $G = N_c G_Q$ .

On peut partir de la même idée en présence de désordre et généraliser la formule de la conductance :

$$G = G_Q \sum_{i=1}^{N_c} T_i \quad (6.8)$$

Il est intéressant de relier cette formule à la conductance classique d'un fil diffusif (la conductance de Drude) qui peut s'écrire sous la forme :

$$G = G_Q \alpha_d \frac{N_c l_e}{L} \quad (6.9)$$

$\alpha_d$  est un coefficient numérique qui dépend de la dimension  $d$  :  $\alpha_1 = 2$ ,  $\alpha_2 = \pi/2$  et  $\alpha_3 = 4/3$ . Ces deux formules coïncident si on prend par exemple toutes les transmissions de la première formule égales à  $l_e/L$  ou bien si seulement  $(N_c l_e/L)$  canaux conduisent parfaitement. La distribution des probabilités de transmission a été calculée pour un fil diffusif grâce à la technique des matrices aléatoires. La probabilité obtenue est  $\frac{N_c l_e}{2L} \frac{1}{T\sqrt{1-T}}$  pour  $T \in [e^{-2L/l_e}, 1]$ . Elle est grande quand la transmission est proche de 1 ou de 0. Le courant est donc transporté par un nombre de canaux réduit mais avec une bonne transmission [44]. On appellera nombre effectif de canaux ce nombre de canaux qui participent effectivement au transport  $N_{\text{eff}} = N_c l_e/L$  et la conductance d'un fil désordonné s'écrit donc :

$$G = G_Q \alpha_d N_{\text{eff}} \quad (6.10)$$

## 6.2 Le fil avec interactions

### 6.2.1 Le fil propre

Pour traiter le cas du fil en interaction, il faut revenir à l'Hamiltonien du fil sans interaction. Si on linéarise la relation de dispersion des électrons libres près du niveau de Fermi l'Hamiltonien s'exprime en fonction de la densité électronique [4] :

$$H = \frac{\hbar v_F}{2} \int dx [\rho_+^2(x) + \rho_-^2(x)] \quad (6.11)$$

Cet Hamiltonien correspond à la propagation des électrons sous forme d'une onde de densité de charge "droite" ( $+ = +k_F$ ) et "gauche" ( $- = -k_F$ ) qui sont indépendantes et se déplacent sans dispersion à la vitesse  $v_F$ . La densité de charge dans le fil est donnée par  $\rho = \rho_+ + \rho_-$ .

Si on ajoute un terme d'interaction (repulsive ou attractive), celui-ci couple les densités de charge :

$$H_{int} = \int dx \frac{u}{2} \rho(x)^2 \quad (6.12)$$

Il est possible d'écrire l'Hamiltonien complet sous une forme quadratique :

$$H = \frac{\hbar v_F}{2g} \int dx \frac{u}{2} [\tilde{\rho}_+^2(x) + \tilde{\rho}_-^2(x)] \quad (6.13)$$

où les densités  $\tilde{\rho}_\pm$  sont définies ci-dessous. Le paramètre  $g$  est donné par la relation :

$$\frac{1}{g^2} = 1 + \frac{u}{\hbar v_F} \quad (6.14)$$

Ce paramètre est donc directement relié au signe des interactions. On a  $g < 1$  (resp.  $> 1$ ) pour des interactions répulsives (resp. attractives).  $g=1$  décrit le cas sans interaction. On peut réécrire (6.14) en fonction de paramètres accessibles expérimentalement :

$$\frac{1}{g^2} = 1 + \frac{E_c}{\Delta} \quad (6.15)$$

où  $E_c = e^2/C$  est l'énergie de charge du fil et  $\Delta = \hbar v_F/L$  l'écart entre niveaux d'énergies.

Les densités effectives de charge qui interviennent maintenant sont des combinaisons linéaires des densités sans interaction :

$$\tilde{\rho}_\pm = \frac{1 \pm g}{2} \rho_+ + \frac{1 \mp g}{2} \rho_- \quad (6.16)$$

Sans interactions ( $g = 1$ ), on retrouve bien les densités électroniques droites et gauches. En présence d'interactions on peut toujours décrire le transport électronique comme la propagation de deux ondes de densité de charge découplées sans dispersion mais maintenant ces ondes mélangent des électrons se propageant dans les deux directions à la vitesse

$v_\rho = v_F/g$  et interagissant. On peut voir ceci comme la séparation d'un électron en deux charges,  $(1 + g)/2$  vers la droite et  $(1 - g)/2$  vers la gauche. Pour un tel LL infini la conductance vaut alors  $G = g \frac{e^2}{h}$  [4].

Pour le calcul de la conductance d'un tel fil entre deux contacts macroscopiques, ceux-ci sont considérés sans interactions et ont un potentiel électrochimique ( $\mu$ ) bien défini. Ce sont des réservoirs d'électrons. Si le fil 1D est en contact avec un tel réservoir, le potentiel des électrons se propageant du réservoir vers le fil doit être égal au potentiel de ce même réservoir au contact ( $x = 0$ ).

Pour satisfaire cette condition un électron de charge  $e$  venant du contact et entrant dans le fil avec interactions voit une partie de sa charge réfléchi avec un coefficient  $\frac{1-g}{1+g}$  et une partie transmise et de même quand une charge sort du fil vers le réservoir. L'interface fil/réservoir joue le même rôle qu'une barrière de potentiel et le fil est équivalent à un interféromètre de Fabry-Perot pour les électrons. Il est possible de cette manière de calculer la conductance du fil en sommant toutes les réflexions multiples [3]. On obtient alors la même conductance que le fil sans interactions  $G = e^2/h$ . Les interactions, aussi fortes soient-elles, ne sont donc pas décelables dans la conductance d'un fil unidimensionnel en bon contact avec des réservoirs.

### 6.2.2 Transport tunnel dans un liquide de Luttinger

La présence d'interactions se reflète dans la densité d'états d'un liquide de Luttinger. En effet il a été montré que pour un liquide de Luttinger infini elle obéit à une loi de puissance près de l'énergie de Fermi ( $E_F = 0$ ) de la forme [4] :

$$n(E) = E^{\alpha-1} \quad \text{avec} \quad \alpha = \frac{1}{2}(g + \frac{1}{g}) > 1 \quad (6.17)$$

On peut vérifier que sans interactions cette densité d'états est constante comme on l'attend pour des électrons libres près du niveau de Fermi. En revanche si  $g \neq 1$  la densité d'états est nulle au niveau de Fermi ce qui traduit la difficulté qu'il y a à injecter un électron individuel dans le liquide de Luttinger fortement corrélé. Les excitations du liquide n'ont plus rien à voir avec les électrons le constituant : ce sont des ondes de densité de charge. Pour injecter un électron dans le liquide de Luttinger il faut exciter tous les autres pour que l'onde de densité de charge s'accomode à cet électron. Ce phénomène est appelé catastrophe d'orthogonalité.

Une quantité physique mesurable liée à cette densité d'états est la résistance tunnel du liquide. La mesure consiste à injecter les électrons des contacts par effet tunnel dans le liquide de Luttinger. La résistance est alors directement liée à la densité d'états par la règle d'or de Fermi. On obtient alors :

$$G(V) \propto n_1(eV)n_2(eV) \quad (6.18)$$

où  $n_1$  et  $n_2$  indiquent respectivement la densité d'états du système initial et final lors du passage par effet tunnel. De plus l'électron se décomposant en deux ondes de charge "droite" et "gauche", il n'est pas équivalent de l'injecter au milieu du fil 1D ou à l'une des

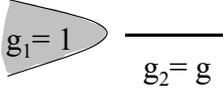
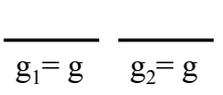
mesure	$\alpha_1-1$	$\alpha_2-1$	G(T ou V)	
	0	$\frac{1}{g} - 1$	$T^{\frac{1}{g}-1}$	Effet tunnel sur une extrémité
	0	$\frac{1}{2}(g + \frac{1}{g} - 2)$	$T^{\frac{1}{2}(g+\frac{1}{g}-2)}$	Effet tunnel dans le volume
	$\frac{1}{g} - 1$	$\frac{1}{g} - 1$	$T^{2(\frac{1}{g}-1)}$	Effet tunnel entre 2 LL ou impureté forte ( $V_0 \gg T$ ) dans un LL en bon contact
			$-T^{2(g-1)}$	Impureté faible ( $V_0 \ll T$ ) dans un LL en bon contact

FIG. 6.2 – Tableau récapitulatif pour les exposants des lois de puissances intervenant dans la conductivité d'un liquide de Luttinger en fonction du type de mesure effectuée. Les contacts métalliques sont représentés par un paramètre Luttinger  $g = 1$  qui correspond à l'absence d'interaction électronique.  $V_0$  représente le potentiel de l'impureté. Dans le dernier cas la conductivité n'est pas calculée par la règle d'or de Fermi mais par un calcul perturbatif (voir texte). Dans le cas du nanotube on remplace  $\alpha - 1$  par  $\frac{1}{4}(\alpha - 1)$  pour tenir compte des quatre canaux de conduction.

extrémités quand la longueur est finie. Ceci se traduit par des exposants différents dans la densité d'états. Si on injecte l'électron par un bout la densité d'états tunnel présente un exposant  $\alpha = \alpha_e = \frac{1}{g}$  alors que si on l'injecte au milieu l'exposant est  $\alpha = \alpha_b = \frac{1}{2}(g + \frac{1}{g})$ . Les lois de puissances qu'on attend pour la conductance en fonction du type de mesure effectuée sont récapitulées sur la figure (6.2).

### Application aux nanotubes de carbone

Un nanotube individuel possède 4 canaux de conduction à cause de la dégénérescence de bande (2 bandes se croisent au niveau de Fermi) et de la dégénérescence de spin. Les exposants sont alors changés suivant la loi  $\alpha_{NT} - 1 = \frac{1}{4}(\alpha_{LL} - 1)$ . On s'attend dans ce cas pour la densité d'états tunnel à des exposants  $\alpha_b = \frac{1}{8}(g + \frac{1}{g} - 2) + 1$  et  $\alpha_e = \frac{1}{4}(\frac{1}{g} - 1) + 1$ . On peut estimer le facteur  $g$  à partir de l'énergie de charge d'après la relation (6.15). La capacité d'un cylindre de longueur  $L$  et de rayon  $R$  est donnée par la formule :

$$C = \frac{2\pi\epsilon_0 L}{\ln(d/R)} \quad (6.19)$$

où  $d$  est la distance au plan de masse. Quand une grille électrostatique est placée à quelques

centaines de nanomètres du nanotube on obtient une capacité de quelques  $10^{-17}$  F pour un nanotube de  $1 \mu\text{m}$  ce qui correspond à une énergie de charge de 100 K. On obtient alors d'après l'équation (6.15)  $g \approx 0.3$  avec  $v_F = 8 \times 10^5$  m/s.

Les lois de puissance particulières au liquide de Luttinger ont été observées dans les nanotubes de carbone à travers la dépendance en tension et en température de la conductance tunnel entre 300 K et 10 K. La plus basse température correspond à l'énergie  $hv_F/L$  en dessous de laquelle la théorie du liquide de Luttinger ne s'applique plus. Cette énergie est aussi inférieure à l'énergie de charge du nanotube et le transport est donc dominé par le blocage de Coulomb en dessous de cette température. La différence entre les exposants  $\alpha_e$  et  $\alpha_b$  a été observée expérimentalement dans les cordes de nanotubes [45] et les tubes individuels [46]. Les mesures permettent d'extraire la valeur de  $g$  de l'ordre de  $g \approx 0.3 \pm 0.05$  qui correspond à la valeur attendue.

Cependant il existe encore une controverse car des lois de puissance semblables ont été observées dans des nanotubes multi-parois diffusifs qui ne peuvent pas être décrits par la théorie des liquides de Luttinger [47]. De telles lois de puissance, qui peuvent s'appliquer pour les tubes mono-parois et multi-parois, sont également prédites par la théorie du blocage de Coulomb dynamique (décrite dans le paragraphe 10.1.3) dans laquelle le nanotube est modélisé par un ligne  $LC$  où  $L$  est l'inductance cinétique. Cependant le blocage de Coulomb dynamique prévoit que le rapport entre les exposants  $\alpha_e$  et  $\alpha_b$  est exactement 2 ce qui n'est pas le cas de la théorie du liquide de Luttinger. Il semblerait en effet que dans le cas des nanotubes individuels le rapport soit différent de 2 mais ce résultat n'est pas très net étant données les incertitudes expérimentales.

Récemment des mesures de photo-émission de densité d'états réalisées sur des cordes de nanotubes semblent confirmer que les nanotubes sont bien décrits par la théorie des liquides Luttinger [48, 49]. Les auteurs de la référence [49] ont aussi observé la disparition des lois de puissance sous l'effet du dopage chimique. Ce comportement est attendu puisque le niveau de Fermi se déplace à des énergies où la structure de bande n'est plus linéaire et des bandes de plus haute énergie peuvent contribuer au transport. Le nombre de canaux de conduction augmente et la théorie des liquides de Luttinger cesse de s'appliquer.

### 6.2.3 Le fil 1D avec une impureté

Nous allons voir maintenant que des mesures réalisées en bons contacts (non tunnel) peuvent aussi montrer des manifestations des interactions. C'est le désordre qui, en piégeant cette onde de densité de charge, révèle les interactions électroniques à l'origine de la formation de cette onde.

#### Conductance du fil infini

Dans la limite où le potentiel de l'impureté est fort le liquide de Luttinger est coupé en deux et l'électron doit passer de l'un à l'autre par effet tunnel. On peut alors estimer le taux de passage et donc le courant grâce à la règle d'or de Fermi comme précédemment. La conductance est directement reliée à la densité d'états tunnel du fil infini. La règle d'or

de Fermi donne le résultat  $G(V) \propto |V|^{(2/g)-2}$ . L'exposant est différent de  $\alpha_e$  car l'électron passe d'un liquide de Luttinger à un autre et non d'un liquide de Fermi (contact) à un liquide de Luttinger (Fig. 6.2). La conductance est donc strictement nulle à température nulle en l'absence de contacts.

Dans le cas d'un potentiel d'impureté faible le calcul perturbatif apporte une correction à la conductance  $ge^2/h$  de la forme  $G(V) - g\frac{e^2}{h} \propto -V^{2g-2}$ . La dépendance en température de la conductance est obtenue en remplaçant  $V$  par  $T$  dans ce cas du fil infini.

La conductance du liquide de Luttinger s'annule à  $T = 0$  suivant une loi de puissance avec la température. L'exposant est directement relié aux interactions. La limite forte barrière/faible barrière dépend de la température et les deux lois de puissance précédentes apparaissent. La limite de faible barrière est valable à température haute devant l'intensité du potentiel et la limite de barrière tunnel s'applique à basse température. On passe d'une limite à l'autre par une loi en température qui n'est pas connue dans le cas général.

### Conductance avec réservoirs

Si l'on prend en compte maintenant le rôle des contacts, une nouvelle échelle d'énergie apparaît, reliée à la taille du LL :  $E_L = \hbar v_\rho/L$ . Dans ce cas à haute température la conductance est celle du fil propre  $e^2/h$  puisque les électrons ne ressentent pas le potentiel de l'impureté. La conductance décroît ensuite comme une loi de puissance de la température et sature pour une température inférieure à  $E_L$  car on entre dans le régime  $L_T > L$  et les électrons qui passent d'un réservoir à l'autre n'ont pas le temps d'être affectés par les interactions.

# Chapitre 7

## Théories de la supraconductivité dans les nanotubes de carbone

Il paraît difficile a priori d'expliquer l'apparition de supraconductivité dans un nanotube qui est un système 1D présentant de très fortes interactions électroniques répulsives. Cependant plusieurs modèles prévoient l'apparition d'interactions attractives dans un nanotube à basse température permettant le développement d'un état supraconducteur dans une corde. Plusieurs mécanismes, que l'on peut classer en deux catégories, sont proposés pour l'apparition de cette interaction attractive : les processus purement électroniques et l'interaction électron-phonon. Nous détaillerons plus particulièrement la théorie développée par *de Martino et Egger* avec qui nous avons collaboré afin de confronter leurs prédictions à nos mesures de transitions supraconductrices des cordes [50].

### 7.1 Les mécanismes d'appariement envisagés dans un nanotube individuel

#### 7.1.1 L'interaction électron/électron

On peut tout d'abord penser que la supraconductivité apparaît grâce à un processus purement électronique. En effet il a été prédit que la supraconductivité peut se développer dans un système de deux liquides de Luttinger couplés [51]. On peut tout à fait modéliser le nanotube de cette manière puisque sa structure de bande proche du niveau de Fermi est linéaire et deux fois dégénérée comme deux liquides de Luttinger. Cependant il semble que pour le cas spécifique des nanotubes ce phénomène ne peut se développer qu'à très basse température à cause du couplage trop faible [52].

D'autre part *Perfetto et al* [53] ont développé un modèle de Hubbard sur un réseau hexagonal pour un nanotube armchair individuel sans interaction électron-phonon. L'interaction électronique peut s'annuler pour certains couples de quasi-particules, conduisant à la formation de paires d'électrons. Le rôle des phonons de la théorie BCS est en fait joué par des paires électron-trou. Cependant ce modèle n'est valable que loin du demi-

remplissage quand la structure de bande du nanotube n'est plus linéaire. Ceci suggère qu'il pourrait exister une supraconductivité dans des nanotubes dopés chimiquement avec des métaux alcalins. Cette supraconductivité est très proche de celle observée dans le graphite intercalé, qui se passe loin du demi-remplissage mais avec de vrais phonons, et ne fait pas intervenir le caractère Luttinger des nanotubes.

D'autres modèles prennent en compte le couplage électron-phonon et le caractère unidimensionnel des nanotubes.

### 7.1.2 L'interaction électron/phonon

#### Les phonons des nanotubes

La relation de dispersion des phonons dans un nanotube peut être obtenue, comme pour la structure de bande électronique, à partir de celle du graphène en imposant des conditions de quantification sur la composante  $k_{\perp}$  du vecteur d'onde à cause du repliement du feuillet sur lui-même [41, 54]. On distingue deux types de phonons :

- les phonons acoustiques qui font osciller les deux sous réseaux en phase sont caractérisés par une relation de dispersion linéaire ( $\omega = vk$ ) à basse fréquence. Ce sont donc des phonons de basse énergie.
- les phonons optiques qui représentent un déplacement relatif d'un sous-réseau par rapport à l'autre ont une fréquence finie à vecteur d'onde nul.

Généralement un matériau 3d présente 3 modes acoustiques qui correspondent aux 3 degrés de liberté de translation. Dans le nanotube cependant il n'existe que deux vrais modes acoustiques (élongation (E) et twisting (T)), le troisième qui correspond au mode de respiration (R) du tube est coupé à basse fréquence à cause du rayon fini du nanotube. Ce mode de respiration correspond quand même à des énergies moins importantes que les phonons optiques. La relation de dispersion pour ces 3 modes est donnée par :

$$\begin{aligned}\epsilon_{RBM}(q) &= 0.14/R \quad \text{eV}/\text{\AA} \\ \epsilon_E(q) &= v_s q \\ \epsilon_T(q) &= v_T q\end{aligned}$$

avec  $v_s = 2 \times 10^4$  m/s et  $v_T = 1.23 \times 10^4$  m/s [55].

#### Les différents couplages électrons/phonons

Le couplage des électrons à des modes acoustiques ou optiques a été envisagé par différents auteurs et il n'existe pas encore de consensus sur le couplage le plus efficace pour le développement de la supraconductivité. Bien que le couplage du liquide de Luttinger à des phonons acoustiques puisse conduire à une instabilité donnant lieu à une interaction électronique attractive [56], il semble admis maintenant que dans le cas des nanotubes le couplage aux deux modes acoustiques n'est pas assez important pour l'apparition de supraconductivité à cause de leur vitesse trop faible devant la vitesse de Fermi. Cependant

certain auteurs rendent compte de l'interaction attractive grâce au couplage au mode de respiration qui n'est pas un vrai mode optique puisque les deux sous réseaux ont le même mouvement [55] alors que les autres pensent qu'il faut un couplage à des vrais modes optiques [57, 58, 59].

Pour le couplage aux phonons optiques, *Sédéki et al* [57, 54] par exemple traitent le cas des nanotubes armchair par la technique du groupe de renormalisation. Ils concluent que la supraconductivité ne peut pas se développer dans ce type de tubes au demi-remplissage. Par contre l'ordre supraconducteur se développe si le niveau de Fermi s'éloigne du demi-remplissage à cause d'un nouveau processus de rétrodiffusion qui apparaît entre les états d'impulsion  $k_F + q$  et  $k_F - q$  qui ne sont plus dégénérés. Le phénomène est encore plus fort pour les nanotubes de petit diamètre car une troisième bande apparaît au niveau de Fermi à cause d'un effet de courbure. La supraconductivité peut alors apparaître sans dopage. Les auteurs [57] signalent aussi que la situation est différente pour un nanotube zigzag dans lequel les fluctuations supraconductrices seraient plus fortes. Ils soulignent que dans une corde de nanotubes, en dessous de la température de transition dimensionnelle  $T_x = t_{\perp}/\pi$ , le saut électronique inter-tube peut se faire de manière cohérente ce qui peut favoriser la stabilisation d'une phase supraconductrice comme dans les supraconducteurs organiques. Dans les cordes de nanotubes sans désordre, nous savons (cf chapitre 10.2) que ce saut est assez faible et même nul au premier ordre si les tubes ont des hélicités différentes à cause de la conservation du moment parallèle. Au second ordre, on peut estimer un couplage moyen  $t_{\text{eff}} = t_{\perp}^2/\delta\epsilon \sim 2 \text{ K}$  ((cf chapitre 10.2).

De même *Gonzalez* [58, 59] arrive à la conclusion qu'avec le couplage aux modes optiques l'interaction ne peut se développer que si le nanotube est dopé. Cependant il précise que dans une corde les paires de Cooper, une fois formées dans chaque tube, sautent plus facilement que les quasi-particules d'un tube à l'autre créant un couplage Josephson entre les tubes. En effet le saut électronique inter-tube est très réduit pour des raisons de conservation de l'impulsion (chap. 10.3) alors que les paires de Cooper, qui ont une impulsion totale nulle, peuvent sauter sur des tubes de différentes hélicités. Ce phénomène permettrait donc le développement d'un état supraconducteur dans une corde de nanotubes.

Enfin dans la référence [55] les auteurs prétendent que les phonons de basse énergie, notamment les modes de respiration, se couplent assez fortement au liquide Luttinger pour créer une interaction attractive entre électrons, en dehors du demi-remplissage. Ils parviennent aussi à prédire l'allure des transitions en prenant en compte le couplage Josephson inter-tube. Nous allons maintenant expliquer plus en détail ce modèle microscopique qui a été explicitement développé pour l'étude des cordes de nanotubes que nous avons mesurées expérimentalement [60]. Tout d'abord, notons que ce modèle (comme les précédents) ne prévoit l'apparition de supraconductivité qu'à condition que les interactions électroniques soient fortement écrantées. Ceci n'est pas évident pour un nanotube individuel mais nous allons voir que cette hypothèse est raisonnable pour une corde de nanotubes.

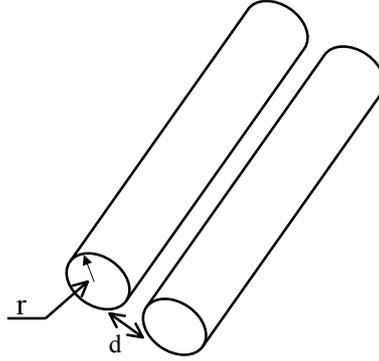


FIG. 7.1 – Modélisation des tubes dans une corde pour calculer la capacité. Pour nos échantillons :  $R = 0.7$  nm,  $d = 0.3$  nm et  $L \approx 1\mu\text{m}$ .

## 7.2 Ecrantage dans une corde de nanotubes

Comme nous l'avons vu au chapitre 5, dans une corde, les nanotubes sont très proches les uns des autres, la distance inter-tube est inférieure au rayon des tubes. Ainsi les électrons d'un tube sont écrantés par les tubes adjacents. Afin d'évaluer cet écrantage, on peut calculer classiquement la capacité entre deux cylindres parallèles de rayon  $R$ , séparés par une distance  $d$  (Fig. 7.1). La capacité entre ces deux tubes s'écrit [61] :

$$C = \frac{2\pi\epsilon_0 L}{\ln(1 + d/R + d^2/2R^2)} \approx 1.3 \times 10^{-16} \text{F} \quad (7.1)$$

On obtient donc une capacité qui est un ordre de grandeur supérieure à celle d'un nanotube isolé (note de bas de page 71). On peut maintenant calculer ce que vaut le paramètre  $g$  si l'on considère ces nanotubes comme des liquides de Luttinger. On a vu que ce paramètre s'écrit en fonction de l'énergie de charge :  $g = (1 + E_c/\Delta)^{-1/2}$ . L'écart entre niveaux ne change pas si l'on considère les nanotubes indépendants (on néglige le saut inter-tube) et on obtient  $g \approx 0.75$ . On obtient donc un écrantage efficace en considérant que deux tubes s'écrantent mutuellement. Cet écrantage est encore meilleur en réalité puisque chaque tube conducteur est entouré en moyenne de deux tubes métalliques qui peuvent l'écranter<sup>1</sup>. De plus les seconds voisins ne sont pas très éloignés, ce qui améliore encore l'écrantage. Le paramètre d'interaction est donc vraiment très différent dans une corde par rapport à un tube individuel et on se rapproche du cas sans interaction avec  $g = 1$ . Il est donc plus facile pour la supraconductivité de se développer dans une corde où la répulsion coulombienne est assez faible que dans un tube isolé avec de fortes interactions.

<sup>1</sup>statistiquement 1/3 des tubes sont métalliques et dans une corde ils sont arrangés sur un réseau triangulaire donc 6 voisins.

## 7.3 Théorie de *Egger et de Martino*

### 7.3.1 Développement de l'interaction attractive dans la corde

Les auteurs ont tout d'abord calculé le couplage électron-phonon afin de préciser les phonons qui sont responsables de l'interaction attractive dans un seul tube[55]. Il ressort que les modes de respiration du nanotube (modes transverses) et dans une moindre mesure les modes d'élongation (modes longitudinaux) sont les phonons responsables d'une interaction électronique attractive. Ceci est vrai à condition que l'interaction coulombienne dans chaque nanotube soit complètement écrantée par l'environnement électrostatique et que le nanotube soit légèrement dopé pour lever la dégénérescence des deux modes de propagation au niveau de Fermi. L'hélicité n'intervient pas pour le couplage car ce sont des phonons quasi acoustiques qui dépendent donc peu des détails du réseau. Les paires électroniques qui se forment alors sont dans un état singulet sur un seul tube. L'état singulet est le plus favorable même en considérant la transition supraconductrice dans deux tubes couplés pour lesquels un triplet avec un électron de la paire dans chaque tube pourrait apparaître.

Pour modéliser une corde de nanotubes, ils considèrent uniquement des nanotubes conducteurs qui sont décrits comme des liquides de Luttinger et arrangés sur un réseau triangulaire. L'interaction Coulombienne est considérée comme complètement écrantée par les tubes voisins ce qui est raisonnable comme nous l'avons constaté au paragraphe précédent. En prenant en compte les interactions attractives médiées par les modes de vibration, ils obtiennent alors un paramètre Luttinger  $g = 1.3$ . Ils introduisent ensuite dans ce modèle un couplage Josephson entre plus proches voisins comme discuté précédemment [58] qui permet le développement de la phase supraconductrice sur toute la corde.

Une température critique  $T_C^0$  peut alors être estimée par une méthode de champ moyen. Evidemment dans un système de basse dimension cette méthode ne rend pas compte des fortes fluctuations que présente le paramètre d'ordre et ne peut donc pas prévoir la température critique réelle. Les auteurs supposent ensuite que c'est uniquement l'amplitude du paramètre d'ordre qui est fixe sous cette température et que le couplage Josephson stabilise une seule phase du paramètre d'ordre supraconducteur sur toute la corde de nanotubes et ceci d'autant plus efficacement que le nombre de tubes dans la corde sera important. L'évolution de cette phase globale peut alors être décrite par un seul paramètre qui caractérise sa rigidité ( $\mu$ ).

### 7.3.2 Les sauts de phase

#### Qu'est-ce qu'un saut de phase ?

Dans un tel système unidimensionnel il faut prendre en compte les fluctuations du paramètre d'ordre supraconducteur. Pour comprendre ce phénomène on peut repartir de l'expression de l'énergie libre d'un fil supraconducteur en fonction du paramètre d'ordre  $\psi$

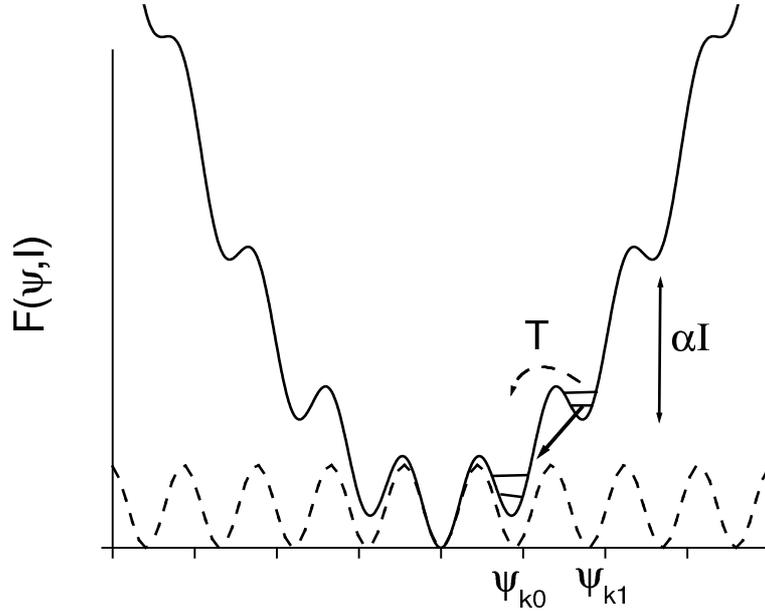


FIG. 7.2 – Représentation schématique de l'énergie libre du fil supra. en pointillé l'énergie libre en l'absence de courant dans le fil. Les sauts de phase thermiquement activés passent au-dessus de la barrière d'énergie, les sauts de phase quantiques passent à travers la barrière par effet tunnel.

dans la théorie de Ginzburg-Landau :

$$F[\psi(r)] = \int dr (|\nabla\psi|^2 - \alpha|\psi|^2 + \frac{1}{2}\beta|\psi|^4) \quad (7.2)$$

Les propriétés du fil sont alors données par le paramètre d'ordre  $\psi(r)$  qui minimise l'énergie libre. Cependant les fluctuations permettent au système de tester d'autres possibilités pour le paramètre d'ordre  $\psi(r)$ .

La minimisation de cette énergie par rapport à  $\psi$  conduit à l'équation :

$$-\nabla^2\psi - \alpha\psi + \beta|\psi|^2\psi = 0 \quad (7.3)$$

qui accepte des solutions de la forme  $\psi_k = f_k e^{ikx}$  où les  $k$  sont quantifiés en multiples de  $2\pi/L$  à cause de la longueur finie du fil. Chaque solution est un minimum local de l'énergie libre et correspond à une valeur de courant traversant le fil donnée par  $J = kf_k^2$ . On peut représenter l'état du système ( $\psi$ ) comme une particule fictive évoluant dans un potentiel effectif contenant plusieurs minima locaux (Fig. 7.2)[62, 63]. Ainsi les  $\psi_k$  sont des états métastables et le système peut passer de l'un à l'autre par activation thermique [62] ou par effet tunnel (quantique) [64]. Quand le système passe d'une valeur  $\psi_k$  à la valeur voisine  $\psi_{k-2\pi/L}$  la phase du système change d'une valeur  $\Delta\varphi = \Delta kL = 2\pi$  en un temps  $\tau$ .

D'après la relation de Josephson, ceci crée une tension dans le fil. Si l'on note  $\Gamma(k \rightleftharpoons$

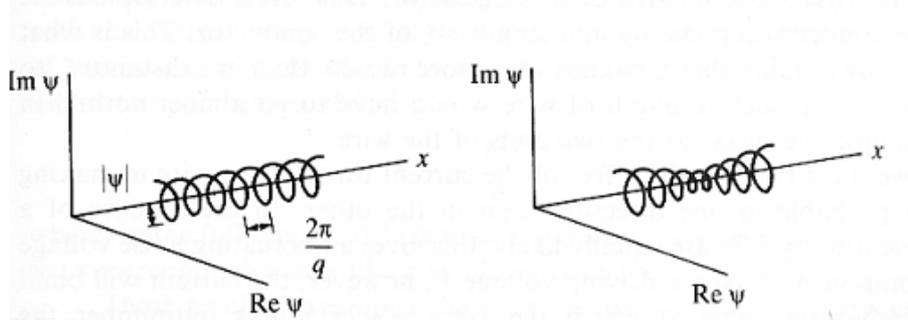


FIG. 7.3 – Représentation du paramètre d'ordre supraconducteur. Le vecteur d'onde  $q$  est proportionnel au courant transporté. À droite nucléation d'un saut de phase, l'amplitude du paramètre d'ordre tombe à 0 et le nombre de tours de l'hélice change de 1. [63]

$k - 2\pi/L$ ) le taux de saut de phase entre deux minima on obtient :

$$\frac{2e}{\hbar} \Delta V = 2\pi(\Gamma(k \rightarrow k - 2\pi/L) - \Gamma(k - 2\pi/L \rightarrow k)) \quad (7.4)$$

À courant nul tous les états ont la même énergie libre et les deux taux ont la même amplitude, ce qui crée un bruit en tension à fréquence finie mais aucune tension continue n'apparaît. Par contre l'application d'un courant incline le potentiel effectif, ce qui favorise un sens de saut de phase plutôt que l'autre (Fig. 7.2). Une tension apparaît donc aux bornes du fil et on peut définir une résistance non nulle. Ce phénomène prend place sur une longueur de l'ordre de  $\xi$  qui est la longueur minimum sur laquelle le paramètre d'ordre supraconducteur peut varier. Il reflète une compétition entre l'entropie qui favorise la prolifération des sauts de phase et l'énergie élastique du système qui favorise la rigidité de la phase.

Pour comprendre ce phénomène, on peut représenter le paramètre d'ordre supraconducteur comme une hélice de période  $\lambda = 2\pi/k$  le long du fil supraconducteur (Fig 7.3). Le nombre de boucles de l'hélice est  $N = L/\lambda = kL/2\pi$ . Lors d'un saut de phase de  $k$  vers  $k - 2\pi/L$ , le nombre de boucles passe donc de  $N$  à  $N - 1$ . Ceci ne peut se faire que si l'amplitude du paramètre d'ordre s'annule sur une certaine distance ce qui crée une zone normale dissipative.

### Les sauts de phase dans la théorie de *de Martino et Egger*

Pour évaluer une température critique plus réaliste que par l'approximation de champ moyen, les auteurs introduisent des sauts de phase quantiques mais d'une manière différente : ils considèrent uniquement des paires de sauts de phase ainsi que les interactions entre ceux-ci. Ils arrivent ainsi à rendre compte de la compétition entre la prolifération des sauts de phase et la rigidité qui dépend de la température. Dans ce modèle une transition Berezinski-Kosterlitz-Thouless (BKT) a lieu pour une valeur déterminée de la rigidité en

dessous de laquelle les sauts de phase détruisent complètement l'état supraconducteur. La dépendance en température de la rigidité peut être évaluée et il est possible d'estimer une température critique plus réaliste et plus faible que le modèle champ moyen.

$$\frac{T_c}{T_c^0} = \left(1 - \frac{2}{N\nu}\right)^{g/(g-1)} \quad (7.5)$$

$\nu$  est relié aux paramètres microscopiques de la corde dans le cas idéal sans désordre et avec uniquement des tubes métalliques. Pour comparer aux expériences  $\nu$  est donc laissé comme un paramètre libre de la théorie dont la valeur doit être d'ordre 1. La déviation de ce paramètre par rapport à 1 rend compte de l'effet d'un désordre de composition. En effet dans une corde de nanotubes environ 2/3 sont semi-conducteurs et ne participent pas à la supraconductivité ce qui n'est pas pris en compte dans le modèle. Ceci a pour effet de diminuer le couplage Josephson effectif puisque le nombre de premiers voisins diminue. On peut aussi imaginer qu'une corde de nanotubes est constituée de plusieurs groupes de tubes métalliques qui ne percolent pas. Ainsi une mesure de transport montre une transition supraconductrice qui correspond à un nombre de tubes plus faible que celui estimé par la résistance de contact.

Dans la référence [60] les variations de résistance lors de la transition pour la partie basse température est aussi reliée aux sauts de phase quantiques. A partir du modèle de supraconductivité dans la corde qu'ils ont développé, les auteurs ont calculé l'énergie libre en présence de courant et les taux de passage tunnel pour les sauts de phase et donc la résistance en fonction de la température à partir de la relation Josephson. Celle-ci est représentée sur la figure 7.4. On voit que pour 100 tubes la transition est déjà très large comparée à des supraconducteurs de plus haute dimensionnalité et le nombre de tubes influence fortement la forme de la transition.

### 7.3.3 Limitations du modèle

Il faut bien noter qu'il ne faut pas prendre en compte la partie haute température pour laquelle le modèle n'est pas valable. Par exemple il ne peut rendre compte de la saturation de résistance dans l'état normal. De plus comme ni le désordre ni la longueur finie des tubes ne sont pris en compte, la résistance dans l'état normal est nulle ! C'est-à-dire plus basse que dans l'état supraconducteur. Ce modèle permet uniquement de décrire correctement la loi de puissance en température mais pas le préfacteur car aucune dissipation n'est présente dans l'Hamiltonien de départ (le système est balistique et infini). On voit donc bien qu'il est nécessaire d'inclure le désordre dans le modèle pour obtenir des comparaisons plus satisfaisantes. Ce désordre devrait non seulement donner la résistance de l'état normal mais aussi modifier l'apparition des sauts de phase qui nucléent plus facilement autour d'une impureté. De plus pour les cordes contenant un faible nombre de tubes l'hypothèse de l'écrantage parfait ne paraît pas très bonne puisque la plupart des tubes se trouvent à la surface de la corde.

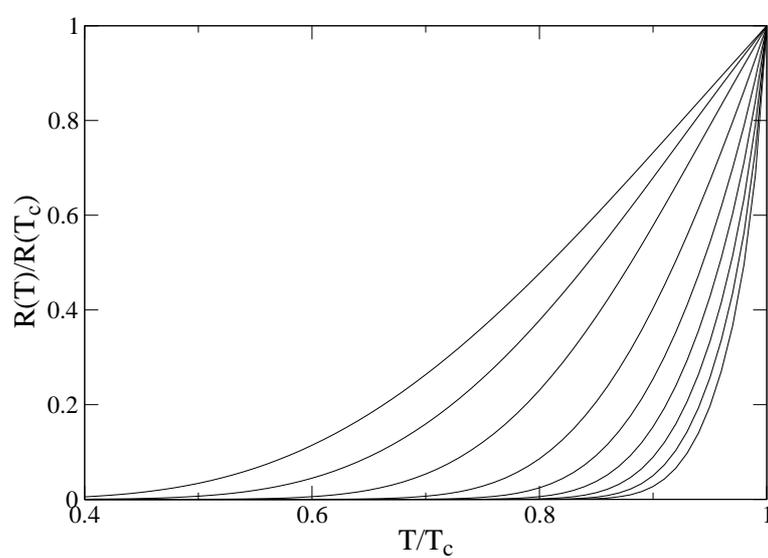


FIG. 7.4 – Evolution de la résistance en fonction de la température dans l'état supraconducteur pour différents nombre de nanotubes dans la corde. Le plus petit  $N$  correspond à la transition la plus large. Pour les différentes courbes on a  $N = 4, 7, 19, 37, 61, 91, 127, 169, 217$ .



# Chapitre 8

## Fabrication des échantillons de nanotubes

### 8.1 Fabrication des nanotubes

Au cours de cette thèse nous avons utilisé différents types de nanotubes : des cordes de nanotubes fabriquées par arc électrique au GDPC de Montpellier pour les expériences de transport, des cordes fabriquées par la méthode Hipco à Rice University pour les mesures d'aimantation. Nous avons également contacté des nanotubes multiparois pour mettre au point la méthode de dépôt avec le laser. Il convient de remarquer que ces différents nanotubes sont synthétisés à l'aide de catalyseurs différents. On peut s'attendre à ce que la nature du potentiel désordonné varie.

#### 8.1.1 La méthode par arc

Cette méthode consiste à générer un arc électrique entre deux électrodes de graphite dans une atmosphère d'hélium [65]. Le catalyseur est un mélange Y-Ni qui est incorporé dans l'anode. On obtient ainsi des cordes de nanotubes qui contiennent de la dizaine à quelques centaines de nanotubes dont le diamètre moyen est compris entre 1.2 et 1.4 nm avec une distance inter-tubes de 0.3 nm. Lors de cette synthèse une quantité importante de carbone amorphe et de graphite est également produite.

Les nanotubes sont donc ensuite purifiés [66] pour éliminer le catalyseur et les produits parasites de la fabrication. Pour cela le produit de la fabrication est dispersé dans une solution d'acide nitrique puis porté à reflux avant d'être centrifugé. La partie contenant les nanotubes (noire) est ensuite extraite, filtrée, rincée à l'éthanol puis recuite à 350 ° C et à 1600 ° C afin d'éliminer les surfactants et les particules de catalyseur restant. Après ce traitement la solution obtenue est composée de plus de 90% de cordes de nanotubes et 2% de catalyseur sous forme de nanoparticules de Ni, Y et leurs oxydes.

Nous avons caractérisé chimiquement de telles cordes grâce à la spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS) réalisée dans un STEM. Nous avons ainsi pu vérifier qu'elles

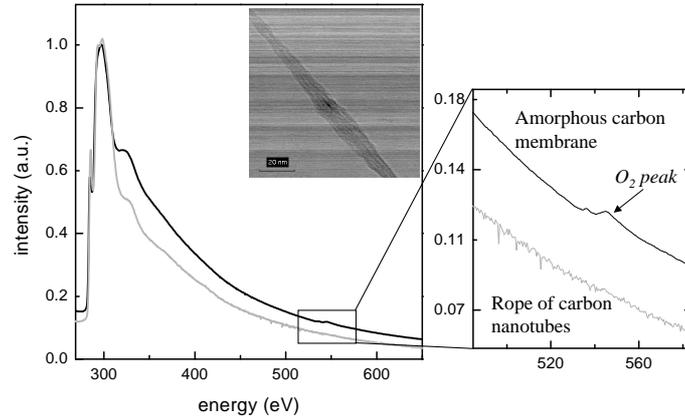


FIG. 8.1 – Spectre typique EELS obtenu sur une corde de nanotubes de carbone (courbe claire), comparé au spectre EELS de la membrane de carbone amorphe qui soutient les nanotubes avant dépôt (courbe foncée). Le pic du carbone à 285.5 eV est visible dans les deux spectres. Le pic de l'oxygène à 540 eV est beaucoup plus grand pour la membrane que pour la corde et on peut estimer la quantité d'O<sub>2</sub> dans la corde à moins de 1.5% atomique.

contiennent moins de 1.5% atomique de dioxygène (Fig. 8.1) qui aurait pu jouer un rôle de dopant chimique.

### 8.1.2 La méthode HipCO (High pressure CO conversion)

Le précurseur pour cette méthode est Fe(CO)<sub>5</sub> qui est décomposé à haute température (entre 900 et 1100 °C) et à haute pression (30-50 atm) [67] pour former des nanoparticules de fer servant de catalyseur à la réaction :



Les nanotubes sont synthétisés grâce à un flux continu de CO mélangé à une petite quantité de Fe(CO)<sub>5</sub>. Après purification dans un acide et recuit on obtient plus de 90% de cordes de nanotubes et quelques pourcents de nanoparticules de fer. La principale différence avec la méthode par arc est que le diamètre moyen des nanotubes est plus petit (1.1 nm) mais leur dispersion est beaucoup plus importante (0.7 nm à 1.4 nm). De plus les cordes sont constituées d'un plus petit nombre de nanotubes (environ une dizaine).

## 8.2 Fabrication des fentes

Les mesures de transport sont effectuées sur des cordes de nanotubes suspendues en travers d'une fente. Nous présentons dans cette partie la fabrication des fentes et des contacts sur lesquels nous soudons le tube avec la technique présentée dans le paragraphe

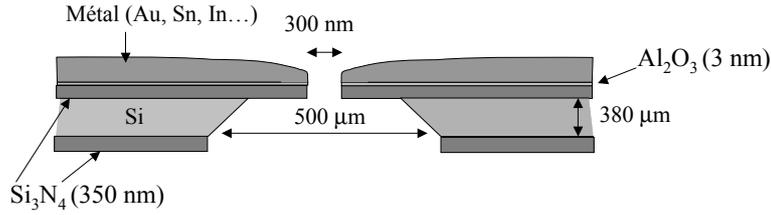


FIG. 8.2 – Schéma d'une fente réalisée pour les mesures de transport vue de côté.

suivant. Les fentes avec lesquelles ont été faites les mesures montrant la supraconductivité ont pour l'instant toutes été fabriquées par A. Kasumov grâce à un faisceau d'ion focalisé (FIB). Pendant cette thèse nous avons collaboré avec l'équipe de L. Buchaillet de l'IEMN<sup>1</sup> afin de fabriquer de nouvelles fentes à plus grande échelle et qui sont maintenant utilisées dans le groupe. C'est cette méthode que je présente dans la suite. Les deux méthodes diffèrent par l'étape d'ouverture de la fente qui se fait avec le FIB pour A. Kasumov et par lithographie électronique à l'IEMN.

La fabrication des fentes telle que présentée ici a été faite à l'IEMN par V. Agache. Le dépôt de la couche d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) a été réalisé à Thales (Orsay) par A. Vorrès.

Le but de la fabrication est d'obtenir, sur un substrat de silicium, une membrane de nitrure ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) dont une partie ( $200\ \mu\text{m} \times 3\ \mu\text{m}$ ) est suspendue et dans laquelle une fente de longueur  $100\ \mu\text{m}$  et de largeur comprise entre  $0.2\ \mu\text{m}$  et  $1\ \mu\text{m}$  est découpée. On dépose ensuite différentes couches de métaux pour réaliser les contacts (Fig. 8.2).

- La première étape consiste à faire croître une couche de nitrure de silicium de 350 nm sur un wafer de Silicium de  $380\ \mu\text{m}$ . Le nitrure déposé doit être faiblement contraint afin qu'il ne se replie pas lors de l'ouverture de la fente et que les deux bords de la fente restent en face l'un de l'autre.
- Dans une deuxième étape les fentes sont définies par lithographie électronique puis gravées par gravure ionique réactive (RIE) (plasma  $\text{CF}_4$ ) dans le nitrure de la face avant du wafer. Plusieurs géométries de fentes ont ainsi été réalisées (Fig. 8.3).
- L'étape suivante consiste à ouvrir le nitrure en face arrière afin de graver ensuite chimiquement le silicium jusqu'au nitrure de la face avant et d'ouvrir la fente. Les fenêtres d'ouverture en face arrière sont définies par lithographie optique puis gravées par RIE ( $\text{CF}_4$ ,  $\text{CHF}_3$ ) (Fig. 8.4). Le silicium entre les deux couches de nitrure est ensuite gravé chimiquement dans un bain de KOH afin d'obtenir la membrane suspendue avec une fente ouverte (Fig. 8.4 et 8.5). La gravure chimique attaquant le Si suivant un axe cristallographique faisant un angle  $\alpha$  avec la base du wafer, l'ouverture du  $\text{Si}_3\text{N}_4$  en face arrière doit avoir une dimension bien précise pour que la partie suspendue du nitrure en face avant mesure bien les quelques microns prévus.

<sup>1</sup>Institut d'électronique de microélectronique et de nanotechnologies, Lille.

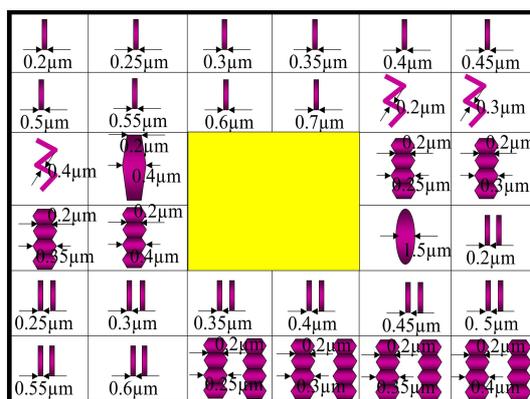


FIG. 8.3 – Formes et dimensions des fentes réalisées à Lille. Ce motif élémentaire est répété sur tout le wafer de 3 pouces.

- Pour vérifier que les fentes sont bien ouvertes nous avons utilisé le TEM qui permet grâce à la diffraction d'être sûr qu'il n'y a pas de matière dans la fente. Il est toutefois beaucoup plus simple d'utiliser un microscope optique en éclairant la membrane trouée par en dessous. On voit très bien ainsi si la fente est ouverte.
- Nous avons ensuite déposé une fine couche d'alumine (entre 3 et 5 nm) sur l'ensemble du wafer qui sert de matériau réfractaire lors du pulse laser quand on soude les tubes.
- Il reste ensuite à définir les électrodes en face avant par lithographie électronique grâce aux marques d'alignement dessinées lors des toutes premières étapes de la fabrication.
- On dépose ensuite 3 nm de platine qui sert de couche d'accroche pour l'or sur l'alumine et 200 nm d'or (Fig 8.6). Pour enlever le PMMA déposé lors de l'étape de lithographie on utilise un bain d'acétone sans ultra-sons pour ne pas endommager les membranes.
- Afin de vérifier que les contacts sont bien définis et que la fente est toujours ouverte après le dépôt des contacts nous avons à nouveau utilisé un microscope optique en éclairant la membrane par en dessous. Le taux de réussite du premier essai était seulement de quelques pourcents soit une vingtaine de fentes.

Pour la prochaine campagne de fabrication de ce type qui est en cours il est prévu de diminuer l'épaisseur de nitrure et donc de PMMA utilisé dans les étapes de lithographie. Ceci devrait permettre de réaliser les doubles fentes (Fig. 8.3) qui se sont toutes effondrées lors de cette première fabrication à cause de la dose trop lourde de PMMA sur la partie centrale de la double fente. Cette structure de double fente devrait nous permettre de bénéficier d'une grille électrostatique à 200 nm des nanotubes déposés si l'on métalise la

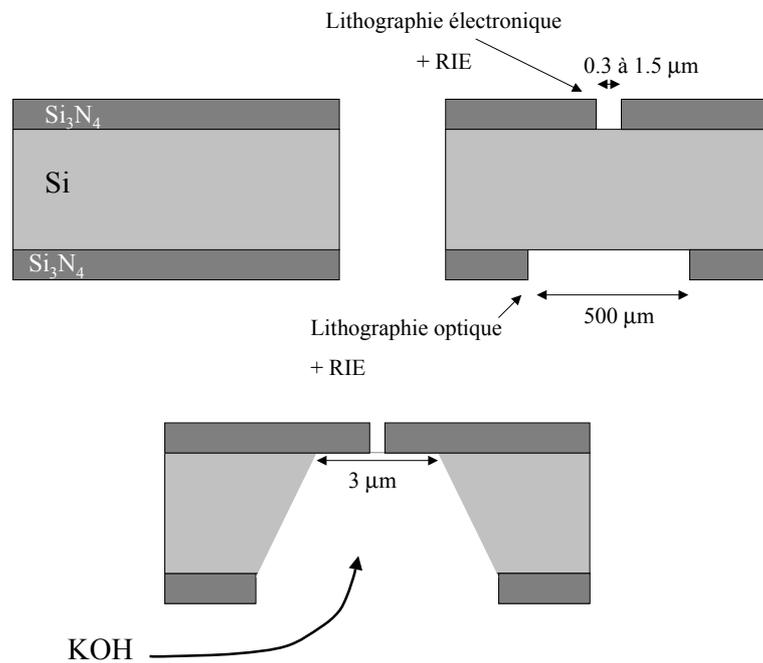


FIG. 8.4 – Etapes de gravure du nitrure et du silicium pour dégager la fente et obtenir une partie de nitrure suspendue.

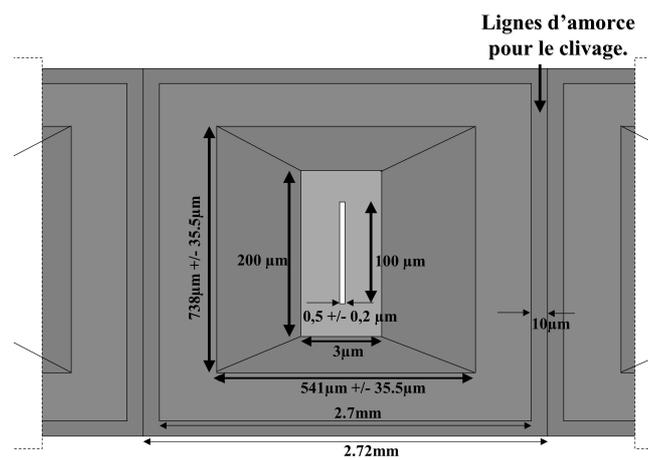


FIG. 8.5 – Schéma d'une membrane trouée (face arrière).

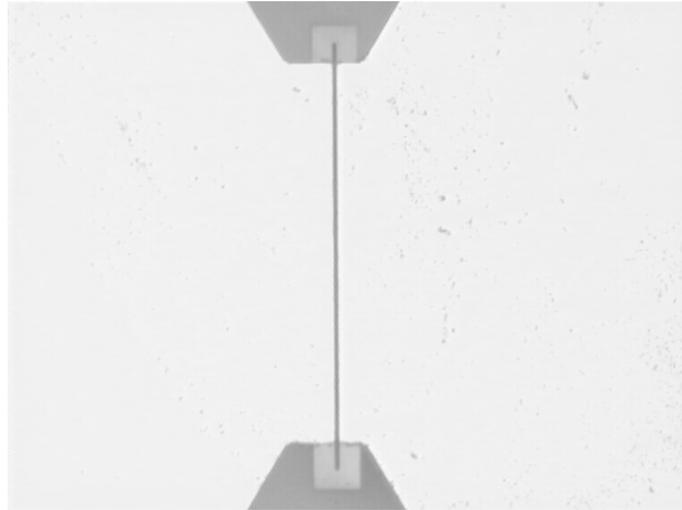


FIG. 8.6 – Image d’une fente au microscope optique à la fin du processus de fabrication.

face arrière de la membrane.

L’intérêt de déposer les cordes de nanotubes sur ces fentes est de pouvoir les caractériser par TEM (transmission electron microscope) fonctionnant avec une énergie de 100 kV pour les électrons ainsi que par STEM (scanning transmission electron microscope) qui permet de faire une analyse EELS avec une résolution spatiale de quelques Å. Pour ceci nous avons collaboré avec l’équipe de microscopie du LPS<sup>2</sup>. On peut ainsi observer la structure des cordes déposées, mesurer leur diamètre et le diamètre des nanotubes les constituant. Le TEM permet aussi de vérifier que les cordes déposées ne sont pas recouvertes de métal et de voir les nanoparticules de catalyseur présentes sur les cordes déposées. Grâce au STEM, ces nanoparticules peuvent être analysées chimiquement. Ces observations ne sont pas sans conséquence et les échantillons sont endommagés par le faisceau d’électron de 100 keV. Il faut donc faire des analyses rapides et après les mesures de transport. On peut quand même tirer parti de cela si l’on veut détruire une corde bien précise en travers de la fente quand plusieurs ont été déposées : il suffit de focaliser le faisceau électronique dessus pendant quelques secondes.

### 8.2.1 La nanosoudure laser

Dans cette thèse nous avons réalisé des mesures de transport à travers des cordes de nanotubes en bon contact avec des électrodes. Pour ce faire nous avons soudés les nanotubes afin d’éviter toute barrière tunnel entre les nanotubes et l’électrode et de réaliser ainsi un contact ohmique.

Pour cela nous diluons tout d’abord les nanotubes dans une solution de  $C_2H_4Cl_2$  que nous passons aux ultra-sons pendant environ 10 minutes afin de les disperser. Nous déposons ensuite quelques gouttes de cette solution sur une membrane utilisée en TEM qui

<sup>2</sup>O. Stephan, A. Gloter, M. Kociak et C. Colliex

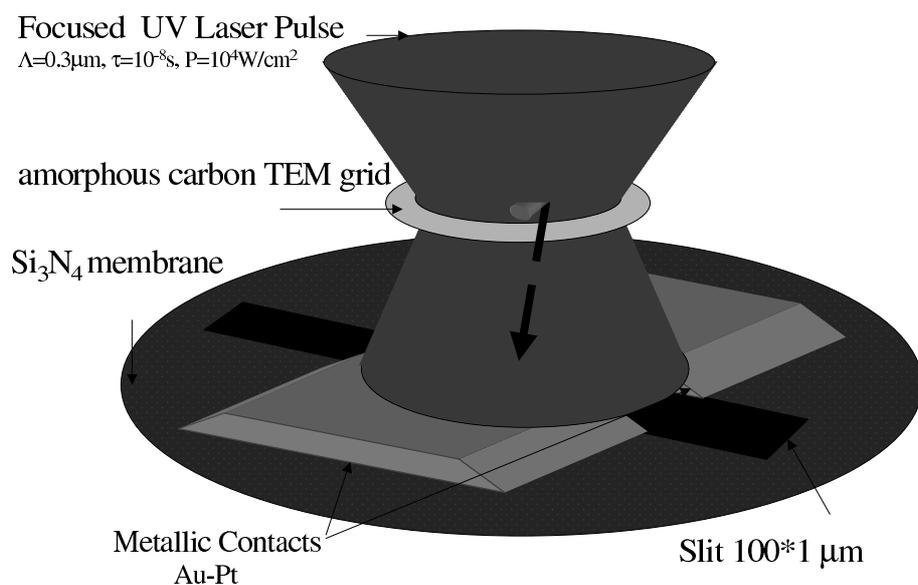


FIG. 8.7 – Schéma du dépôt laser.

servira de "cible" pour le laser. Cette cible de  $3\text{ mm}^2$  est composée d'une armature de cuivre formant des carré de  $10\mu\text{m}$  et recouverte d'une peau de carbone amorphe trouée. On peut ainsi vérifier au TEM que la concentration de nanotubes est bonne, c'est à dire quelques tubes par  $\mu\text{m}^2$ . En effet la taille du faisceau qu'on utilise ensuite peut varier entre 2 et  $100\mu\text{m}$  et on veut qu'au moins un tube se trouve dans le faisceau quelque soit l'endroit de la grille mais on ne veut pas non plus qu'il y en ait trop.

Nous plaçons ensuite la cible sur une membrane fendue puis nous envoyons une impulsion laser pour détruire la peau de carbone sur quelques microns carrés et en même temps fondre le métal des deux cotés de la fente. Si une corde de nanotube est dans le faisceau du laser alors elle tombe et comme le métal en dessous est fondu la corde se retrouve soudée en travers de la fente.

Le laser utilisé est un laser excimer utilisant comme gaz le KrF. Il produit des impulsions de 3 ns et de longueur d'onde 248 nm. On utilise pour le dépôt une puissance de  $10^7\text{W/cm}^2$  focalisée sur quelques microns (entre 3 et  $100\mu\text{m}$  suivant le diaphragme utilisé).

Lors du dépôt nous mesurons en même temps la résistance de la fente qui est infinie quand aucun tube n'est déposé et devient finie quand un tube est soudé. Le procédé est donc de donner des pulses séparés de quelques microns le long de la fente jusqu'à ce qu'un tube soit soudé et qu'une résistance apparaît. Il arrive aussi que la puissance laser utilisée soit trop forte ce qui peut créer des courts circuits très fins en travers de la fente. Il nous suffit alors de passer un courant de quelques milliampères grâce au même montage qui nous sert à mesurer la résistance.

A Orsay, nous avons pour l'instant essentiellement réussi à déposer des tubes multiparois comme sur la figure car ils sont plus faciles à disperser (Fig. 8.8).

Nous effectuons ensuite des mesures de transports sur ces échantillons qui sont placés

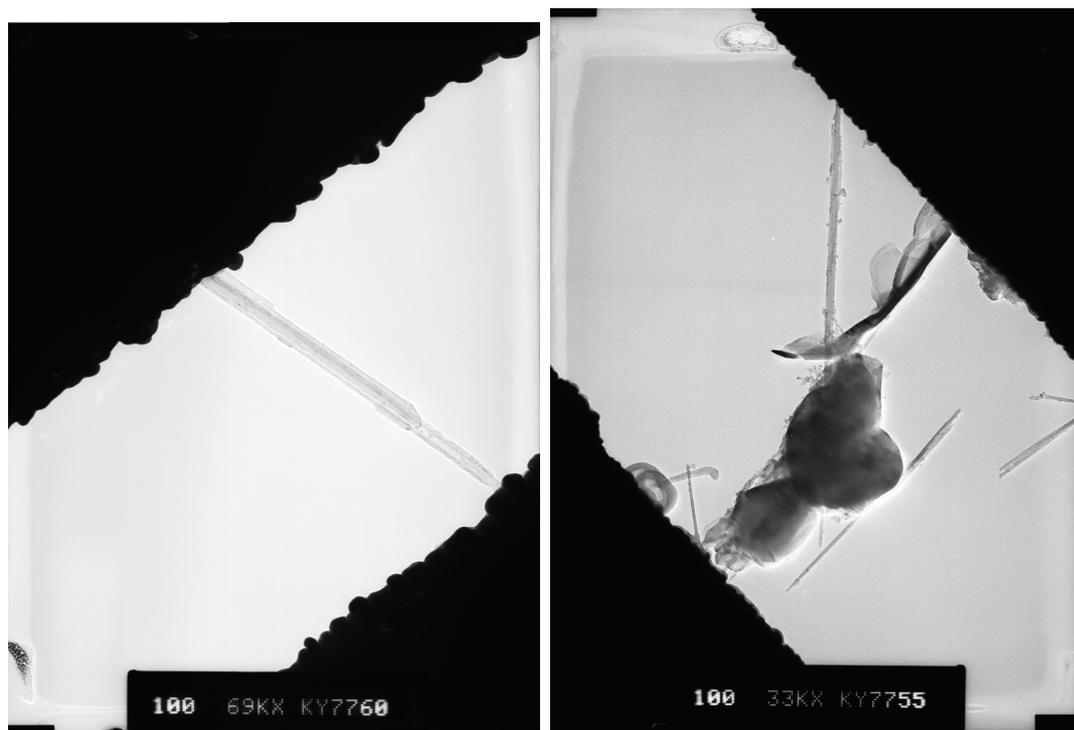


FIG. 8.8 – Image TEM de multiparois déposés en travers de la fente par pulse laser. L'échantillon de droite (I1) est celui sur lequel nous avons réalisé des mesures de transport à basse température.

dans un réfrigérateur à dilution comme expliqué dans l'annexe C.

# Chapitre 9

## Interlude : transport dans un échantillon multiparoi

### 9.1 Résultats expérimentaux

Nous avons effectué des mesures de transport sur un nanotube multiparoi (MW1) déposé à Orsay (Fig. 8.8) et qui semble en assez bon contact car sa résistance à 300K est de  $23 \text{ k}\Omega$ . Cependant on voit bien sur la photo de TEM que ce sont probablement deux nanotubes multiparois connectés chacun d'un côté de la fente et qui se croisent au milieu. Leur diamètre est de 30 nm et le plus long mesure environ  $1 \mu\text{m}$ .

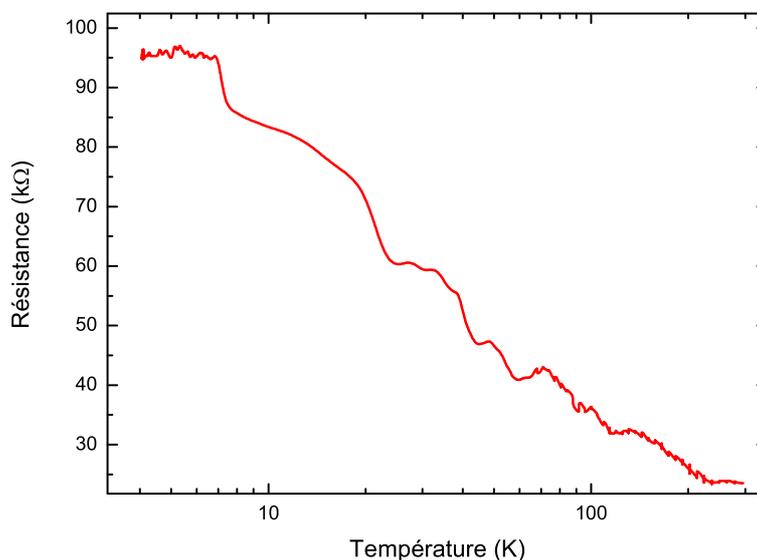


FIG. 9.1 – Résistance de MW1 en fonction de la température en échelle semi-logarithmique. La courbe est assez bruyante car le cryostat à dilution et le thermomètre sont optimisés pour des températures plus basses.

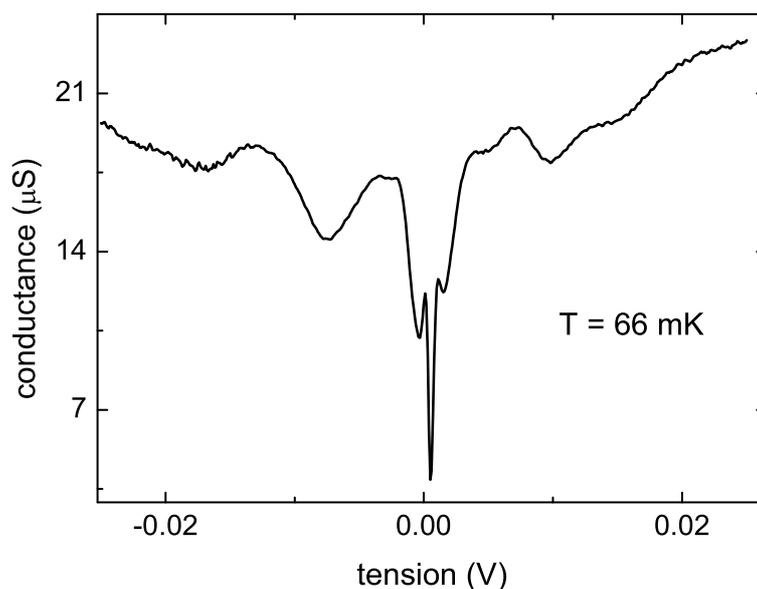


FIG. 9.2 – Conductance différentielle de MW1 à 66 mK.

La résistance de l'échantillon augmente à basse température et son comportement entre 300K et 10K peut être ajustée approximativement par une loi logarithmique (Fig. 9.1). A basse température sa conductance différentielle est très non-linéaire et non symétrique (Fig. 9.2). En particulier, le minimum de conductance n'est pas à tension nulle mais pour une tension de 0.52mV. Nous avons donc regardé la dépendance en température de ce minimum entre 60 mK et 1K (Fig. 9.3). La courbe peut être ajustée par une loi de puissance avec un exposant  $\alpha \approx 0.6$  au dessus de 0.2 K et sature en dessous de cette température. Le comportement de la résistance en champ magnétique présente de fortes oscillations non périodiques (Fig. 9.4). De plus les pics de conductance sur la conductance différentielle sont atténués quand le champ augmente et certains semblent osciller avec le champ magnétique. Ceci apparaît clairement sur le comportement de la résistance différentielle à différents champs magnétiques.

Il est difficile d'analyser de façon définitive cet ensemble de données. Ces nonlinéarités peuvent être reliées à des causes différentes et il est difficile de discriminer entre celles-ci.

## 9.2 Interprétations

### Blocage de Coulomb

Si les contacts réalisés au laser ne sont pas ohmiques, il existe une barrière tunnel entre le nanotubes et les électrodes et celui-ci se comporte comme une capacité entre les deux électrodes métalliques. On peut alors penser que les pics de conductance sont reliés au blocage de Coulomb : pour qu'un courant passe à travers le nanotube il faut que l'énergie

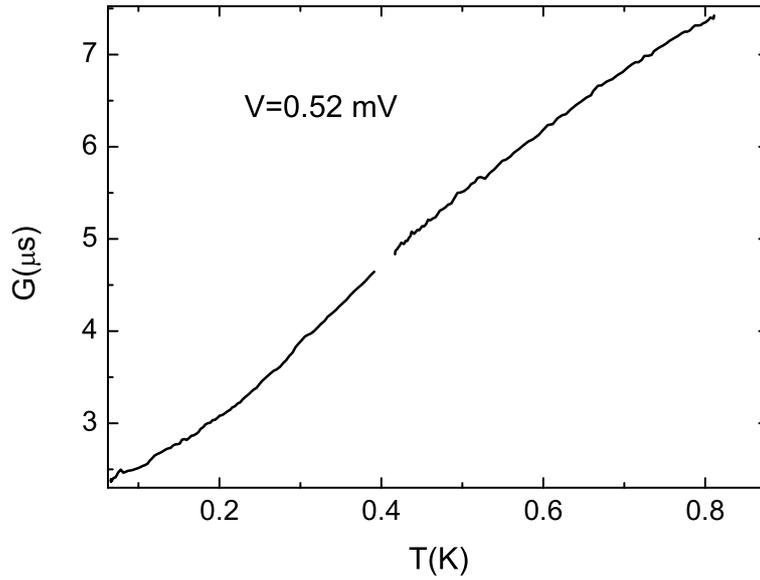


FIG. 9.3 – Variation de la conductance en température. Une tension continue de 0.52 mV est appliquée à l'échantillon.

des électrons soit supérieure à l'énergie de charge  $e^2/2C$ . Ainsi à basse température, le courant augmente par paliers et la conductance différentielle présente des pics à chaque fois que le nombre d'électrons que l'on peut ajouter sur le nanotube augmente. La capacité qui intervient dans l'énergie de charge est la capacité totale du système, i.e. la capacité propre du nanotube et les capacités entre le nanotube et les contacts. On suppose qu'on est dominé par la capacité propre car la surface en regard entre le nanotube et les contacts est très faible, elle ne doit pas excéder quelques dizaines de nanomètres de côté. Ceci est bien sûr difficile à vérifier. La capacité d'un cylindre de longueur  $L$  et de rayon  $R$  est donnée par  $C = 2\pi\epsilon_0 L / \ln(d/R)$  avec  $d$  la distance au plan formant la capacité avec le nanotube soit  $d = 1 \mu\text{m}$  ici (distance entre les contacts). Ceci correspond donc à une capacité  $C = 1.5 \times 10^{-17} \text{F}$ . On peut estimer l'énergie de charge à  $E_c = 5 \text{ meV}$  soit  $E_c = 60 \text{K}$ . De plus à cause de la longueur finie des tube les niveaux d'énergies sont quantifiés avec un écart entre niveaux  $\Delta E = \hbar v_F / L \approx 3 \text{ meV}$ . Pour ajouter un électron sur le nanotube il faut donc vaincre l'énergie de charge mais aussi l'écart d'énergie entre niveaux pour que l'électron peuple un niveau non occupé. On réalise donc une spectroscopie des niveaux d'énergie du nanotube. L'énergie caractéristique entre deux pics de conduction est donc de l'ordre de 10 mV. Cette estimation est satisfaisante car l'espacement entre les pics de conductance est de l'ordre de 10 mV.

### Effet de structure de bande

De telles structures pour la conductance différentielle peuvent aussi s'expliquer pour des bons contacts. En effet, dans ce cas, la résistance de l'échantillon est donnée par le

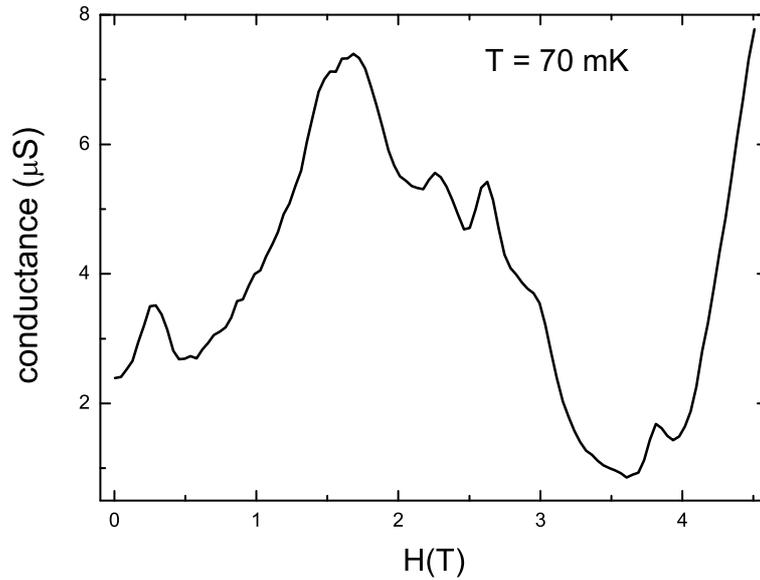


FIG. 9.4 – Variation de la conductance en champ magnétique à 70mK pour une tension continue de 0.52 mV.

nombre de canaux de conduction. On a vu que celui-ci correspond au nombre de bandes qui croisent le niveau de Fermi. Lors d'une expérience de transport on sonde les canaux sur une énergie  $eV$ . Il faut donc compter le nombre de bandes qui croisent le niveau de Fermi sur une largeur  $eV$ . On a vu que pour un nanotube individuel typique seulement 2 canaux participent au transport et ceci jusqu'à des énergies de l'ordre de l'eV. Comme les nanotubes constituant MW1 sont beaucoup plus larges, l'écart d'énergie entre deux bandes est fortement réduit. Cet écart sera le plus petit pour le nanotube extérieur, il est donné par  $\Delta E = 3a_0\gamma_0/\sqrt{3}D \approx 70$  meV. Cette échelle d'énergie semble un peu trop grande pour expliquer les pics de conductance dans la résistance différentielle.

Cependant plusieurs tubes constituant le multiparoi peuvent participer au transport. Bien que la plupart des expériences sur les multiparois rapportent que la conduction se fait par le tube externe, ceci ne paraît pas évident avec des nanotubes soudés tels que nous les fabriquons. On a vu que pour certains tubes métalliques, la courbure peut ouvrir des gaps de quelques meV au niveau de Fermi. Le désordre peut avoir la même conséquence et ouvrir des gaps de l'ordre de  $\hbar v_F/l_e \sim 5$  meV pour un libre parcours moyen de 100 nm. On voit bien que la structure de bande d'un nanotube multiparoi peut présenter des états électroniques de conduction à des énergies intermédiaires entre les deux bandes du nanotube externe séparées par 70 meV.

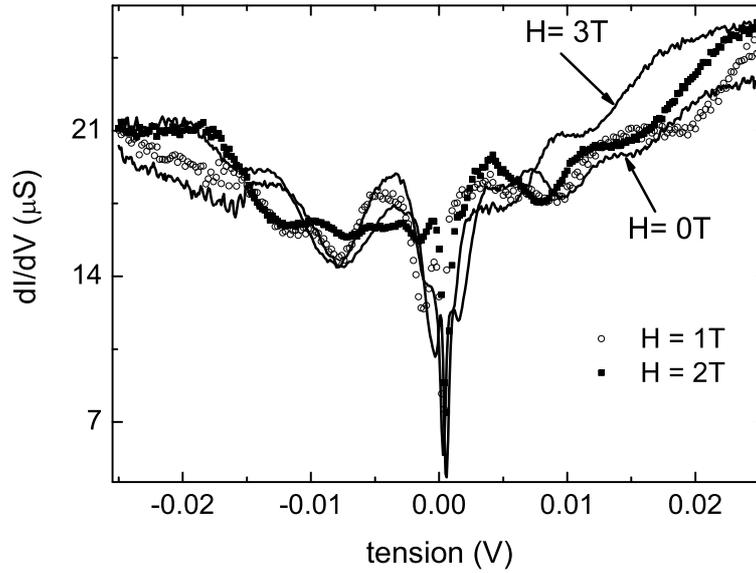


FIG. 9.5 – Résistance différentielle à 70 mK pour différents champs magnétiques.

### 9.3 Effet du champ magnétique

Lorsque l'on applique un champ perpendiculaire au nanotube, les niveaux d'énergie se quantifient en niveaux de Landau puisque le feuillet de graphène est bidimensionnel. Il a été montré [41] qu'en fait, la structure de bande d'un nanotube ne montre pas explicitement des niveaux de Landau mais des oscillations non périodiques apparaissent qui sont reliées à cet effet. L'échelle de champ caractéristique de ces variations est  $H_0 = \phi_0/\pi R^2 \approx 2.5$  T. Ceci correspond bien aux plus importantes oscillations de la magnétoconductance (Fig. 9.4).

#### Blocage de Coulomb

On a vu que dans une interprétation du type blocage de Coulomb, on réalise une spectroscopie des niveaux d'énergie du nanotube. Si la structure de bande est modifiée par le champ magnétique on s'attend bien à un décalage des pics de conductance. C'est bien ce qui est observé. De plus le couplage entre les électrodes et le nanotube peut dépendre de l'énergie des niveaux ce qui se traduit par des pics plus ou moins prononcés. Ceci permet d'expliquer les oscillations de conductance en fonction du champ. A cet effet peut s'ajouter l'effet Zeeman qui décale linéairement les niveaux électroniques (donc les pics de conductance) avec une pente de  $60\mu\text{V}/\text{T}$ . Ceci est donc très petit par rapport aux décalages observés qui sont plutôt de quelques mV et surtout ne semblent pas du tout linéaires avec le champ magnétique.

### Effet de structure de bande

Dans l'hypothèse où les contacts sont ohmiques, on s'attend aux mêmes conséquences. En effet on a vu que dans cette hypothèse il fallait s'intéresser aux nombres de bandes d'énergie dans une tranche eV. Comme chaque bande oscille de façon différente avec le champ magnétique, puisque ces oscillations ne sont pas périodiques, le nombre de bandes dans la tranche d'énergie sondée varie avec le champ magnétique. Ceci permet d'expliquer la courbe de magnétoconductance et les oscillations de résistance différentielle.

Il est donc difficile de conclure sur l'interprétation de ces mesures à cause de l'incertitude sur la qualité des contacts. Cependant ces résultats sont encourageants car la résistance varie de moins d'un ordre de grandeur lors de la descente en température. Si le contact n'est pas ohmique, il n'est pas si mauvais que ça.

## 9.4 Effet photovoltaïque

Il est intéressant de noter qu'un tel échantillon, grâce aux non-linéarités de la résistance est un redresseur de courant de signe variable. En effet on peut développer l'expression du courant en fonction de la tension appliquée :

$$I(V) = \frac{\partial I}{\partial V}V + \frac{\partial^2 I}{\partial V^2}V^2 \quad (9.1)$$

Si la résistance différentielle n'est pas constante comme pour la loi d'Ohm alors la dérivée seconde n'est pas nulle. Dans ce cas une tension sinusoïdale crée un courant continu à travers l'échantillon grâce au terme en  $V^2$  dans l'expression du courant. C'est ce qu'on appelle l'effet photovoltaïque.

Grâce à une antenne proche de l'échantillon, nous avons soumis l'échantillon à un champ radio-fréquence de 300 MHz dont l'amplitude est modulée à basse fréquence (35 Hz). Le courant continu qui apparaît est donc modulé à une fréquence de 35Hz. Nous avons donc mesuré le courant à travers l'échantillon à la fréquence de modulation (35Hz) en fonction d'une tension continue appliquée à ses bornes (Fig. 9.6). La comparaison de ce signal avec la dérivée numérique des courbes de conductance différentielle montre bien que l'effet photovoltaïque est proportionnel à la quantité  $\frac{\partial^2 I}{\partial V^2}$ .

Un tel nanotube est donc une diode qui peut redresser un courant aussi bien dans un sens que dans l'autre suivant la tension de polarisation qu'on lui applique et le champ magnétique. Il faut noter qu'aucun signe de supraconductivité n'a été détecté pour ce nanotube multi-parois.

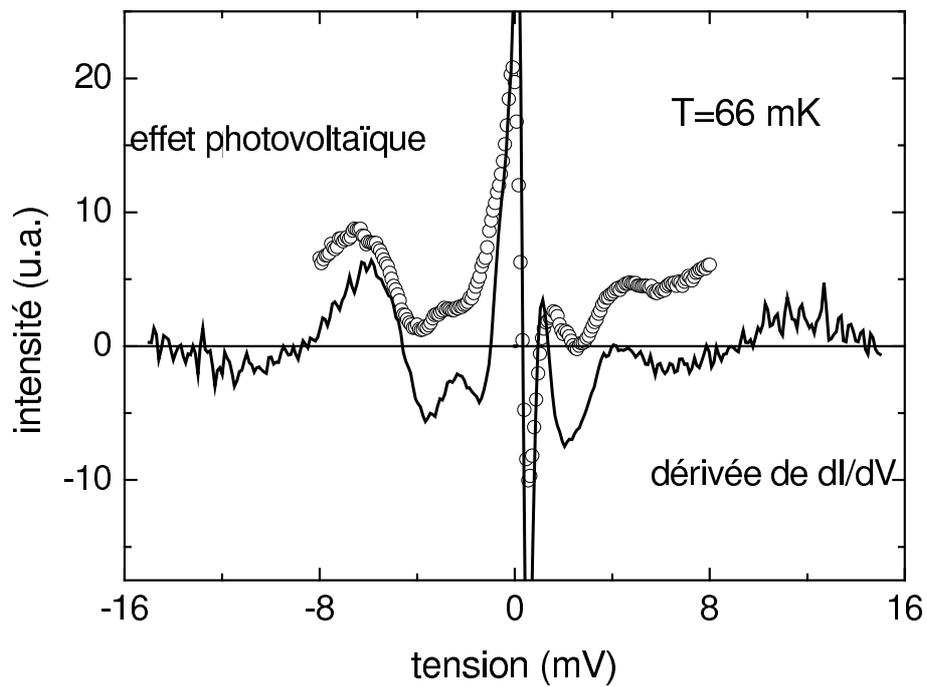


FIG. 9.6 – Comparaison entre le signal d'effet photovoltaïque mesuré et la dérivée numérique de la courbe de résistance différentielle. L'amplitude de la dérivée est un paramètre ajustable.



# Chapitre 10

## Transport dans l'état normal des cordes de nanotubes

Nous présentons dans ce chapitre les mesures de transport dans l'état normal des cordes de nanotubes. Toutes les cordes voient leur résistance augmenter quand la température ou la tension tendent vers 0. Cependant il est difficile de distinguer si leurs résistances divergent en loi de puissance ou de façon logarithmique ce qui laisse plusieurs interprétations possibles à cette observation comme un état de liquide de Luttinger, l'effet Kondo ou le blocage de Coulomb dynamique. De plus la large gamme de résistances observées indique que le désordre joue un rôle important dans ces échantillons. Nous présentons donc ensuite une analyse théorique de l'effet du désordre sur le saut électronique inter-tubes et donc sur les propriétés de transport.

### 10.1 Résultats expérimentaux

Nous avons mesuré le transport électronique dans des cordes de nanotubes de carbone déposées par A. Kasumov avec la technique de nanosoudure décrite précédemment. Durant cette thèse j'ai mesuré les échantillons  $R4$  et  $R5_2$ . La corde  $R5$  a évolué lors de refroidissements successifs. Après le premier refroidissement, sa résistance dans l'état normal a augmenté et son comportement à basse température ( $T < 0.2$  K) a changé. On appelle  $R5_1$  l'échantillon lors du premier refroidissement et  $R5_2$  pour le deuxième refroidissement.

Les cordes de nanotubes semblent vérifier le critère de Thouless, tout comme des fils métalliques quasi-1D [68] : elles localisent quand leur résistance est supérieure à  $R_Q$  (la résistance diverge quand la température diminue) et restent quasi-métalliques sinon (la résistance reste du même ordre de grandeur quand la température décroît). Sur la figure 10.1 sont représentées les courbes de résistances en fonction de la température pour des cordes métalliques. On constate tout d'abord que la gamme de résistances à température ambiante est très large, depuis  $100 \Omega$  jusqu'à  $30 \text{ k}\Omega$  pour des cordes contenant toutes approximativement 300 nanotubes. Aucune relation claire n'est visible entre la résistance et le nombre de nanotubes.

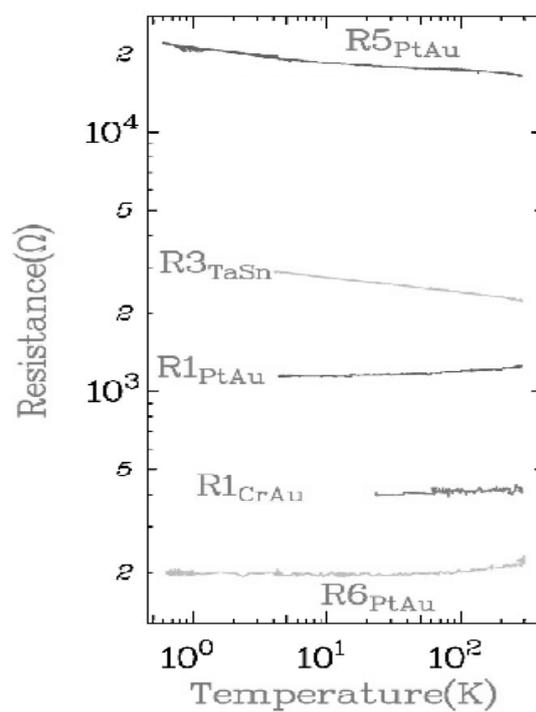


FIG. 10.1 – Résistance des cordes contenant toutes environ 300 tubes en fonction de la température en échelle log-log. Les indices se réfèrent aux métaux composant les électrodes.

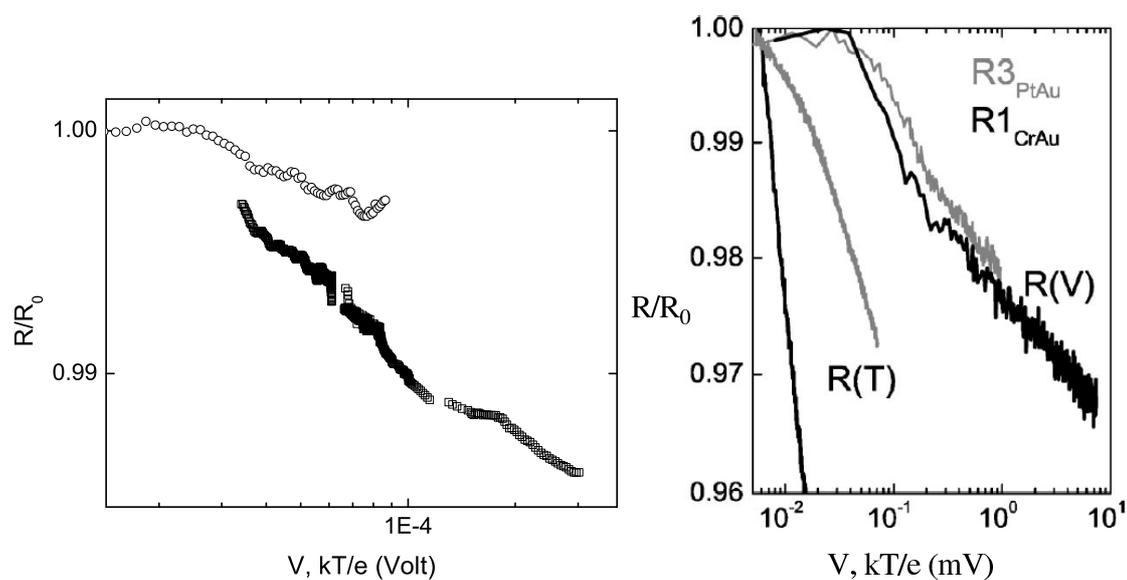


FIG. 10.2 – A gauche, résistance de R4, contenant environ 40 tubes, dans l'état normal en fonction de la température (rond ouverts) et de la tension (carrés) en échelle semi-logarithmique. Un champ de 4000G est appliqué pour détruire la supraconductivité pour la mesure de résistance différentielle. On voit encore une réminiscence de supraconductivité à basse tension. A droite, deux autres cordes R1 et R3 qui contiennent environ 300 nanotubes. L'énergie de Thouless pour ces cordes est de quelques meV.

Parmi ces cordes métalliques, la résistance des cordes peu résistives décroît linéairement entre 300 K et 30 K ce qui correspond au gel des modes de phonons. A plus basse température la résistance augmente quand la température diminue. La résistance des cordes plus résistives ( $R > 10k\Omega$ ) augmente de façon monotone quand la température diminue depuis la température ambiante jusqu'à basse température ( $<1K$ ) (Fig. 10.1). De même, à basse température, la résistance différentielle de toutes ces cordes augmente quand la tension diminue et présente un pic à tension nulle.

Pour toutes ces cordes, l'augmentation de résistance à basse température ou à basse tension peut s'ajuster par une loi de puissance avec un exposant  $\alpha$  très faible ( $\alpha \ll 1$ ) ou bien par une loi logarithmique. Cependant les exposants des lois de puissance ou les pentes des lois logarithmiques sont différents pour les variations en température ou en tension de la résistance d'une même corde. Ceci indique une absence de loi d'échelle entre température et tension (Fig. 10.3 et 10.2).

### 10.1.1 Analyse à l'aide du modèle du liquide de Luttinger

On s'attend à un comportement non-linéaire de la résistance avec la température et la tension pour un liquide de Luttinger. Cependant les lois de puissance observées ici correspondent à des exposants très faibles comparés à ceux observés habituellement dans les nanotubes de carbone en contact tunnel, qu'ils soient individuels [46] ou sous forme de cordes [45]. Dans ce cas la mesure de transport tunnel est sensible à la densité d'états tunnel d'un seul tube ou des quelques tubes extérieurs à la corde. Cette densité d'états varie en fonction de  $T$  ou  $V$  avec des exposants directement reliés aux interactions électron-électron. Pour une mesure en contact ohmique, on a vu qu'on peut s'attendre aux mêmes lois de puissance en présence d'impuretés dans le fil (chapitre 6). Cependant on a montré dans la section (7.2) que l'écrantage peut être très efficace dans une corde, ce qui donne un paramètre Luttinger  $g \approx 1$  et donc de très faibles lois de puissance pour les variations de la résistance en fonction de la température ou de la tension puisqu'on se rapproche d'un liquide électronique sans interactions dans lequel la loi d'Ohm est valable.

L'observation dans des cordes en contact tunnel d'exposants très proches de ceux pour un tube individuel [45] semble en contradiction avec nos résultats expérimentaux. Cependant, ceci peut s'expliquer par le fait qu'une mesure tunnel ne teste que les tubes à la surface de la corde alors qu'en bon contact on est couplé à un grand nombre de tubes de la corde. Les tubes sur le bord de la corde sont beaucoup moins bien écrantés que ceux du centre car ils ont moins de voisins et peuvent même n'avoir aucun premier voisin métallique. Leur paramètre Luttinger est donc plus petit que pour les tubes intérieurs et se rapprochent du cas du nanotube individuel.

Un point plus troublant est qu'il n'est pas sûr que le modèle du liquide de Luttinger s'applique dans cette zone de température et de tension. En effet, dans le cas d'un liquide de Luttinger de longueur finie, à cause de la quantification de l'énergie, le modèle ne s'applique plus à des énergies inférieures à l'écart entre niveaux d'énergie  $hv_\rho/L$  où  $v_\rho$  est la vitesse de l'onde de densité de charge. Il est difficile de connaître  $v_\rho$  qui dépend de  $g$  mais on peut estimer une borne inférieure à cette énergie en prenant la vitesse de Fermi des électrons qui

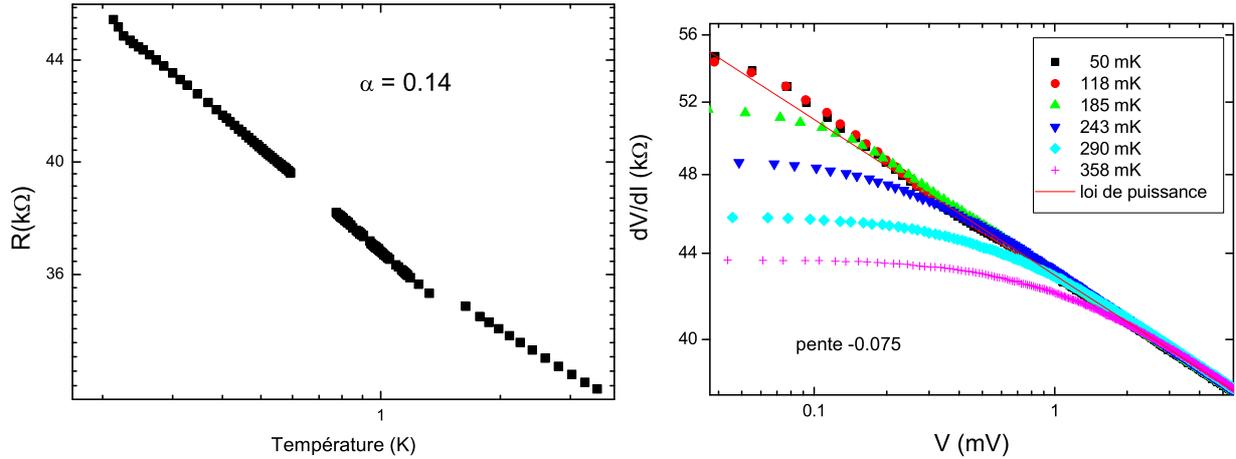


FIG. 10.3 – A gauche, résistance en fonction de la température pour l'échantillon  $R5_2$  en échelle log-log. L'ajustement linéaire donne un exposant  $-0.14$ . A droite, résistance différentielle en fonction de la tension appliquée en échelle log-log à différentes températures pour l'échantillon  $R5_2$ . L'ajustement linéaire donne un exposant  $-0.075$  pour la loi de puissance. Dans les deux cas on obtient un aussi bon ajustement en échelle semi-log qui correspond à une loi en  $\log(T, V)$ .

est la limite pour  $g = 1$ . On trouve alors une énergie qui correspond à 35 K ou 3 mV pour une corde de  $1\mu\text{m}$ . En dessous de cette énergie, il est prévu une saturation de la résistance que nous n'observons pas expérimentalement.

### 10.1.2 Effet Kondo

L'effet Kondo est également responsable d'un comportement logarithmique de la résistance en fonction de la température. Lorsque des impuretés magnétiques sont diluées dans un métal, en dessous de la température Kondo ( $T_K$ ), les électrons de conduction du métal forment un état lié avec une impureté magnétique ce qui permet d'écranter le spin de celle-ci.  $T_K$  dépend de l'énergie de couplage  $J$  entre le spin de l'impureté et celui des électrons de conduction ainsi que de la densité électronique. Ce phénomène a pour conséquence d'augmenter le taux de collisions des électrons avec les impuretés magnétiques et provoque la remontée logarithmique de la résistance à basse température. Des indications d'une résonance Kondo entre les électrons de conduction d'un nanotube et les agrégats magnétiques de cobalt, le catalyseur, ont été mesurées par STM [69], donnant une température Kondo  $T_K = 80$  K. Les atomes de catalyseur (Ni, Co, Y) qu'on peut trouver substitués aux atomes de carbone peuvent aussi jouer le rôle d'impuretés magnétiques et justifier la présence d'effet Kondo dans les tubes. Ceci paraît surprenant pour un nanotube qui présente une faible densité électronique et donc a priori un mauvais écrantage du spin de l'impureté.

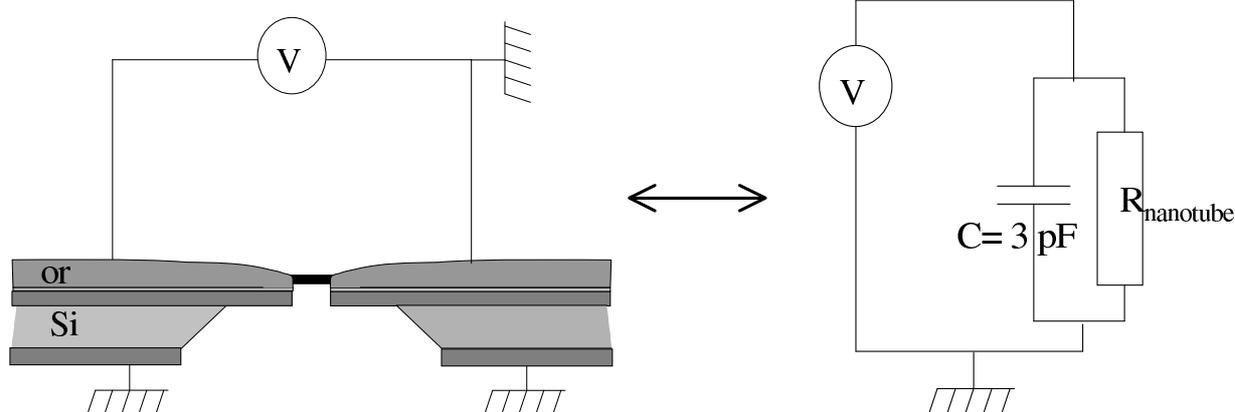


FIG. 10.4 – A gauche, circuit de mesure de la résistance d'un échantillon de nanotube suspendu. Les électrodes de contact forment une capacité de 3 pF avec la masse. A droite circuit équivalent.

### 10.1.3 Blocage de Coulomb dynamique

Etant donné les très basses température considérées ici, on peut aussi penser que le phénomène de blocage de Coulomb dynamique intervient [70]. Ce phénomène a tout d'abord été mis en évidence dans des jonctions tunnel entre deux métaux lorsque l'énergie nécessaire à l'électron pour charger la capacité de la jonction ( $E_c$ ) est supérieure à la température. L'électron, lorsqu'il traverse la barrière tunnel crée un pulse de courant qui excite l'environnement électromagnétique de la jonction. Ceci se traduit par une réduction de la conductance de la jonction à basse tension. Ce phénomène a ensuite été généralisé pour un conducteur cohérent multicanal (pour lequel chaque canal est caractérisé par sa transmission  $\tau_i$ ) [71] et conduit à un comportement de la résistance différentielle :

$$\frac{\delta G}{G} \propto \ln \left( 1 + \left( \frac{\hbar}{eVRC} \right)^2 \right) \quad (10.1)$$

Dans l'hypothèse où nos contacts sont parfaits, l'échantillon résistif se trouve en parallèle avec des capacités de 3 pF qui relient les contacts à la masse (Fig 10.4). Cette capacité a été mesurée expérimentalement et correspond bien à la capacité entre un plan métallique de  $2mm \times 2mm$  séparé de la masse par  $300 \mu m$  de silicium de constante diélectrique  $\epsilon_r = 12$  qui est donnée par :

$$C = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r S}{L} = 1.4 \text{ pF} \quad (10.2)$$

On peut estimer que l'énergie de charge est de l'ordre de 1 mK donc même pour les plus basses températures explorées la variation logarithmique de la résistance ne peut pas s'expliquer par le blocage de Coulomb dynamique. Cependant on peut imaginer que dans certains cas la soudure de la corde n'est pas parfaite et il peut exister une barrière tunnel entre le métal et les nanotubes (il se peut par exemple que la peau de carbone amorphe

sur laquelle ils sont déposés s'interpose entre la corde et le métal). Dans ce cas la capacité intrinsèque du nanotube est en parallèle avec la résistance de l'échantillon. Pour un cylindre de longueur  $1\mu\text{m}$ , cette capacité est de l'ordre de  $C \sim \epsilon L \sim 10$  aF. C'est donc cette dernière qui domine et l'énergie de charge devient alors  $E_c \sim 100$  K. Le transport peut donc être décrit par la formule (10.1) qui donne bien un comportement logarithmique dans la limite  $\frac{\hbar}{eVRC} \gg 1$ , c'est-à-dire  $V \ll 10$  mV pour une corde résistance  $10$  k $\Omega$ . Dans ce cas le comportement de la résistance dans l'état normal pourrait donc bien s'expliquer par le blocage de Coulomb dynamique.

#### 10.1.4 Loi d'échelle tension/température

Le fait qu'on ne trouve pas de loi d'échelle entre la tension et la température est surprenant. Une telle loi d'échelle est prévue non seulement pour un liquide de Luttinger comme les nanotubes individuels mais elle est aussi observée dans les tubes multi-parois [47], par exemple, qui sont analysés comme des conducteurs diffusifs et pas comme des liquides de Luttinger. Cependant ces comportements sont toujours observés pour des fils en mauvais contact électrique. Dès que le contact est bon, on ne s'attend plus à une loi d'échelle entre la tension et la température à cause des effets de taille finie de la corde de nanotubes. Par exemple il a été montré que dans un liquide de Luttinger de longueur finie connecté à deux réservoirs, le courant rétrodiffusé par une impureté oscille en fonction de la tension avec une période dépendant de la longueur du nanotube mais pas avec la température [72].

#### 10.1.5 Grande gamme de résistances

Un autre phénomène surprenant est l'observation de résistances dans une si large gamme. On peut proposer plusieurs explications à ce phénomène.

1) Tout d'abord on peut penser que le contact n'est pas toujours bon. Cependant le fait que la résistance diverge en lois de puissances avec des exposants si faibles à basse température indique que le contact électrique est bon même pour les cordes ayant des résistances de quelques k $\Omega$ .

2) On ne peut pas vérifier non plus que ce sont bien les mêmes tubes qui sont connectés de part et d'autre de la fente. Ainsi il est possible que dans certains cas le transport se fasse principalement par transfert inter-tubes au sein de la corde ce qui peut conduire à de grandes résistances.

3) Une autre hypothèse est que le désordre est différent dans toutes ces cordes. Ceci semble confirmé par des mesures de bruit sur les cordes de faible résistance ( $R < 1$  k $\Omega$ ) qui suggèrent que le transport se fait de façon balistique (voir paragraphe 11.8) alors que pour les cordes de plus forte résistance le transport semble diffusif. En effet d'après le critère de Thouless pour qu'une corde dont la résistance est proche de  $R_Q$  soit métallique ( $R_2$ ,  $R_1$  et  $R_3$ ) il faut qu'elle contienne un seul tube balistique ou bien qu'elle soit diffusive avec un seul canal effectif de conduction. Il paraît peu probable qu'un seul tube soit connecté sur des cordes en contenant une centaine, c'est pourquoi nous pensons que le transport est

diffusif dans les cordes résistives ( $R \sim R_Q$ ). De plus nous avons développé un modèle pour décrire le rôle du désordre dans la corde qui permet de confirmer ceci (chapitre 10.3).

## 10.2 Structure de bande d'une corde sans désordre

Dans ce paragraphe nous décrivons la structure électronique d'une corde de nanotubes en nous appuyant principalement sur l'article de *Maarouf et al* [73] qui traite ce problème analytiquement. Leur résultat principal est de développer perturbativement le terme d'interaction  $H_{\perp}$  entre deux ondes de Bloch situées sur deux nanotubes  $a$  et  $b$  différents à partir d'un modèle de liaisons fortes sans interaction. Comme on l'a vu dans le paragraphe (5.2.2) chaque fonction d'onde propre sur un tube est une onde de Bloch caractérisée par un vecteur d'onde  $\vec{k}$  qui se décompose en 2 termes  $(k_{\perp}, k_{//})$ . Pour deux tubes d'hélicités différentes, les composantes  $(k_{\perp}, k_{//})$  sont différentes comme on le voit sur la figure 10.5. A partir de ce modèle, les auteurs arrivent à un terme de couplage de la forme :

$$\langle \Psi_a | H_{\perp} | \Psi_b \rangle = t(\vec{k}_a, \vec{k}_b) = t_T \delta_{k_{a//}, k_{b//}} e^{-(1/4)Ra_0(k_{a\perp} - k_{b\perp})^2} \quad (10.3)$$

avec  $t_T = t_G \sqrt{\frac{a_0}{4\pi R}} = 7.5 \text{meV}$  pour  $R = 0.7 \text{nm}$ ,  $t_G = 0.1 \text{eV}$  est l'intégrale de saut inter-plans dans le graphite et  $a_0 = 0.5 \times 10^{-10}$  est le rayon de Bohr. Le terme  $\delta_{k_{a//}, k_{b//}}$  qui apparaît dans le couplage signifie qu'au premier ordre un électron ne peut pas sauter d'un tube à l'autre s'ils n'ont pas la même hélicité. En effet puisque deux tubes d'hélicités différentes correspondent à des vecteurs d'onde de Fermi longitudinaux différents, l'électron ne peut pas conserver son impulsion lors du saut entre tubes. Cette règle de sélection vient de l'invariance par translation le long de l'axe du nanotube.

Cependant, dans le cas idéal où tous les tubes sont métalliques et de même hélicité<sup>1</sup>, ce couplage est suffisant pour ouvrir un pseudogap de 0.1 eV autour du niveau de Fermi dans la densité d'états. Ceci reproduit bien les résultats obtenus par des calculs numériques plus sophistiqués [74].

Dans le cas plus réaliste où les tubes ont des hélicités différentes le couplage est nul au premier ordre. En revanche il y a un couplage à des énergies plus hautes lorsque les bandes de deux tubes se croisent. Cependant ce phénomène ouvre un pseudogap négligeable au niveau de Fermi puisque c'est un phénomène du second ordre en  $t_{\perp}^2/\delta\epsilon$  (Fig. 10.5). De plus la longueur de localisation perpendiculaire, également calculée dans [73], est de l'ordre de 1 nm ce qui signifie que les électrons sont localisés transversalement sur un seul tube.

Ainsi dans une corde sans désordre contenant des tubes d'hélicités aléatoires les nanotubes sont indépendants pour le transport électronique qui est donc balistique dans chaque nanotube.

## 10.3 Désordre dans les nanotubes

L'objectif de cette partie est de montrer que dans une corde de nanotubes, le transport peut être balistique ou diffusif selon la force du désordre. On ne cherche pas ici à étudier des effets d'interaction mais de localisation. Dans un nanotube isolé qui est un système électronique 1D le transport est forcément balistique puisque dans les systèmes désordonnés

<sup>1</sup>On suppose que les tubes forment un réseau triangulaire dans la section transverse de la corde.

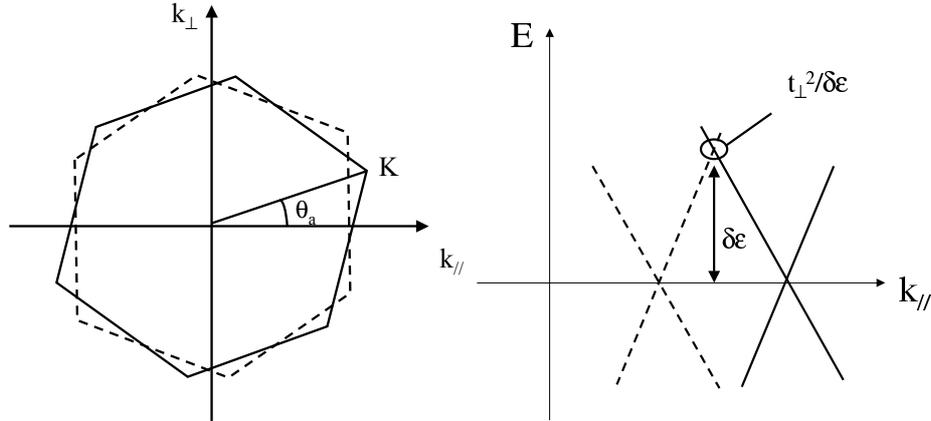


FIG. 10.5 – A gauche, zone de Brillouin pour 2 tubes d'hélicité différente. Les zones sont tournées de façon à ce que les axes longitudinal et perpendiculaire se correspondent pour les 2 tubes. a droite relation de dispersion pour ces deux tubes en fonction du vecteur d'onde longitudinal.

1d la longueur de localisation  $\xi$  est de l'ordre du libre parcours moyen  $l_e$  [17]. Ceci signifie qu'un nanotube plus long que  $l_e$  est isolant. Il n'existe pas de fenêtre entre  $l_e$  et  $\xi$  qui permette au régime diffusif d'exister. En revanche nous allons montrer qu'un phénomène original de couplage par le désordre permet l'instauration du régime diffusif dans une corde de nanotubes quand le désordre augmente avant que l'état localisé n'apparaisse.

Nous allons maintenant quantifier les deux effets antagonistes du désordre dans une corde de nanotubes : d'une part il rend plus difficile le transport à l'intérieur d'un même tube mais d'autre part il favorise le saut inter-tubes des électrons et donc leur délocalisation sur la corde.

### 10.3.1 Le libre parcours moyen

White et Todorov [75] ont traité le cas d'un nanotube avec du désordre sur site (ex : substitution d'atomes de carbone par des impuretés) ou de lien caractérisé par une variance  $\sigma_\epsilon^2$  et  $\sigma_V^2$  respectivement. Dans ce cas les électrons sont rétrodiffusés par les impuretés, il en résulte un libre parcours moyen donné par  $l_e = \frac{6\epsilon_F^2}{2\sigma_\epsilon^2 + 9\sigma_V^2} N_B$  pour un tube d'hélicité  $(N_B, N_B)$  où  $\epsilon_F = 2.7$  eV est l'énergie de Fermi du tube. Ce résultat est déjà original car il est différent de ce qu'on attend pour un fil métallique dont le libre parcours moyen ne dépend pas de la circonférence. La conséquence est l'existence d'un transport balistique sur de grandes longueurs même pour un système ne contenant que 2 canaux de conduction.

La géométrie bi-dimensionnelle du nanotube (cylindre) joue donc un rôle sur le transport électronique même s'il est unidimensionnel du point de vue de la structure de bande. Pour interpréter ce résultat il faut garder à l'esprit que la fonction d'onde de l'électron est délocalisée sur toute la circonférence du tube. Ainsi une impureté ponctuelle sur le nano-

tube perturbe beaucoup moins la fonction d'onde que dans une chaîne d'atomes. L'effet d'une impureté est moyenné sur la circonférence du nanotube.

### 10.3.2 Le couplage inter-tubes

#### Modélisation

Nous avons calculé la probabilité de saut électronique inter-tube en présence de désordre à partir du modèle de *Maarouf et al* [73] pour une corde de nanotubes. La probabilité de saut entre deux tubes  $a$  et  $b$  est reliée à l'énergie caractéristique :

$$E_{\perp} = \langle \Psi_a | H(a, b) | \Psi_b \rangle \quad (10.4)$$

Ce terme est nul en l'absence de désordre comme nous l'avons vu à cause de la conservation du vecteur d'onde parallèle de l'électron lors du saut. Nous allons voir maintenant comment le désordre lève cette interdiction.

Pour modéliser le désordre nous avons pris un désordre sur site donc de courte portée modélisé par une série de pics  $\delta$  dont le poids sur chaque site est donné par une distribution rectangulaire centrée en zero et de largeur  $W$ . Le désordre est donc représenté par la fonction :

$$V(x) = \sum_a w_a \delta(x - x_a) \quad (10.5)$$

et les  $w_a$  sont donnés par :

$$P(w_a) = \begin{cases} 1/W & \text{si } w_a \in [-W/2; W/2] \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (10.6)$$

Nous sommes partis de fonctions d'ondes électroniques représentées par le produit d'une partie perpendiculaire  $|k_{\perp}\rangle$  et d'une onde plane longitudinale  $|k_{//}\rangle$  sur chaque tube puis nous avons calculé les fonctions d'onde perturbées par le désordre au premier ordre dans la théorie des perturbations. Nous avons interdit les sauts inter-bandes c'est-à-dire que le vecteur d'onde perpendiculaire, et donc la fonction  $|k_{\perp}\rangle$ , ne sont pas perturbés par le désordre. On obtient alors :

$$|\Psi'\rangle = \frac{1}{L} |k_{\perp 0}\rangle \left( |k_{// 0}\rangle + \sum_i \frac{\tilde{V}(k_{//i} - k_{//0})}{E(0) - E(i)} |k_{//i}\rangle \right) \quad (10.7)$$

Où  $\tilde{V}$  est la transformée de fourier de  $V$ . Connaissant l'Hamiltonien de couplage entre 2 tubes [73] on peut calculer le terme  $E_{\perp}$  entre les tubes  $a$  et  $b$  :

$$E_{\perp}(a, b) = \langle k_{a\perp} | t_{\perp} | k_{b\perp} \rangle \frac{2}{L} \sum_a \frac{w_a}{\epsilon_a - \epsilon_b} \cos((k_{0a//} - k_{0b//})x_a) \quad (10.8)$$

On a gardé ici uniquement les termes lineaires en  $W$ . Par construction du modèle la moyenne sur le désordre de cette correction à l'énergie est nulle. Nous définissons donc l'énergie caractéristique du problème comme :

$$e_{\perp} = \sqrt{E_{\perp}^2} \quad (10.9)$$

Le calcul donne :

$$e_{\perp}(a, b) = t_{\perp}(a, b) \frac{W}{3\delta\epsilon(a, b)} \quad (10.10)$$

avec  $t_{\perp}(a, b) = t_0 \exp(-\frac{Ra_0}{4}(k_{\perp,a} - k_{\perp,b})^2)$  et  $\delta\epsilon(a, b) = \hbar v_F |k_{//a} - k_{//b}|$ . Dans les cordes que nous avons mesurées expérimentalement le diamètre moyen des nanotubes est de 1.4 nm ce qui peut correspondre à une quinzaine d'hélicités  $(n, m)$  différentes pour les nanotubes métalliques (voir tableau 10.1). En effet le diamètre est relié à l'hélicité par :

$$D(n, m) = \frac{0.25}{\pi} \sqrt{m^2 + mn + n^2} \quad (10.11)$$

Nous pouvons donc construire un histogramme des valeurs que peuvent prendre les coefficients  $t_{\perp}(a, b)$  et  $\frac{t_{\perp}(a, b)}{\Delta\epsilon(a, b)}$  pour toutes les hélicités possibles (Fig. 10.6). Le cas de 2 tubes de même hélicité est laissé à part car le calcul perturbatif diverge dans ce cas. Dans une corde on doit aussi trouver statistiquement 2/3 de tubes semi-conducteurs qui ne participent pas à ce phénomène. Cependant dans une corde les nanotubes s'arrangent en réseau triangulaire dans la section transverse. Parmi les six voisins d'un nanotube donné, en moyenne deux sont métalliques vers lesquels les électrons de conduction peuvent transiter. Le terme de couplage typique entre deux nanotubes d'hélicités différentes est, d'après l'histogramme (10.6),  $\langle e_{\perp} \rangle = 0.03 W$ .

hélicité (n,m)	(9,9)	(10,10)	(11,8)	(12,9)	(12,6)	(13,7)	(15,6)
diamètre (nm)	1.24	1.38	1.32	1.45	1.26	1.4	1.5
hélicité (n,m)	(14,5)	(13,4)	(16,4)	(15,3)	(17,2)	(16,1)	(18,0)
diamètre (nm)	1.36	1.23	1.46	1.33	1.44	1.32	1.43

TAB. 10.1 – hélicités et diamètres des nanotubes métalliques pouvant se trouver dans les cordes étudiées.

### Interprétation

Pour savoir quel est le régime de transport dans la corde de nanotubes, il nous suffit de comparer les probabilités de saut inter-tubes et de collisions élastiques le long du tube. Sur la figure 10.7 sont représentées les 3 énergies pertinentes du problème. L'énergie  $\frac{\hbar v_F}{l_e}$  représente le taux de collisions élastiques dans un tube, l'énergie  $e_{\perp}$  celui de saut inter-tube et l'énergie  $\frac{\hbar v_F}{L}$ , qui permet de tenir compte de la taille finie du nanotube ( $L$ ), est associée au temps de traversée du tube. Sur la figure 10.7 le sens du temps est opposé à l'axe des ordonnées représentant les différentes probabilités. On peut donc délimiter 3 zones dans la figure correspondant à différents arrangements de ces énergies les unes par rapport aux autres et donc comme on va le voir à différents régimes de transport.

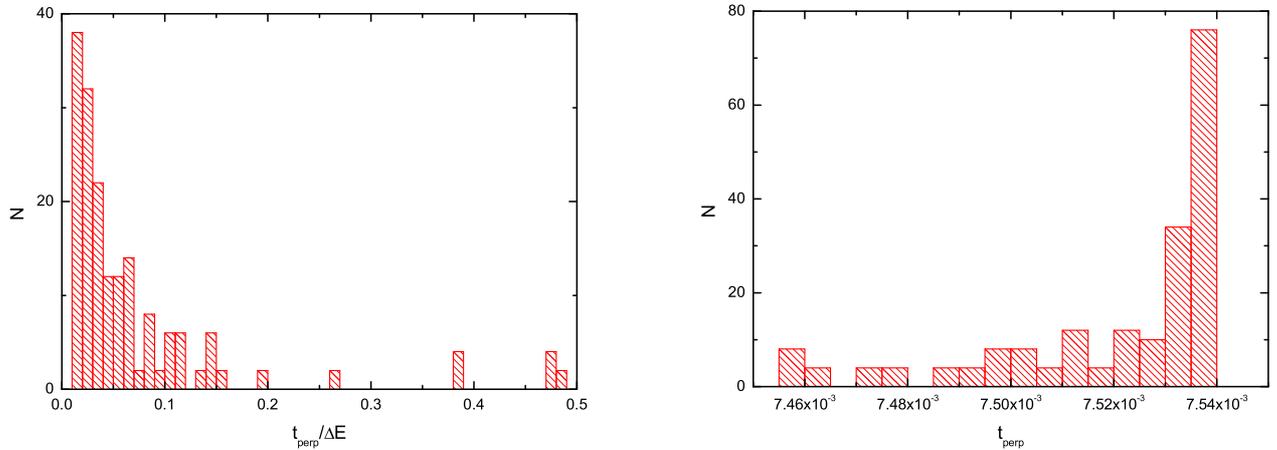


FIG. 10.6 – histogramme des valeurs que peuvent prendre les coefficients  $t_{\perp}(a, b)$  et  $\frac{t_{\perp}(a, b)}{\Delta\epsilon(a, b)}$  pour toutes les hélicités possibles.

- Tout d'abord dans la zone I, à très faible désordre, si nous suivons la flèche du temps pendant qu'un électron parcourt la corde il aura traversé le tube dans lequel il est avant d'avoir subi une collision élastique ou d'avoir eu le temps de sauter sur un autre tube. On retrouve ici un transport électronique balistique unidimensionnel pour un faible désordre car les tubes ne sont pas couplés.

- Dans la zone II le transport sera quasi-balistique car l'électron a le temps de sauter entre les tubes avant d'avoir traversé la corde mais ne subit toujours pas de collision dans un tube. La "dimensionnalité du transport" a donc changé : il est tri-dimensionnel et très anisotrope.

- La zone III est très intéressante car on sort du régime balistique puisque la probabilité de collision devient plus importante que celle de traverser la corde. Dans un nanotube unique ceci correspondrait au régime localisé. Cependant, au sein de la corde, la probabilité de saut inter-tubes qui augmente linéairement avec le désordre est plus forte que la probabilité de collision. L'électron a donc le temps de se délocaliser sur la section de la corde avant de subir une collision dans un tube. Ceci signifie que la longueur de localisation le long de la corde  $\xi_{//}$  sera plus plus grande<sup>2</sup> que  $l_e$ .

- Ensuite quand le désordre est trop fort la corde atteint un état isolant.

Nous avons donc montré que la structure électronique particulière des nanotubes qui est responsable des grands libre parcours moyens élastiques permet aussi d'observer un régime diffusif de transport dans les cordes jusqu'à un fort désordre grâce à un phénomène original de délocalisation par le désordre.

Afin de pouvoir explorer plus loin ce régime de transport diffusif anisotrope et no-

<sup>2</sup>La théorie des matrices aléatoires des fils diffusifs isotropes prédit une longueur de localisation  $\xi = Ml_e$  où  $M$  est le nombre de canaux [44].

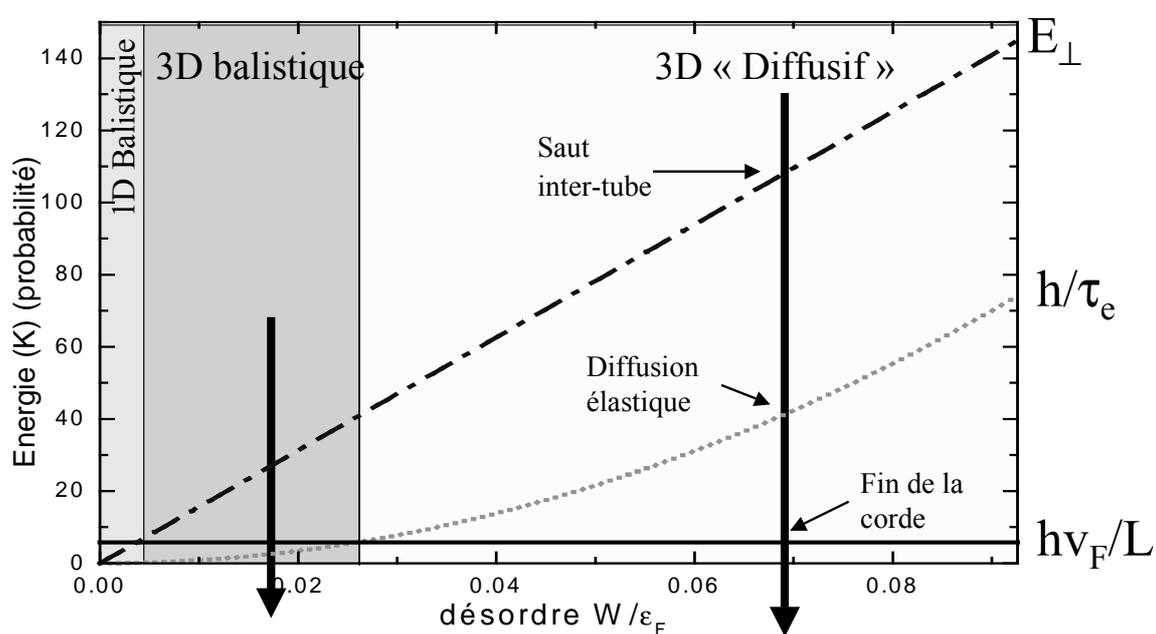


FIG. 10.7 – Représentation des différentes échelles d'énergie en fonction du désordre. Les flèches représentent le sens du temps (cf. discussion dans le texte). Les 3 zones évoquées dans le texte sont repérées sur le schéma par : zone I = 1D balistique, zone II = 3D balistique et zone III = 3D diffusif.

tamment pour évaluer les conductances parallèles et perpendiculaires il faudrait pouvoir calculer le libre parcours moyen et la longueur de localisation transverse ( $\xi_{\perp}$ ), ce qui sort de ce modèle simple. En effet si l'on s'intéresse à la conductance perpendiculaire il faut connaître  $\xi_{\perp}$  afin de savoir si les électrons sont localisés dans cette direction, il faut ensuite connaître le libre parcours moyen perpendiculaire ( $l_{e\perp}$ ) afin d'évaluer  $\sigma_{\perp} = e^2 N(E_F) e_{\perp} l_{e\perp} d$  où  $d$  est la distance inter-tube.

### 10.3.3 Comparaison avec les polymères conducteurs

Le modèle que l'on vient de développer pour les cordes de nanotubes ressemble à certains modèles décrivant les effets de localisation forte dans les polymères [76, 77, 78]. En effet ceux-ci sont décrits comme un ensemble de chaînes unidimensionnelles couplées entre elles aléatoirement. Suivant le nombre de liens couplant les polymères, la valeur du saut inter-chaîne et le désordre intra-chaîne les électrons peuvent être localisés ou non. Il est intéressant de comparer nos résultats à ces modèles afin de savoir si le taux de désordre que nous invoquons pour observer la diffusion dans une corde est réaliste et ne correspond pas déjà à un état fortement localisé.

Dans la référence [77] les auteurs décrivent un diagramme de phases où l'on peut passer de l'état localisé à un état étendu suivant deux paramètres sans dimension que l'on va essayer de relier à notre description. Les auteurs considèrent un ensemble de  $N$  chaînes de pas  $a$ . La probabilité de trouver un lien entre deux chaînes sur un site est  $c$  et l'intégrale de saut est alors égale à  $J$ . La valeur moyenne du saut est donc  $cJ$  qui n'est pas nulle contrairement à notre couplage effectif  $e_{\perp}$  qui est nul en moyenne mais dont la variance est finie. Le désordre qu'ils introduisent est un désordre sur site de la même forme que le nôtre. Le diagramme de phase obtenu est représenté sur la figure 10.8. En plus des paramètres précédents, ce diagramme fait intervenir  $\xi$  la longueur de localisation et  $\nu_0$  la densité d'états 1D. Dans ce modèle les longueurs sont en unité de pas du réseau et les énergies en unité de l'énergie de Fermi du système.

### Evaluation des paramètres pour la corde de nanotubes

Nous allons maintenant essayer de voir où se situe la corde de nanotube dans notre description pour un désordre de l'ordre de  $W/\epsilon_F = 0.05$  qui correspond au transport diffusif sur la figure 10.7. On se place dans le cas où  $c = 0.5$  pour lequel la plupart des calculs ont été faits.

- Saut inter-chaîne.

Comme la valeur moyenne du saut effectif que nous avons calculé pour la corde de nanotubes est nulle nous comparons les écarts types afin d'évaluer le saut  $J$  dans notre cas. L'écart type de l'amplitude de saut sur un site désordonné est donné par  $e_{\perp}/\epsilon_F = 0.03W/\epsilon_F = J\sqrt{c(1-c)}$  ce qui donne  $J = 3 \times 10^{-3}$ .

- Longueur de localisation.

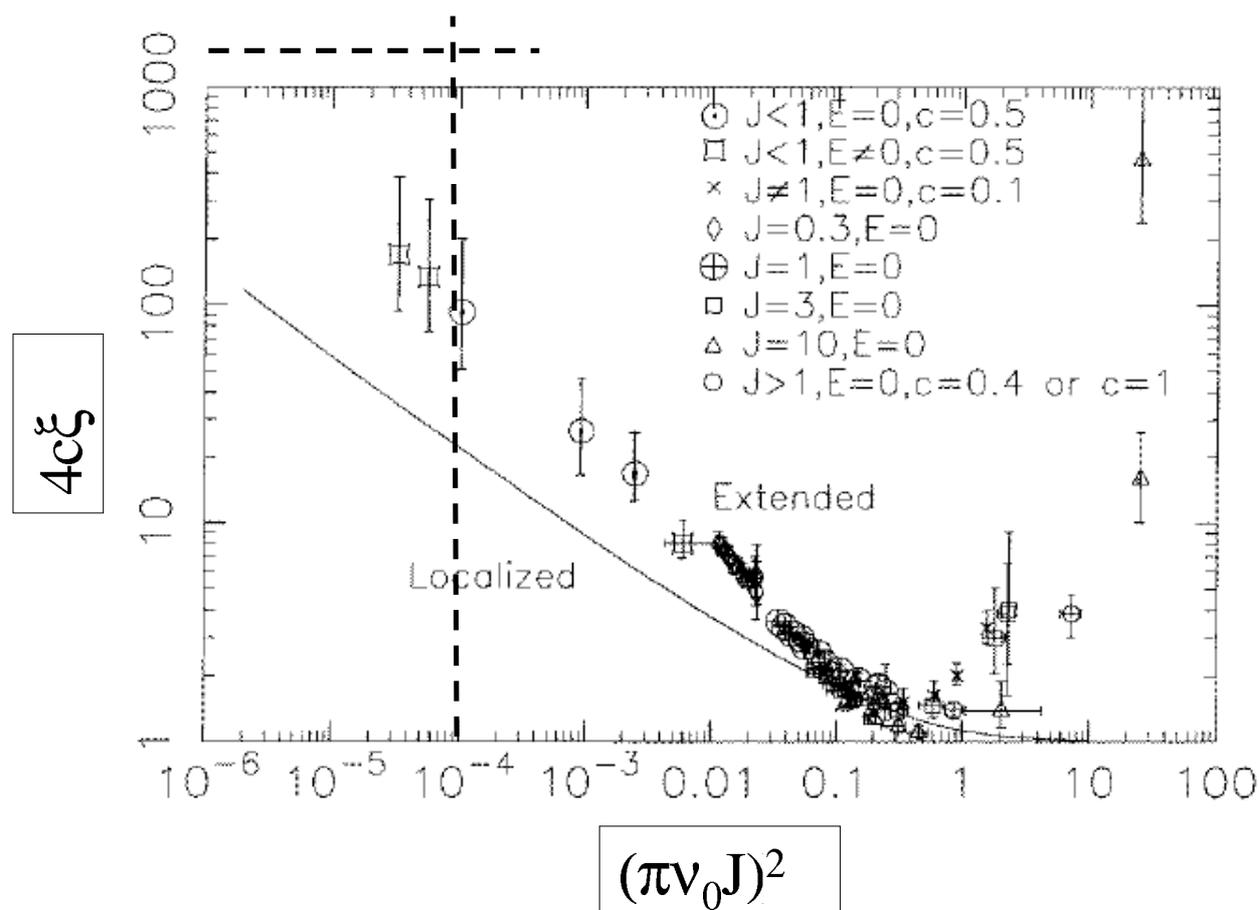


FIG. 10.8 – Diagramme de phases des chaînes de polymères couplées. Extrait de la référence [77]. Les lignes en pointillés représentent l'estimation des paramètres correspondant à notre modèle pour la corde de nanotubes :  $4c\lambda \sim 2000$  et  $(\pi\nu_0 J)^2 \sim 10^{-4}$ .

On a vu que dans un nanotube la longueur de localisation est de l'ordre de  $l_e$ . Sur la figure 10.7, on peut lire pour  $W = 0.05$  que  $\hbar/\tau_e = 20$  K donc la longueur de localisation en unité de pas du réseau pour un nanotube est de l'ordre de  $l_e/a \sim 1000$ .

- Densité d'états.

La densité d'états à 1D en unité du pas du réseau est  $\nu_0 = 2a\epsilon_F/hv_F \sim 0.4$ . On peut alors situer la corde de nanotubes sur le diagramme de phases (Fig. 10.8).

On voit que les paramètres tirés de notre modèle simple peuvent effectivement correspondre à un état délocalisé sur la corde. Cependant le modèle des polymères est finalement assez différent du nôtre, notamment à cause de la valeur moyenne finie du couplage. C'est pourquoi nous avons développé une approche numérique plus appropriée à notre modèle.

### 10.3.4 Simulations numériques

#### Modèle

Afin de tester la délocalisation des fonctions d'onde sur les dimensions transverses d'une corde de nanotubes, i.e d'un tube à l'autre, nous avons effectué un calcul numérique assez simple. Nous modélisons chaque nanotube de la corde par une chaîne de  $N$  atomes. Chaque hélicité correspondant à un vecteur  $k_{F//}$  différent, chaque nanotube est caractérisé par un terme de saut parallèle ( $t_i$ ) différent le long de la chaîne. Pour chaque tube, l'hélicité est tirée au sort dans un intervalle borné :  $[t - \delta t, t + \delta t]$ . Le couplage transverse ( $t_\perp$ ) est le même pour toute la corde (Fig. 10.9).

Dans un modèle de liaisons fortes pour une corde de  $M$  tubes contenant chacun  $N$  sites, on peut représenter le Hamiltonien du système par une matrice  $NM \times NM$ .

Un moyen de tester si les états sont délocalisés dans une direction est de refermer le système sur lui-même dans cette direction et de regarder la sensibilité des niveaux d'énergie aux flux [79]. En effet, un système métallique soumis à un flux présente des courants orbitaux permanents, i.e une aimantation  $\frac{\partial E}{\partial \phi} \neq 0$ . Au contraire, si les électrons sont localisés la relation de dispersion des niveaux d'énergie en fonction du flux est plate.

Nous avons donc diagonalisé le Hamiltonien numériquement grâce à Matlab et étudié la sensibilité au flux des énergies propres pour différentes valeurs de désordre. Pour une corde de  $M$  tubes, le flux est pris en compte lors du saut du tube  $M$  au tube 1 pour lequel on remplace  $t_\perp$  par  $t_\perp e^{i\phi}$ . L'électron acquiert donc une phase  $\phi$  quand il fait un tour. Le désordre est sur site et entre donc comme un élément diagonal  $W$  dans la matrice.

Pour estimer la sensibilité au flux, nous avons pris la différence  $|E(\phi = 0) - E(\phi = \pi)|$  moyennée sur les états propres proche du quart et du trois-quarts de remplissage. Cette quantité a été moyennée sur différents tirages d'hélicités ( $t_i$ ) et de désordre ( $W$ ).

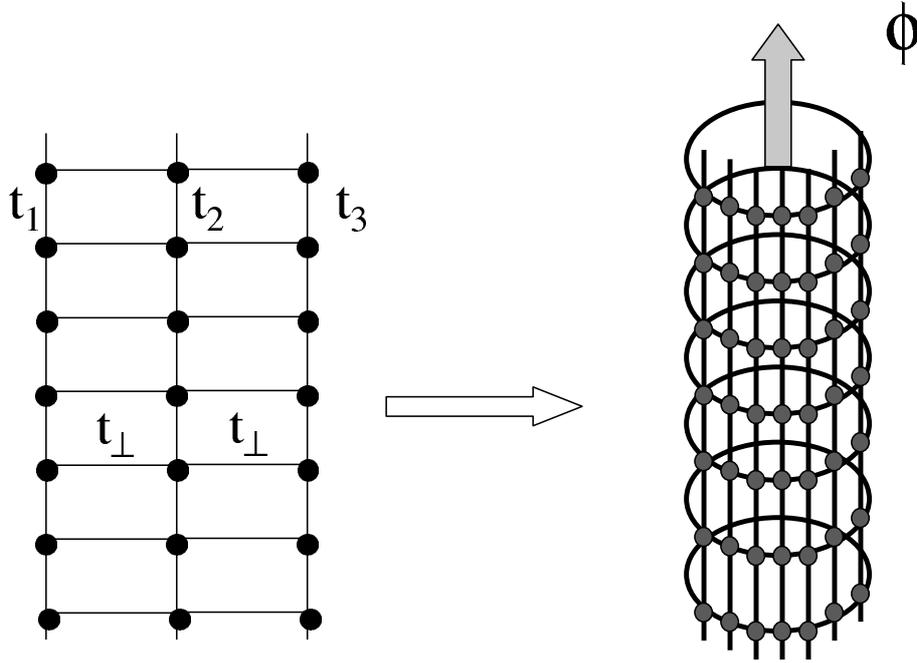


FIG. 10.9 – Modélisation de la corde de nanotubes. A droite : repliement pour tester la sensibilité à un flux. A cause des hélicités différentes  $t_1 \neq t_2 \neq t_3$ .

## Résultats

La figure 10.10a représente la sensibilité au désordre pour une corde de 3 nanotubes de même hélicité ( $\delta t = 0$ ). Dans ce cas on a vu que le couplage inter-tube est efficace. On part donc effectivement d'un état délocalisé à bas désordre pour aller vers un état localisé transversalement à fort désordre comme on l'attend. La figure 10.10b représente la même chose pour des cordes contenant des tubes d'hélicités différentes ( $\delta t \neq 0$ ). Dans ce cas quand le désordre tend vers 0, les états sont peu sensibles au flux comparé à la figure 10.10a et donc localisés sur chaque tube comme on l'attend à cause de la conservation du moment parallèle. Quand le désordre augmente, on voit une augmentation de la sensibilité qui signale la délocalisation possible des états sur la circonférence de la corde. Finalement à fort désordre, le système retourne vers un état localisé.

L'amplitude de l'effet observé n'est pas très importante mais il apparaît clairement et signifie que le phénomène de délocalisation par le désordre dans une corde de nanotubes est possible. Nous avons constaté que cet effet augmente avec la longueur des chaînes représentant les nanotubes. On pense que plus la chaîne est longue, plus l'électron a le temps de se délocaliser transversalement. Cependant il n'a pas été possible de traiter des tailles plus grandes de cette manière.

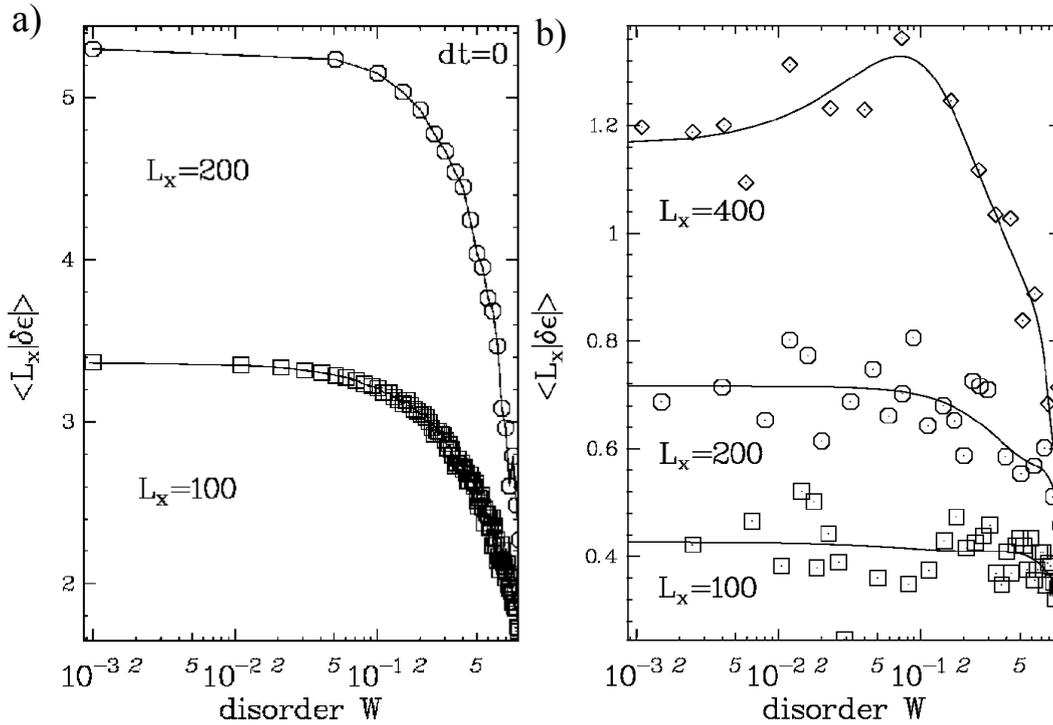


FIG. 10.10 – Evolution de la sensibilité au flux en fonction du désordre sur site. La corde est composée de 3 tubes comprenant  $L_x$  sites chacun. Le saut parallèle est  $t_i = t + \delta t_i$  ou  $t = 2.7$  et  $\delta t = \langle \delta t_i \rangle = 0$  pour la figure a) et  $\delta t = 1$  pour la figure b), le saut intertube est  $t_{\perp} = 0.05$ . Chaque point est moyenné sur 40 configurations de désordre sur site. a) Tous les tubes sont de même hélicité ( $\delta t = 0$ ), il y a localisation à fort désordre. b) Les tubes ont des hélicités différentes, on voit l'apparition d'un maximum à désordre non-nul pour  $L_x = 400$  qui correspond au phénomène de délocalisation par le désordre.

### 10.3.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons donc montré par un calcul perturbatif qu'un phénomène de délocalisation par le désordre permet d'observer un transport électronique dans une corde de nanotubes depuis un régime balistique jusqu'à un régime diffusif très anisotrope. En comparant les paramètres de désordre obtenus pour observer un régime diffusif dans une corde de nanotubes à un modèle de transition métal/isolant dans les polymères, il semble que ce régime diffusif puisse s'installer avant la transition vers un état localisé par le désordre. De plus nous avons confirmé cette possibilité de délocalisation transverse par un modèle numérique. Ceci permet d'expliquer en partie la grande gamme de résistances observée dans les cordes de nanotubes dans l'état normal. Il est évidemment difficile dans nos expériences de découpler l'effet du désordre de celui de la résistance de contact. On ne sait pas non plus si ce sont les mêmes tubes contactés de chaque côté de la fente. Il serait donc intéressant pour confirmer ce calcul, d'induire du désordre dans une corde tout en

mesurant sa résistance sous un TEM par exemple.

# Chapitre 11

## Supraconductivité des cordes de nanotubes

### 11.1 Observation de la supraconductivité

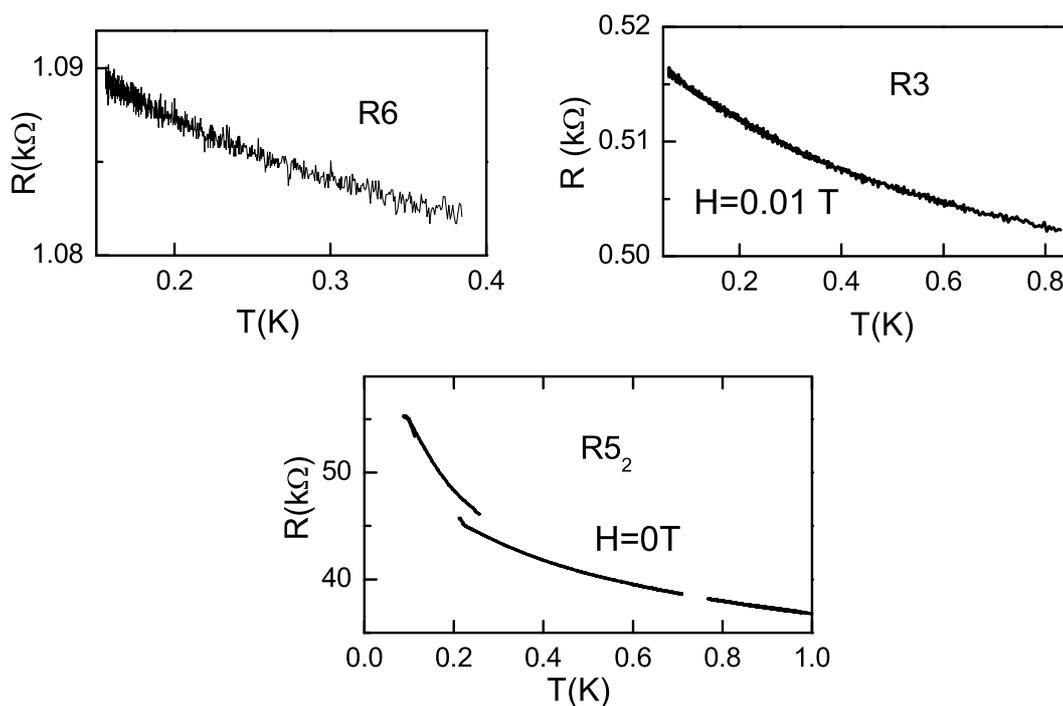


FIG. 11.1 – Evolution de la résistance avec la température pour les échantillons ne présentant pas de chute de résistance jusqu'aux plus basses températures.

Nous allons maintenant nous intéresser aux mesures de transport réalisées à basse température ( $<1K$ ) sur les cordes de nanotubes. Durant cette thèse j'ai réalisé les mesures

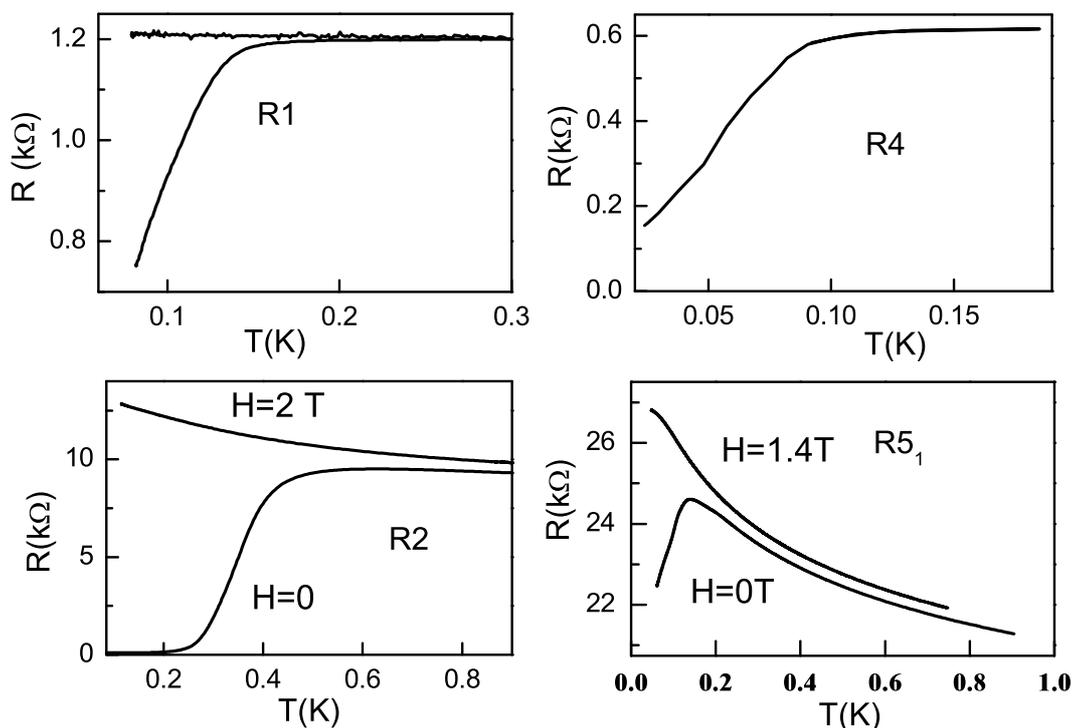


FIG. 11.2 – Evolution de la résistance avec la température pour les échantillons présentant une chute de résistance à la fois en champ magnétique nul et en champ fort.

sur les échantillons  $R5_2$  et  $R4$ . Ce dernier contient le plus petit nombre de nanotubes ( $\approx 40$ ) parmi les cordes présentant une transition supraconductrice. Les résultats expérimentaux sont en partie publiés dans les références [80, 81, 50].

### 11.1.1 Mesure de la résistance

Parmi les échantillons de cordes de nanotubes mesurés à basse température ( $<1K$ ), on observe deux comportements. Certains (Fig. 11.1) voient leur résistance augmenter continuellement jusqu'aux plus basses températures alors que la résistance des autres échantillons chute en dessous d'une température  $T^*$  comprise entre  $0.1 K$  et  $0.4 K$  (Fig. 11.2). Les résistances de  $R1$  et  $R4$  chutent respectivement de 30% et 75% et présentent des transitions partielles c'est-à-dire qu'il n'y a pas de point d'inflexion dans la courbe. Par contre la résistance de  $R2$  chute de plusieurs ordres de grandeur depuis  $10 k\Omega$  jusqu'à une valeur constante de  $74 \Omega$  en dessous de  $100 mK$ .

### 11.1.2 Résistance différentielle

Ce saut de résistance disparaît progressivement quand on augmente le champ magnétique (Fig.11.3). Le champ critique  $H_c$  sera celui au dessus duquel la résistance de l'état

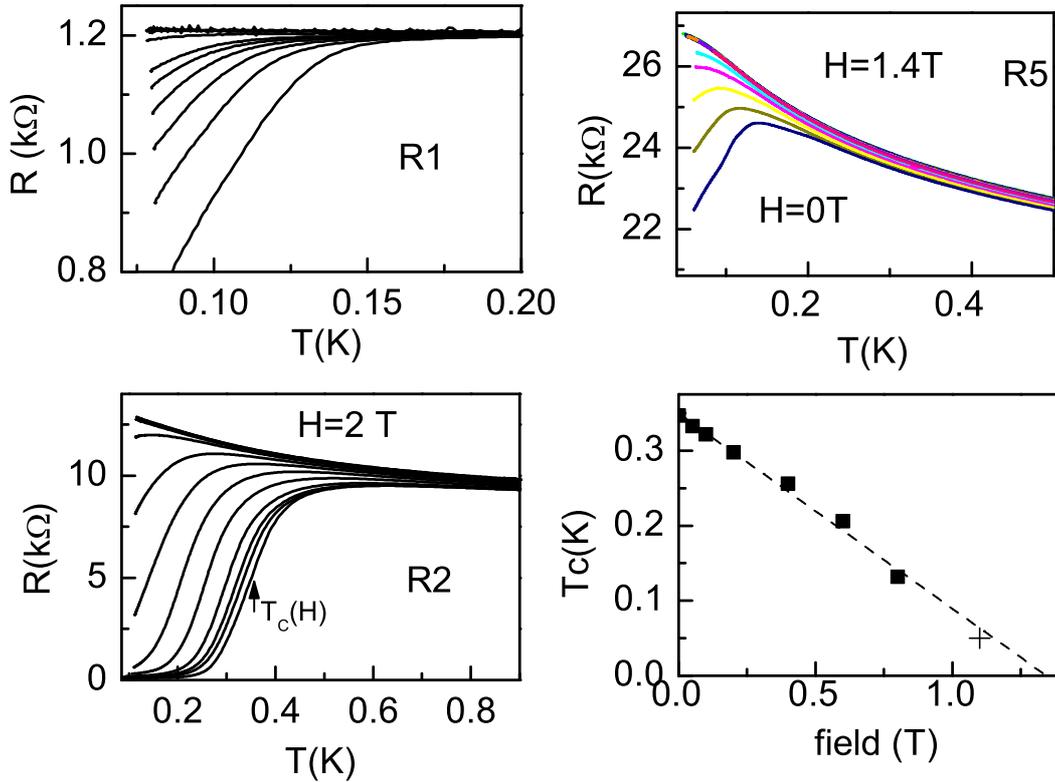


FIG. 11.3 – Résistance en fonction de la température pour les échantillons R1,2 et 5. La résistance de R1 est mesurée pour des champs de 0,0.02,0.04,0.06,0.08,0.1,0.2,0.4,0.6,0.8 et 1 T de bas en haut. La résistance de R2 est mesurée à 0,0.05,0.1,0.2,0.4,0.6,0.8,1,1.25,1.5,1.75,2 et 2.5 T. Celle de R5 à 0,0.1,0.2,0.3,0.5 et 1.4 T. En bas à droite :  $T_c(H)$  pour R2.

normal est retrouvée. Cette résistance évolue alors en température de la même manière que celle des échantillons R3 et R6 qui ne présentent pas de chute de résistance.

D'autre part la résistance différentielle dépend fortement du courant continu appliqué à l'échantillon (Fig. 11.4). Elle présente un minimum à bas courant et la résistance normale de l'échantillon est retrouvée à fort courant ( $> 0.1 \mu\text{A}$ ) après un ou plusieurs sauts. Ce phénomène est détruit par la température (Fig. 11.4) ou par l'application d'un champ magnétique (Fig. 11.5). L'ensemble de ces données suggère donc fortement que les cordes R1, R2 et R4 sont supraconductrices.

## 11.2 Influence des contacts normaux

Comme on le voit sur la Fig.11.2 à basse température et sur la Fig.11.4 à bas courant, même quand la transition supraconductrice est complète les cordes présentent toujours une résistance finie. Celle-ci est de  $74 \Omega$  pour R2 et  $170 \Omega$  pour R4. En fait nous savons que

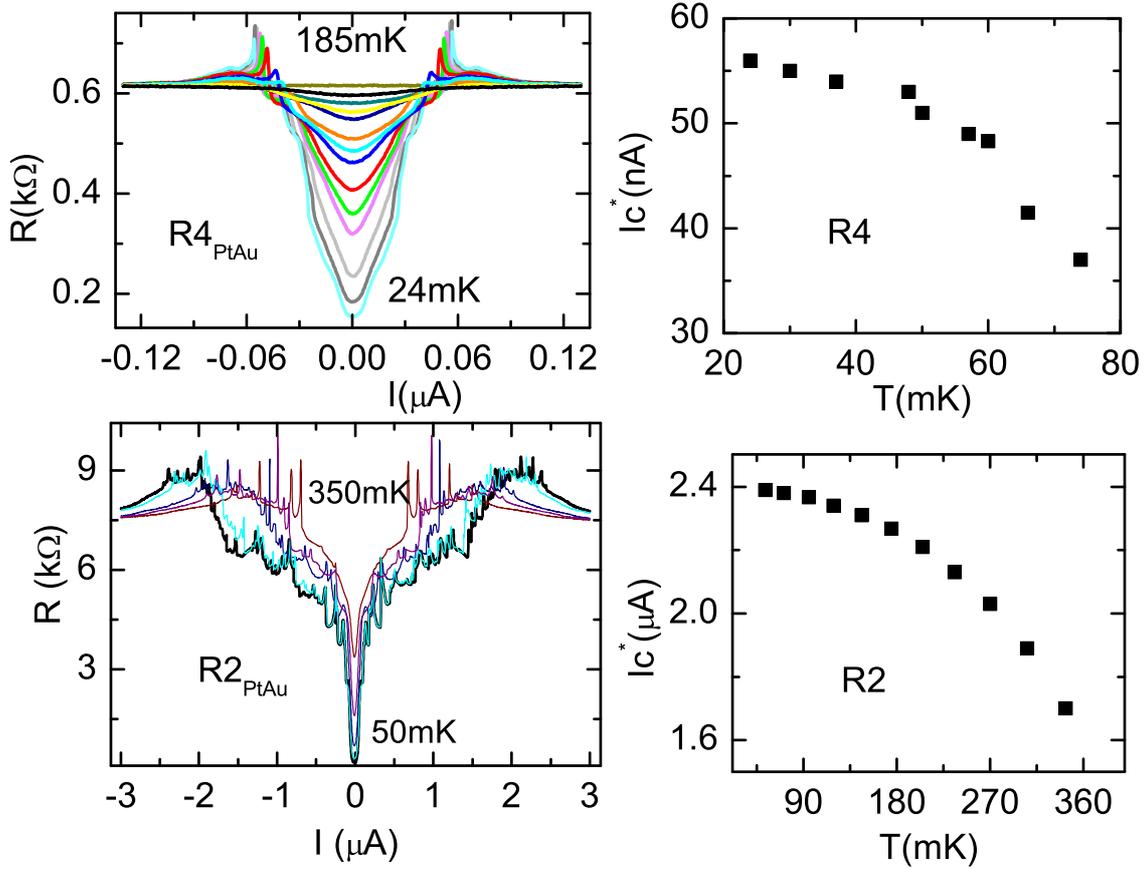


FIG. 11.4 – Résistance différentielle de R2 et R4 à différentes températures. A droite les courants critiques correspondants  $I_c^*$  sont définis par le dernier pic de la résistance différentielle.

la résistance d'un fil supraconducteur entre deux contacts normaux ne peut être nulle. On peut montrer [1] que la résistance mesurée en 2 points d'un fil balistique contenant  $M_1$  canaux de conduction entre 2 contacts contenant  $M_2$  canaux de conduction est donnée par :

$$R = R_Q/M_1 - R_Q/M_2 \quad (11.1)$$

Dans notre cas les contacts sont macroscopiques donc  $M_2 \rightarrow \infty$ . Chaque nanotube contenant 2 canaux de conduction, une corde de  $N$  nanotubes métalliques a une résistance de contact :  $R = R_Q/2N$ . A fréquence nulle ( $\omega \ll v/L$ ), il a été montré que ce résultat reste vrai pour un liquide de Luttinger entre des contacts sans interactions [3].

On suppose que ce résultat reste vrai lorsque les tubes sont supraconducteurs. On néglige donc toute supraconductivité induite dans les contacts par les nanotubes. Nous pouvons utiliser cette résistance pour calculer le nombre minimum de tubes métalliques présents dans la corde  $N = R_Q/2R$ . Ce nombre est bien une borne inférieure pour le nombre de tubes métalliques dans une corde car il peut exister d'autres phénomènes dissipatifs

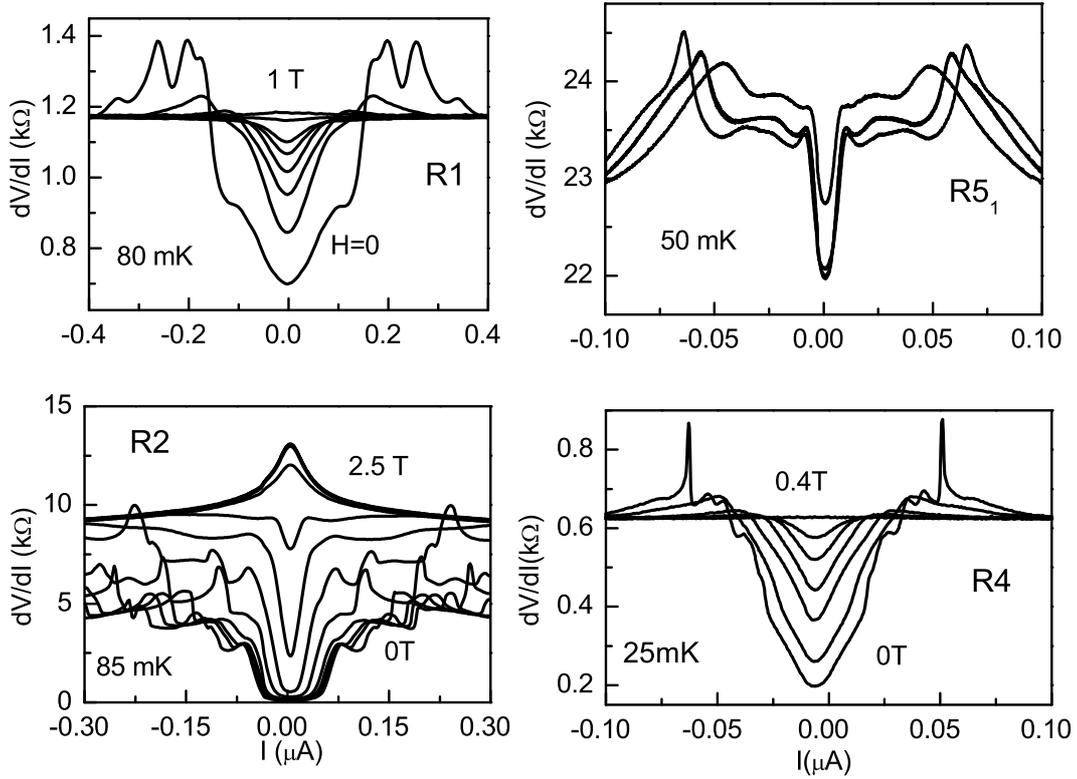


FIG. 11.5 – Résistance différentielle des cordes supraconductrices en fonction du champ magnétique.

même dans l'état supraconducteur, tels que les sauts de phase thermiques ou quantiques (chapitre 7.3.2), qui contribuent à cette résistance résiduelle. On obtient ainsi  $N = 90$  pour  $R_2$ ,  $N = 40$  pour  $R_4$  et  $N = 10$  pour  $R_1$ . Ces valeurs sont indicatives pour  $R_4$  et  $R_1$  puisque les transitions ne sont pas complètes.

### 11.3 Longueur de cohérence supraconductrice

Analysons d'abord la transition dans l'hypothèse où le transport électronique est diffusif. En effet l'échantillon  $R_2$  avec une résistance de  $10 \text{ k}\Omega$  dans l'état normal contiendrait comme on vient de le voir un seul tube conducteur balistique alors qu'on en dénombre plus de 90 dans l'état supraconducteur. De même la corde  $R_1$  qui contient en tout 300 tubes devrait contenir uniquement 6 tubes balistiques pour expliquer la résistance de  $1 \text{ k}\Omega$ . La situation est moins claire pour  $R_4$ . Cette corde contient 40 tubes en tout et il est donc statistiquement possible qu'elle ne contienne que 10 tubes balistiques dans l'état normal, ce qui conduirait à la résistance observée de  $700 \text{ }\Omega$ . Nous étudions les propriétés de transport de cet échantillon plus en détail dans le paragraphe suivant.

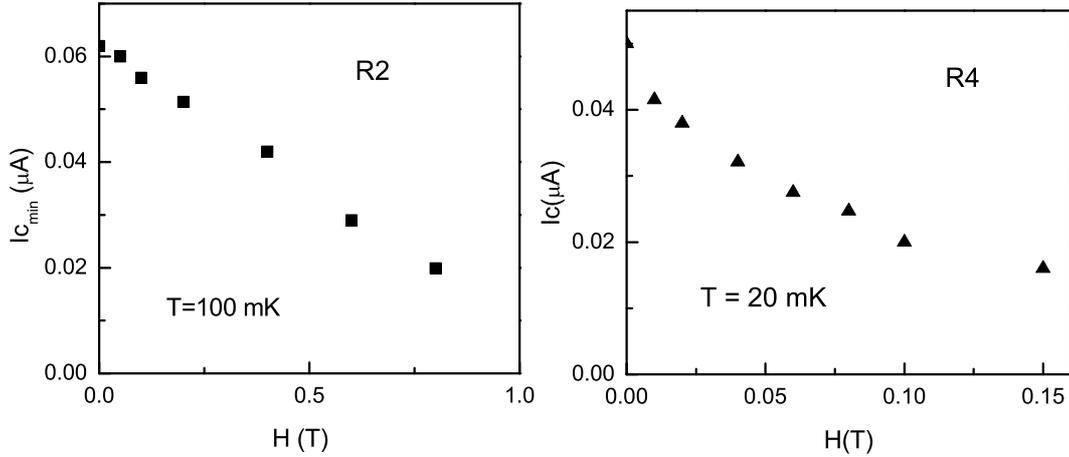


FIG. 11.6 – Evolution du courant critique en fonction du champ magnétique pour R2 et R4. Pour R2 on a tracé le courant critique correspondant au premier saut de résistance.

### 11.3.1 Evaluation de la longueur de cohérence supraconductrice

Dans l'hypothèse de transport diffusif, la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi$ , qui représente l'extension des paires de Cooper, est donnée par :

$$\xi = \sqrt{\frac{\hbar v_F l_e}{\Delta}} \quad (11.2)$$

Pour évaluer le gap supraconducteur  $\Delta$ , supposons que la relation BCS  $\Delta = 1.76k_B T_c$  reste valable. Afin d'avoir accès au gap intrinsèque du matériau nous avons choisi d'identifier  $T_c$  avec la température  $T^* = 0.45$  K marquant le début de la transition et non le point d'inflexion. Nous faisons ce choix à cause de la largeur de la transition pour les systèmes 1D. On obtient ainsi  $\Delta = 70\mu\text{eV}$  à partir de la transition de R2. On prendra dans la suite cette valeur pour toute les cordes résistives comprenant le même nombre de tubes que R2 c'est à dire R1 et R5. Le libre parcours moyen  $l_e$  est obtenu à partir de la résistance dans l'état normal qui s'écrit pour un système diffusif :

$$R = R_Q \frac{L}{N l_e} \quad (11.3)$$

Les résultats pour tous les échantillons sont portés dans le tableau 11.1.

### 11.3.2 Pourquoi tous les échantillons ne transitent pas ?

Il a été montré que la supraconductivité ne peut résister à la présence de contacts normaux que si la longueur du supraconducteur est grande devant  $\xi$  [82, 83]. Nous comprenons donc qualitativement que la transition est complète pour R2 ( $\xi_2 \approx L_2/3$ ), partielle pour R1 et R4 ( $\xi_1 \approx L_1/2$  et  $\xi_4 \approx L_4$ ) et absente pour R3 et R6 ( $\xi_3 \approx 2L_3$  et  $\xi_6 \approx 2L_6$ ).

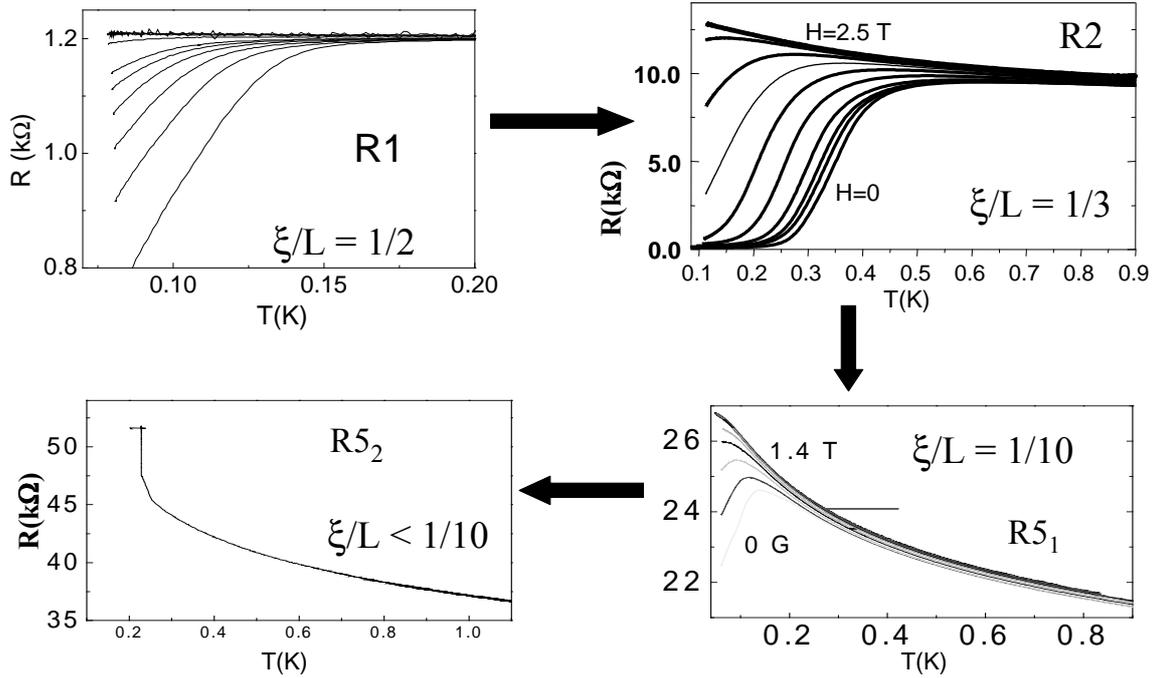


FIG. 11.7 – Evolution de la transition supraconductrice pour différents échantillons contenant le même nombre de nanotubes et des taux de désordre de plus en plus importants qui sont directement reliés à leur résistance dans l'état normal. La transition partielle devient complète quand le désordre augmente puis disparaît à plus fort désordre.

Ceci assure que la supraconductivité observée n'est pas un effet de proximité provenant de supraconductivité parasite des contacts car les plus petites cordes R3 et R6 présenteraient une transition supraconductrice à plus haute température que les autres.

D'après l'équation (11.2),  $\xi$  est d'autant plus petit et donc la supraconductivité d'autant plus robuste que le désordre est fort ( $D$  petit). Mais il est clair qu'à trop fort désordre la localisation empêche la supraconductivité de se développer. Ainsi pour la corde R5<sub>1</sub>, on a  $\xi \ll L$  et une transition incomplète (fig 11.7). On comprend ceci car cet échantillon est proche de la localisation :  $R = 17k\Omega \sim R_Q$  à 300 K. De plus lors d'un second refroidissement la transition supraconductrice disparaît complètement alors que la résistance à 300 K a augmenté conduisant à un  $\xi$  plus petit mais un état localisé à basse température. Le désordre est donc un paramètre clef dans cette transition : paradoxalement c'est lui qui permet de stabiliser l'état ordonné qu'est la supraconductivité mais c'est encore lui, s'il est trop fort, qui détruit cet état (Fig. 11.7).

Corde	longueur (L)	N (approx.)	R(290 K)	R(4,2 K)	$l_e$ (nm)	$\xi$ (nm)	$\xi/L$	transition
R1	1.6 $\mu m$	300	1.1 $k\Omega$	1.2 $k\Omega$	31	780	0.5	partielle
R2	1 $\mu m$	350	4.2 $k\Omega$	9.2 $k\Omega$	18	320	0.3	totale
R3	0,3 $\mu m$	240	475 $\Omega$	500 $\Omega$	40	530	1.8	
R4	1 $\mu m$	40	620 $\Omega$	620 $\Omega$	230	1200	1.2	partielle
R5 <sub>1</sub>	2 $\mu m$	300	16 $k\Omega$	21 $k\Omega$	3	150	0.075	partielle
R6	0.3 $\mu m$	200	223 $\Omega$	240 $\Omega$	30	460	1.5	

TAB. 11.1 – Principales caractéristiques des cordes mesurées. Le nombre  $N$  de nanotubes dans chaque corde est déduit du diamètre de la corde. Le nombre de tubes participant au transport est évalué à partir de la résistance dans l'état supraconducteur quand la transition est observable. On trouve  $N_{metal} \approx N/3$ .

## 11.4 Influence du nombre de tubes

Quelque soit le régime de transport électronique dans la corde, le nombre de tubes apparaît aussi a priori comme un paramètre important de la transition supraconductrice.

D'une part plus le nombre de tubes dans la corde est faible et plus on se rapproche de la limite 1D. Comme une transition vers un état ordonné est détruite par les fluctuations pour un système 1D infini [84], la transition supraconductrice est de plus en plus faible. Si on compare les cordes R2 et R4 (Fig.11.8) on constate bien que la transition est beaucoup plus large pour R4 (40 tubes) que pour R2 (350 tubes dont plus de 90 métalliques) à la fois en température et en champ magnétique .

D'autre part on s'attend à un meilleur écrantage des interactions coulombiennes dans une grosse corde que dans une fine (cf. chapitre sur l'état normal). Chaque tube est écranté par les électrons de son voisin situé à une distance de 0.3 nm qui est inférieure au diamètre du tube. Cet auto-écrantage sera bien meilleur qu'une grille métallique généralement située loin de l'échantillon, au mieux à quelques nanomètres. Ceci favorise la supraconductivité car l'interaction électron-phonon responsable de l'appariement des paires de Cooper domine d'autant plus facilement la répulsion coulombienne que celle-ci est réduite par le phénomène d'écrantage.

## 11.5 Effet du champ magnétique

### 11.5.1 Champ critique : effet orbital ou paramagnétique ?

Il est très difficile dans le cas des nanotubes de dire comment le champ magnétique détruit la supraconductivité. D'une part le champ peut déphaser les deux électrons d'une même paire de Cooper et la détruire, pour cela il faut introduire un quantum de flux dans une surface délimitée par  $\xi$  longitudinalement et  $d$  le diamètre d'un seul tube transversalement si le champ est perpendiculaire à la corde (Fig. 11.9). Dans l'état supraconducteur il est possible que les paires de Cooper sautent entre les tubes par effet Josephson. La

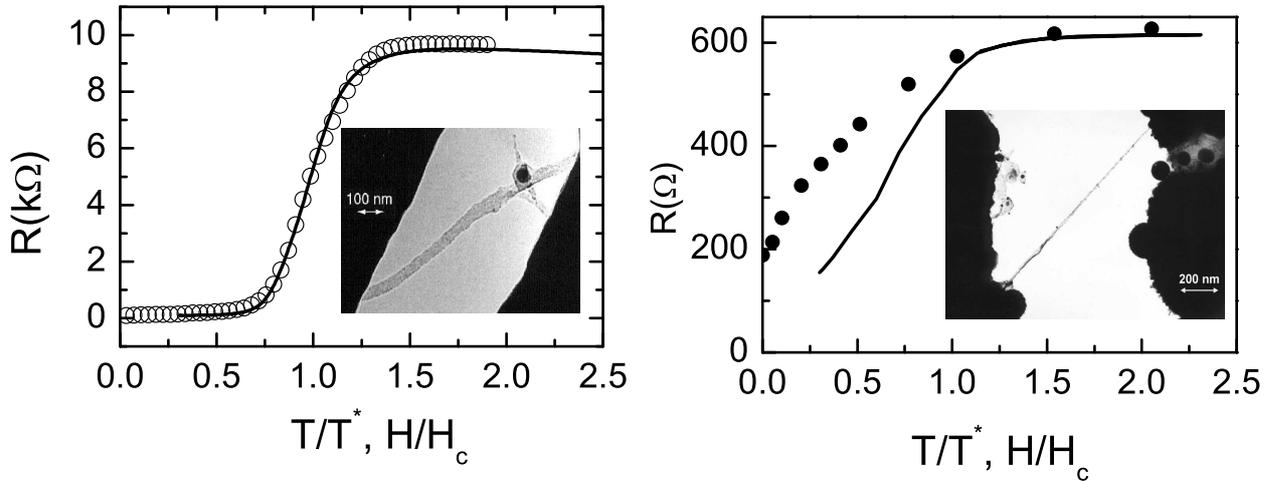


FIG. 11.8 – A gauche, résistance de R2 en fonction de la température (trait plein) et du champ magnétique ( $\circ$ ) représentée en échelle réduite  $T/T_c$  et  $H/H_c$ . A droite, même chose pour R4. On voit bien dans cette représentation le fort élargissement de la transition pour R4.

destruction de ce couplage correspond généralement à des champs assez faibles mais une mesure de résistance n'y est pas sensible si les tubes sont supraconducteurs individuellement. C'est pourquoi pour évaluer le champ critique nous prenons le diamètre d'un seul tube. On obtient ainsi  $H_c = \Phi_0 / (2\sqrt{\pi}d\xi) = 1.35$  T pour R2 et 0.25 T pour R4. D'autre part le champ peut rendre l'état paramagnétique plus stable que l'état supraconducteur. Le champ critique est alors  $H_P = \Delta / \mu_B = 1.43$  T pour R2 et 0.3 T pour R4 ce qui est très proche des précédentes valeurs. Expérimentalement nous avons mesuré, quand le champ est perpendiculaire aux échantillons,  $H_c = 1.6$  T pour R2 et 0.22 T pour R4 ce qui peut correspondre aux deux scénarios imaginés.

### 11.5.2 Anisotropie du champ critique

Afin de déterminer lequel de ces mécanismes intervient, il faut mesurer le champ critique pour différentes orientations du champ par rapport aux nanotubes. En effet le champ  $H_P$  est isotrope alors que  $H_c$  sera de l'ordre de 1000 T si le champ est parallèle aux nanotubes à cause de leur petit diamètre. Nous avons réalisé cette expérience sur l'échantillon R4. Pour cela nous avons mesuré la magnéto-résistance de l'échantillon pour deux orientations de champ magnétique différentes. On définit le champ critique comme le champ à partir duquel la résistance commence à décroître quand on diminue le champ (Fig 11.10). Les données montrent bien un champ critique plus fort dans la configuration parallèle (fig. 11.10). Comme le tube n'est pas strictement parallèle au champ (Fig. 11.9) on aura  $H_c = H_{c\perp} \cos \theta$  ce qui correspond au facteur 1.6 que l'on observe pour un angle de  $45^\circ$ . Cependant pour faire cette expérience il a fallu cyclothermiquement l'échantillon ce qui a légèrement

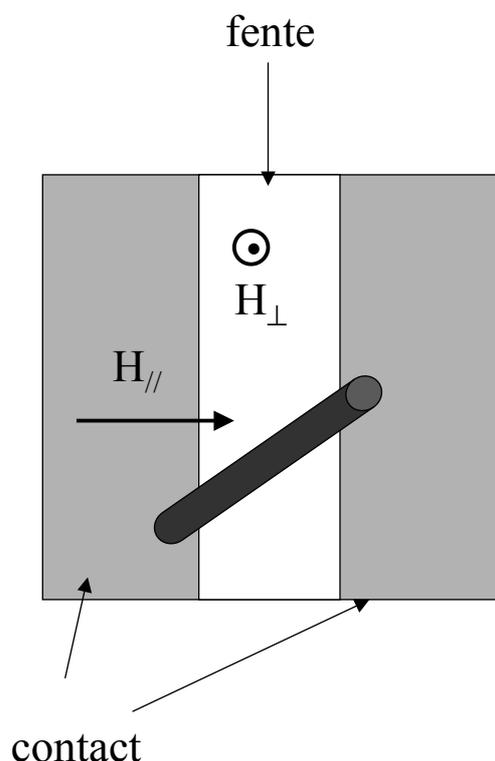


FIG. 11.9 – Schéma représentant l'orientation du champ par rapport au nanotube dans les expériences champ perpendiculaire ( $H_{\perp}$ ) et champ parallèle ( $H_{//}$ ). En géométrie perpendiculaire le champ est parfaitement perpendiculaire au plan dans lequel se trouve le nanotube, par contre en champ parallèle il peut exister un angle  $\theta$  non contrôlable entre le champ et le nanotube qui dépend de la manière dont le nanotube est orienté dans la fente.

changé sa résistance dans l'état normal. De plus il n'est pas assuré que le thermomètre ait été couplé exactement de la même manière à l'échantillon dans les deux expériences car il a été démonté entre temps. Le facteur 1.6 que l'on observe pourrait donc être dû au changement de conditions expérimentales.

Avant de conclure, il paraît donc indispensable de réaliser cette expérience dans un cryostat possédant une bobine 2 axes afin de mesurer le champ critique dans les deux orientations lors du même refroidissement.

### 11.5.3 Dimensionnalité

La variation de température critique de l'échantillon R2 est linéaire en champ magnétique (Fig. 11.3) ainsi que celle du champ critique en température (Fig. 11.11), ce qui est surprenant car ce comportement est caractéristique des systèmes bi-dimensionnels [85] plutôt que 1D. Cependant ceci pourrait s'expliquer par le fait que le champ critique soit relié

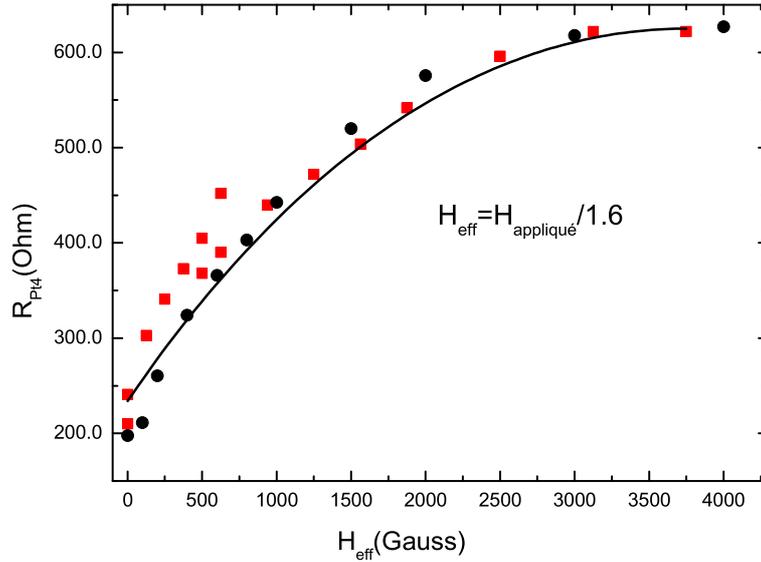


FIG. 11.10 – Résistance de R4 en fonction du champ magnétique mesurée en champ perpendiculaire et en champ parallèle. Nous avons divisé le champ parallèle appliqué par 1.6 pour que les deux courbes se superposent. Ce facteur peut aussi bien provenir d'une réelle anisotropie que d'un changement de désordre dans l'échantillon à cause du cyclage thermique. La ligne continue sert de guide.

à  $H_P$  qui conduit le système vers un état paramagnétique. En effet on peut écrire dans ce cas que le gap est réduit par l'énergie Zeeman. Dans l'hypothèse où la température critique est proportionnelle au gap on obtient :

$$T_c(H) \approx T_c(0) - \frac{g\mu_B}{\alpha k_B} H \quad (11.4)$$

Dans la théorie BCS la constante  $\alpha = 1.76$  et donc le rapport  $g/\alpha$  est proche de 1. Nous avons ajusté la courbe  $T_c(H)$  en laissant ce rapport libre. Nous obtenons le meilleur résultat pour une valeur de ce rapport de  $1/2.6$  qui est proche de 1. Il semble donc que cette décroissance linéaire de  $T_c$  s'explique de façon satisfaisante par un effet Zeeman.

## 11.6 Une supraconductivité unidimensionnelle

### 11.6.1 Les sauts de phase

Sur les figures 11.4 et 11.5 les sauts dans la résistance différentielle pour certaines valeurs du courant appliqué rappellent les mesures faites dans des fils supraconducteurs très fins [86]. Ces sauts sont attribués à des sauts de phase du paramètre d'ordre [86, 63] qui se traduisent par l'apparition de régions normales dans l'échantillon autour des défauts (cf section 7.3.2). Ce phénomène est observé pour des supraconducteurs unidimensionnels

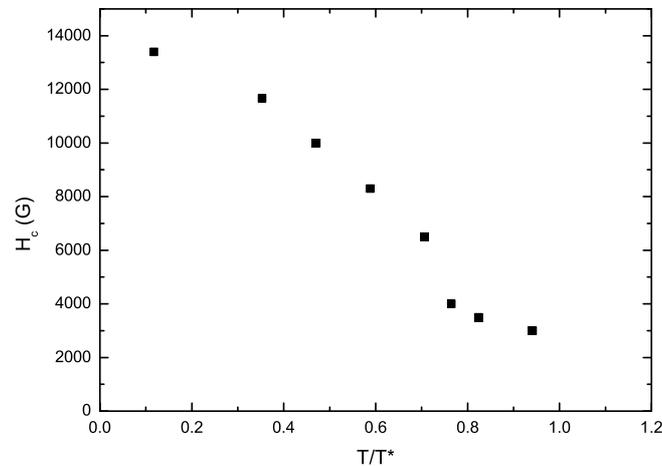


FIG. 11.11 – Champ critique de R2 en fonction de la température.

c'est-à-dire quand la longueur de cohérence  $\xi$  est supérieure aux dimensions transverses de l'échantillon. Il semble que les cordes de nanotubes soient bien dans ce cas puisque les  $\xi$  évalués sont toujours supérieures au diamètre des cordes. Cependant à cause de la forte anisotropie des cordes,  $\xi$  dans la direction perpendiculaire doit être inférieure à celle de la direction transverse. Le fait qu'on observe ces sauts de résistance et que  $\xi_{\text{extrait}} \gg D$  (le diamètre de la corde) confirme que la supraconductivité observée est unidimensionnelle.

La taille de ces régions est de l'ordre de  $\xi$ . Si le premier saut de résistance de R2 (Fig. 11.4) correspond bien à l'apparition d'une zone normale de cette taille ( $\Delta R = R_\xi = R_N \frac{\xi}{L}$ ) il est impossible que chaque saut suivant corresponde à l'apparition d'une nouvelle zone de taille  $\xi$  car la corde n'est pas assez longue. Il est possible par contre que ce premier saut de phase une fois nucléé corresponde à une région normale qui s'agrandit par paliers jusqu'à rendre la corde complètement normale.

Ce sont également ces sauts de phase qui sont à l'origine de l'élargissement en température des transitions car ils créent une résistance finie dans l'état supraconducteur. En particulier dans la théorie de de Martino et Egger [60], ils déterminent complètement la forme de la transition.

### 11.6.2 Les courants critiques

On peut définir différents courants critiques sur les courbes de résistance différentielle. Pour l'échantillon R2 on appelle  $I_C$  le courant pour lequel le premier saut de phase apparaît et  $I_C^*$  la valeur du courant pour le dernier saut de résistance. Pour l'échantillon R4 seul un saut de résistance est clairement identifiable et nous avons donc déterminé un seul courant

critique noté  $I_C^* = 60 \text{ nA}$ . Dans l'échantillon R2, la valeur du courant  $I_C = 60 \text{ nA}$  à laquelle le premier saut apparaît correspond à la valeur théorique du courant critique pour un fil supraconducteur diffusif de gap  $\Delta = 85 \mu\text{eV}$  ( $I_C = \Delta/eR_\xi = 20 \text{ nA}$ ) [87] alors que la valeur de courant correspondant au dernier saut de résistance  $I_C^* = 2.4 \mu\text{A}$  est proche du courant critique pour un fil balistique contenant 100 canaux de conduction  $I_C^* = \Delta_2/R_r e = 1.2 \mu\text{A}$ .

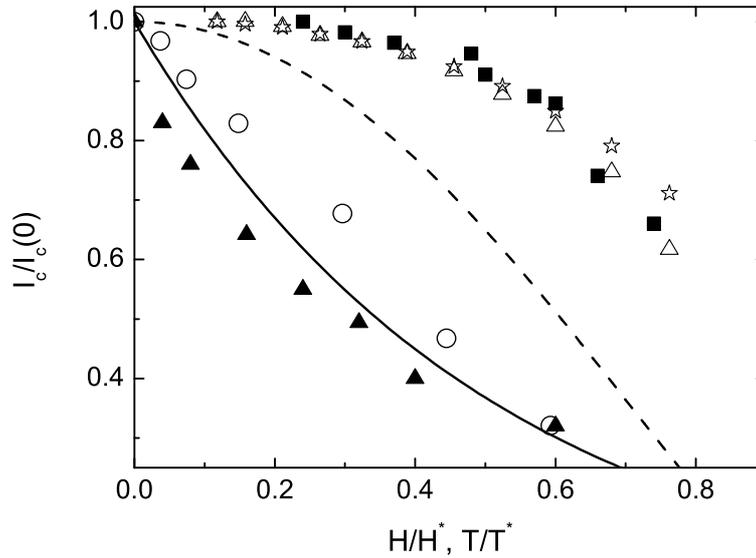


FIG. 11.12 – Variation du courant critique en fonction de la température réduite  $T/T^*$  et du champ magnétique réduit ( $H/H^*$ ). Les variations en température des courants critiques  $I_c^*$  (étoiles) et  $I_c$  (triangles vides) de R2,  $I_c^*$  (carrés) de R4 semblent identiques. La courbe en pointillés est le courant critique correspondant à l'équation 11.5 qui prédit une variation plus forte que celle observée. La courbe en traits plein est un ajustement exponentiel pour les variations du courant en fonction du champ magnétique qu'on peut comparer aux variations en champ magnétique du courant critique de R2 (ronds) et R4 (triangles pleins).

Les variations de  $I_C$  et  $I_C^*$  sont très similaires pour les différents échantillons et ne semblent pas dépendre du nombre de tubes. Par contre le comportement du courant critique en champ et en température est très différent. On observe une variation très faible du courant critique en température, sur la gamme explorée, si l'on compare à la prédiction de Bardeen [88] pour un fil supraconducteur de largeur  $W \ll \xi$  qui reproduit assez bien les courants critiques mesurés dans la référence [87].

$$I_c(T) \propto \left(1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^2\right)^{3/2} \quad (11.5)$$

En revanche la variation du courant en fonction du champ magnétique est beaucoup plus forte. En première approximation  $I_c$  décroît linéairement en champ (11.5), ce qui rappelle fortement de précédentes expériences réalisées dans le groupe sur la supraconductivité

Corde	longueur (L)	N (approx.)	$T^*$ (mK)	$I_c$ ( $\mu A$ )	$I_c^*$ ( $\mu A$ )
$R1$	$1.6 \mu m$	300	140	0.1	0.36
$R2$	$1 \mu m$	350	550	0.06	2.4
$R4$	$1 \mu m$	40	120		0.06
$R5_1$	$2 \mu m$	300	130	0.020	0.12

TAB. 11.2 – Températures et courants critiques des cordes mesurées.  $T^*$  est la température en dessous de laquelle la résistance commence à chuter,  $I_c$  est le courant correspondant au premier saut de résistance et  $I_c^*$  est le courant correspondant au dernier saut de résistance.

induite dans les nanotubes [89]. Cependant l'amplitude de la variation du courant est assez faible et on peut aussi bien ajuster la courbe par une décroissance exponentielle ce qui correspond au comportement observé pour la supraconductivité des composés organiques quasi-1D [90].

### 11.6.3 Fluctuations supraconductrices au delà de $T^*$

La basse dimensionnalité du système se reflète aussi dans la persistance des fluctuations supraconductrices au-delà de la température  $T^*$  à laquelle commence la transition sur les mesures de résistances. En particulier, nous avons mesuré la magnétorésistance de  $R4$  à 1K qui montre encore une faible diminution de la résistance à bas champ (Fig. 11.13). Ceci peut être interprété comme une réminiscence de la supraconductivité. Un tel comportement en champ magnétique n'est jamais observé pour les échantillons non-supraconducteurs.

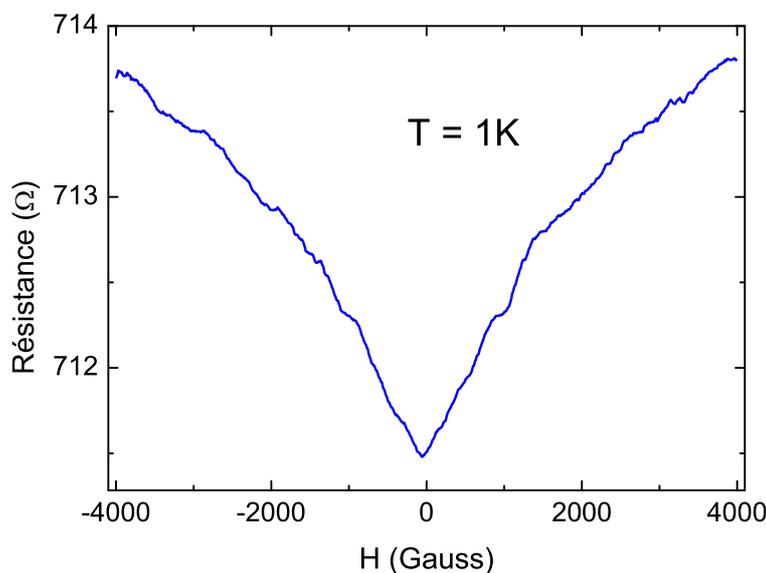


FIG. 11.13 – Magnétorésistance de l'échantillon  $R4$  ( $T_c < 100$  mK) mesurée à 1K.

## 11.7 Comparaison avec la théorie de Martino, Egger

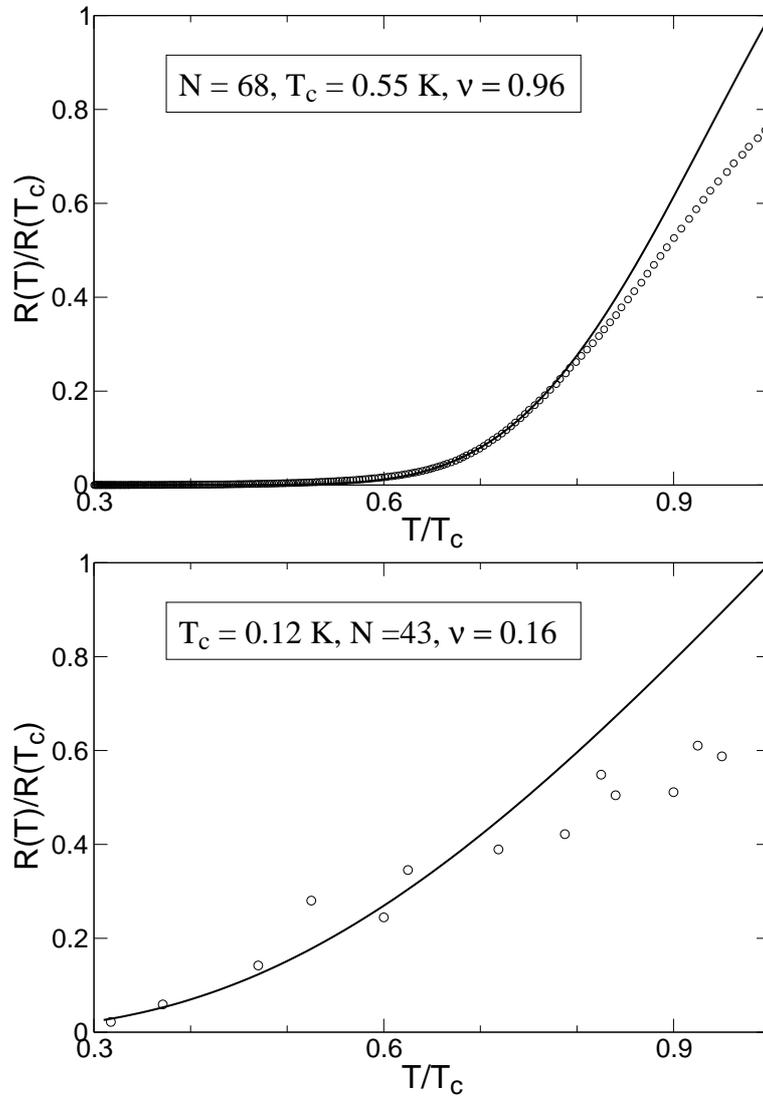


FIG. 11.14 – Ajustement de la chute de résistance de R2 et R4 par la théorie de la référence [60].

Nous comparons dans cette partie nos données expérimentales pour R2 et R4 au modèle de de Martino [60]. Cette comparaison peut être envisagée pour ces deux échantillons car les mesures ont été réalisées jusqu'à des températures très inférieures à la température critique pour lesquelles le modèle est valide ( $T/T^* = 0.3$ ). Comme la théorie ne prend pas en compte les contacts, nous avons soustrait la résistance de contact évaluée à la plus basse température. En revanche nous avons constaté que cette résistance fixe le nombre de nanotubes conducteurs et ce paramètre est donc considéré comme fixé pour les ajustements

des données. De même le paramètre de Luttinger  $g$  décrivant les interactions est évalué à 1.3 pour une corde et n'est pas un paramètre ajustable.

Comme on l'a vu dans le paragraphe 7.3, la température critique peut être évaluée par ce modèle théorique. Cependant celle-ci dépend de paramètres microscopiques qui ne sont pas bien connus (le couplage Josephson) et on utilise donc la valeur expérimentale. Il ne reste donc qu'un seul paramètre ajustable  $\nu$ . On a vu que ce paramètre est relié à la connectivité des tubes métalliques dans la corde, il est donc impossible à déterminer expérimentalement. Sa valeur pour une corde composée uniquement de tubes métalliques est 1.

L'ajustement des données expérimentales est représenté figure 11.14. L'accord est très bon pour R2 à basse température avec un paramètre  $\nu = 0.75$  proche de 1. En revanche pour R4 l'accord est moins bon et le paramètre  $\nu = 0.16$  diffère plus de la valeur 1. Ceci peut s'expliquer par le fait que l'écrantage est beaucoup moins bon pour l'échantillon R4 comme nous l'avons vu précédemment.

Evidemment l'ajustement ne tient plus près de  $T^*$  puisque la théorie traite le nombre de sauts de phase en perturbation. Ceux-ci prolifèrent quand la température augmente et la théorie ne peut pas prendre cet effet en compte. De plus, près de  $T^*$ , la longueur de cohérence supraconductrice est très grande et le comportement est donc fortement influencé par les contacts normaux. Ceci n'est pas pris en compte par la théorie qui suppose que la corde de nanotubes est infinie. Enfin on ne peut pas s'attendre à un bon accord sans prendre le désordre en compte. En effet celui-ci crée des centres de nucléation pour les sauts de phase qui sont à la base de cette théorie [63].

## 11.8 Mesure de bruit dans les cordes de nanotubes

Afin de mieux connaître la nature du transport de l'échantillon R4 nous avons réalisé des mesures de bruit de grenaille. Comme on l'a vu il y a peu de doutes sur le régime de transport de R2 qui est nettement diffusif alors qu'il est difficile de se prononcer pour R4. De plus les échantillons très résistifs et donc désordonnés comme R2 présentent généralement un fort bruit en  $1/f$ , relié au mouvement des impuretés, rendant la mesure de bruit de grenaille très difficile.

### 11.8.1 Qu'est-ce que le bruit ?

Dans un conducteur, la nature corpusculaire des porteurs de charges induit des fluctuations du courant ou de la tension. L'analyse de ces fluctuations (ou bruit) constitue une sonde très puissante pour le transport électronique dans un échantillon mésoscopique.

#### Le bruit thermique

A l'équilibre les fluctuations de l'occupation des niveaux génèrent des fluctuations de courant appelées le bruit thermique ou bruit de Johnson-Nyquist [91, 92]. La quantité caractérisant les fluctuations de courant est la fonction de corrélation  $\langle I(t)I(0) \rangle - \langle I(0)^2 \rangle$  ou bien sa transformée de Fourier  $\langle I^2(\omega) \rangle$ . Dans le cas du bruit thermique elle peut être reliée à la conductance grâce au théorème fluctuation-dissipation :

$$S_I(f) = 2\pi \langle I^2(\omega) \rangle = 4\hbar\omega \coth\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right)G(\omega) \quad (11.6)$$

ce qui donne dans la limite classique où  $k_B T \gg \hbar\omega$  :

$$S_I = 4k_B T G(\omega) \quad (11.7)$$

Le bruit thermique ne nous apporte donc pas d'autres informations qu'une mesure de résistance du système mais il peut être utilisé pour calibrer la température.

#### Le bruit de grenaille

Lorsque le système est mis dans une situation hors équilibre par exemple sous l'effet d'une tension à ses bornes, le bruit reçoit une contribution supplémentaire appelée bruit de grenaille. Pour comprendre simplement son origine considérons un fil unidimensionnel contenant une barrière de potentiel (impureté) et connecté à deux contacts parfaits. Un électron est alors soit transmis (probabilité  $\tau$ ) soit réfléchi (probabilité  $R$ ) avec  $R + \tau = 1$ . Introduisons les nombres d'occupation  $n_T$  et  $n_R$  pour l'état transmis ou réfléchi. Si l'on répète cette expérience un grand nombre de fois alors les nombres moyens d'occupation sont donnés par  $\langle n_T \rangle = \tau$  et  $\langle n_R \rangle = R$ . A cause de la nature fermionique des porteurs

$n_R, n_T = 0$  ou  $1$ . D'autre part comme la particule est soit transmise soit réfléchi on a  $n_R n_T = 0$ . Finalement cet argument heuristique conduit aux fluctuations [93] :

$$\langle (n_T - \langle n_T \rangle)^2 \rangle = \langle (n_R - \langle n_R \rangle)^2 \rangle = R\tau \quad (11.8)$$

Ce bruit est appelé "bruit de partition" car il trouve son origine dans la séparation du faisceau d'électron par le potentiel. Ce bruit s'annule pour une transmission parfaite ou une réflexion totale car le faisceau d'électrons n'est plus séparé en deux.

En reliant les fluctuations du courant aux fluctuations du nombre d'occupation on obtient :

$$S_I = 2e(1 - \tau)\langle I \rangle \quad (11.9)$$

On voit que dans la limite  $\tau \ll 1$  le bruit de grenaille devient  $S_I = 2eI$  qui est le bruit obtenu pour des électrons traversant une diode à vide avec une distribution d'intervalles de temps donnés par une loi de Poisson [94], correspondant à des événements décorrélés.

Cette formule peut se généraliser au cas d'un conducteur multicanal mésoscopique et s'écrit [93] :

$$S_I = 2\frac{e^2}{h}|eV| \sum_{n=1}^M \tau_n(1 - \tau_n) \quad (11.10)$$

où les  $\tau_n$  sont les transmissions de chaque mode propre de conduction. On introduit le facteur de Fano qui est le rapport entre le bruit mesuré et le bruit de Poisson soit  $S_I = 2e\langle I \rangle F$ . Rappelons que puisque  $I = \frac{2e^2}{h}V \sum \tau_n$  on a :

$$F = \frac{\sum_{n=1}^M \tau_n(1 - \tau_n)}{\sum_{n=1}^M \tau_n} \quad (11.11)$$

On voit bien que l'intensité du bruit de grenaille renseigne sur le régime de transport. En particulier le bruit de grenaille est nul pour un échantillon balistique pour lequel  $\tau_n = 1$ . Ceci est directement lié au principe de Pauli donc à la statistique des porteurs. Dans un conducteur parfait dans lequel les électrons sont distants de la longueur d'onde de Fermi, le principe de Pauli les force à se propager sous forme de paquets d'ondes régulièrement espacés dans le temps. En revanche pour un échantillon diffusif la somme tend vers une valeur finie qui dépend de la taille de l'échantillon par rapport à la longueur typique d'interaction électron-électron ( $L_{ee}$ ). Après moyenne sur les transmissions (cf paragraphe 6.1.3), on trouve  $S_I = \frac{2}{3}eI$  pour  $L < L_{ee}$  [95]. Lorsque  $L_{ee} < L < L_{eph}$  on obtient par une approche semi-classique  $S_I = \frac{\sqrt{3}}{2}eI$ .

## Le bruit en 1/f

Il existe encore une troisième source de bruit, le bruit en  $1/f$  généralement attribué au mouvement des impuretés dans l'échantillon qui modifient la valeur de la résistance de

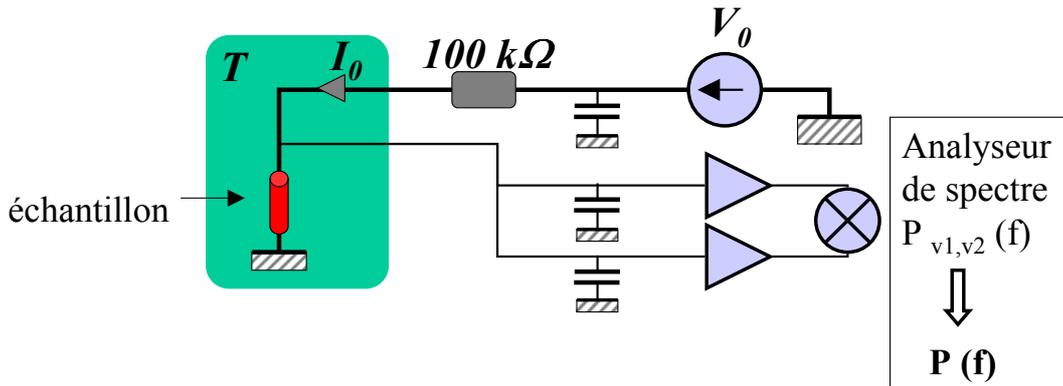


FIG. 11.15 – Schéma du montage électronique utilisé pour les mesures de bruit.

celui-ci. Ces dernières peuvent être décrites comme un ensemble de systèmes à 2 niveaux de temps caractéristiques distribués sur une large gamme. Ces systèmes sont révélés par le courant appliqué lors de la mesure. Il en résulte des fluctuations de courant de la forme :

$$S_I \propto \frac{\langle I \rangle^2}{f^\alpha} \quad (11.12)$$

avec  $\alpha$  de l'ordre de 1. La dépendance quadratique en  $\langle I \rangle$  permet de distinguer le bruit en  $1/f$  des autres.

### 11.8.2 Comment entendre le bruit ?

Pour les mesures de bruit nous avons utilisé un analyseur de spectre qui fournit le spectre de Fourier de la puissance de bruit de la tension d'entrée en prenant en compte les problèmes de repliement de bande liés à l'échantillonnage du signal d'entrée. La tension aux bornes de l'échantillon est amplifiée par un amplificateur de tension bas bruit ( $S_V(\text{ampli}) = 1.4\text{nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ ). Pour convertir le bruit de tension mesuré en bruit de courant, nous avons utilisé la relation :

$$S_I = \frac{1}{R^2}(1 + R/R_0)^2 S_V \approx \frac{1}{R^2} S_V \quad (11.13)$$

où  $R_0$  est la résistance de polarisation (cf Fig. 11.15). Chaque spectre est moyenné pendant quelques minutes.

Pour mesurer le bruit intrinsèque d'un système il est évidemment important de se protéger de tous les autres bruits parasites. Aussi nous avons réalisé un montage avec deux amplificateurs de tension aux bornes de l'échantillon (Fig.11.15). L'analyseur fait la transformée de Fourier du produit des tensions, ainsi une fluctuation qui n'est pas présente sur les deux signaux sera éliminée. Dans ces expériences l'échantillon est polarisé en courant continu grâce à une pile non reliée au secteur qui génère très peu de bruit.

Pour valider ce montage, le bruit de grenaille d'une jonction pn a été mesuré et correspond bien au bruit de Poisson attendu :  $S_I = 2eI$ . Il a été aussi vérifié qu'un échantillon macroscopique ne présentait pas de bruit de grenaille avec une précision :  $S_I < 2eI/2000$ .

### 11.8.3 Bruit thermique

Les mesures de bruit ont été réalisées à 1K, température à laquelle le bruit thermique domine les bruit parasites. C'est-à-dire que l'intensité du bruit mesuré vérifie bien la relation (11.7) (Fig.11.16). La mesure présentée dans la figure 11.16 a été faite sans résistance de polarisation, le bruit thermique observé est donc uniquement causé par l'échantillon. Dans la suite les mesures de bruit de grenaille ont été faites avec une résistance de polarisation  $R_0 = 100k\Omega$  à température ambiante. Cette résistance crée un bruit en courant qui se transforme en un bruit de tension à travers la résistance de l'échantillon ( $R$ ) et produit un bruit additif mais constant avec le courant. On peut calculer le nouveau bruit thermique attendu dans cette configuration :

$$S_V(f) = 4k_B T R + (R/R_0)4k_B T_{amb} R \quad (11.14)$$

où  $T$  est la température de l'échantillon et  $T_{amb}$  la température à l'extérieur du cryostat. On peut réécrire ce bruit de la résistance de polarisation comme une température effective de bruit :

$$T_{eff} = T + (R/R_0)T_{amb} \quad (11.15)$$

Ceci redonne bien le bruit résiduel observé en l'absence de courant de polarisation sur la figure 11.16.

On peut constater une remontée du bruit à basse fréquence à cause du terme en  $1/f$  puis un terme indépendant de la fréquence jusqu'à 10 kHz, le bruit thermique. A plus haute fréquence la coupure est due au filtre passe-bas constitué par la résistance de l'échantillon et les capacités du montage. Le bruit en courant des amplificateurs de tension est responsable de la remontée du bruit au dessus de 30 kHz.

### 11.8.4 Bruissement de grenaille

Avant de mesurer le bruit en fonction du courant appliqué à l'échantillon nous nous sommes assurés que sa résistance ne dépendait pas du courant dans la plage étudiée. En effet si la résistance varie avec le courant, le bruit thermique changera d'autant d'après la formule 11.7 ce qui peut fausser l'évaluation du bruit de grenaille.

Sur la figure (11.17) est représentée l'évolution du spectre de bruit en fonction du courant. On constate une augmentation de l'intensité du bruit blanc avec le courant. Le bruit de grenaille mesuré en fonction du courant est à peu près linéaire avec une pente 1/100 (Fig. 11.18). Ce bruit est donc très faible par rapport à celui attendu pour un conducteur diffusif.

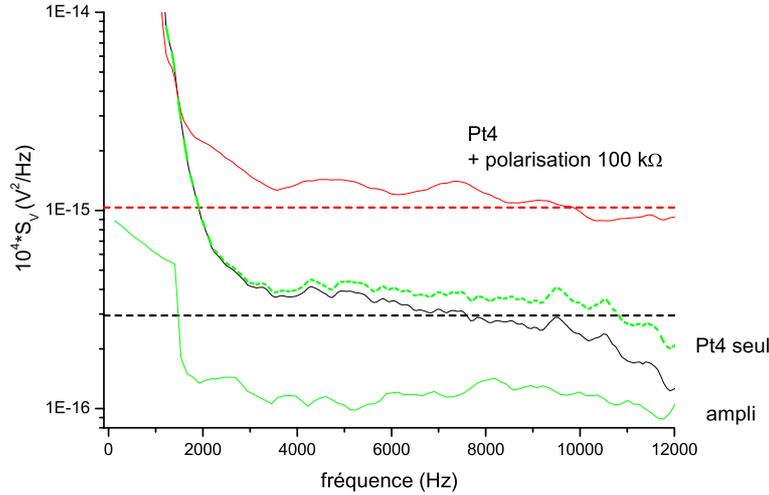


FIG. 11.16 – Bruit thermique à 0.8 K. La courbe la plus basse est le bruit résiduel des amplificateurs de tension. Les deux autre courbes en traits pleins représente le bruit en tension en fonction de la fréquence pour l'échantillon R4 ( $R = 700 \Omega$ ) sans et avec la résistance de polarisation de 100 k $\Omega$ . Les droites en pointillés sont les bruits thermique attendus. La courbe en pointillés est le bruit de R4 corrigé de la fonction de transfert du montage dont la fréquence de coupure est estimée à 20 kHz.

Cette réduction très importante du bruit de grenaille a d'ailleurs été observée dans plusieurs cordes peu résistives dans le groupe [96] (Fig. 11.19). Plusieurs phénomènes peuvent être à l'origine de cette forte réduction.

a) On peut penser à l'interaction électron phonon, caractérisée par une longueur de diffusion  $l_{e-ph}$ , qui induit une réduction du bruit de grenaille par un facteur  $l_{e-ph}/L$ . Pour expliquer la réduction observée il faudrait que  $l_{e-ph}$  ne dépasse pas 10 nm ce qui paraît vraiment très faible à 1K et à faible courant. En particulier, l'observation de supraconductivité induite dans des échantillons contactés de la même manière indique que cette longueur est beaucoup plus longue ainsi que l'absence de diffusion inélastique aux contacts. Le fait que la résistance ne change pas avec le courant exclut que  $l_{e-ph}$  diminue à fort courant.

b) Une autre possibilité, dans une analyse de type Landauer, est que le transport soit balistique à travers les nanotubes. On suppose que chaque nanotube  $i$  contient deux canaux de conduction caractérisés par leurs transmissions  $t_i^a$  et  $t_i^b$ , ce qui donne une conductance pour la corde :

$$G = G_Q \sum_i (t_i^a + t_i^b) \quad (11.16)$$

On peut alors exprimer le bruit de grenaille d'après la formule (11.10) comme :

$$S_I = 2eG_Q V \sum_i [(t_i^a(1 - t_i^a) + t_i^b(1 - t_i^b))] \quad (11.17)$$

Connaissant la résistance et la réduction du bruit de grenaille il est possible de déduire

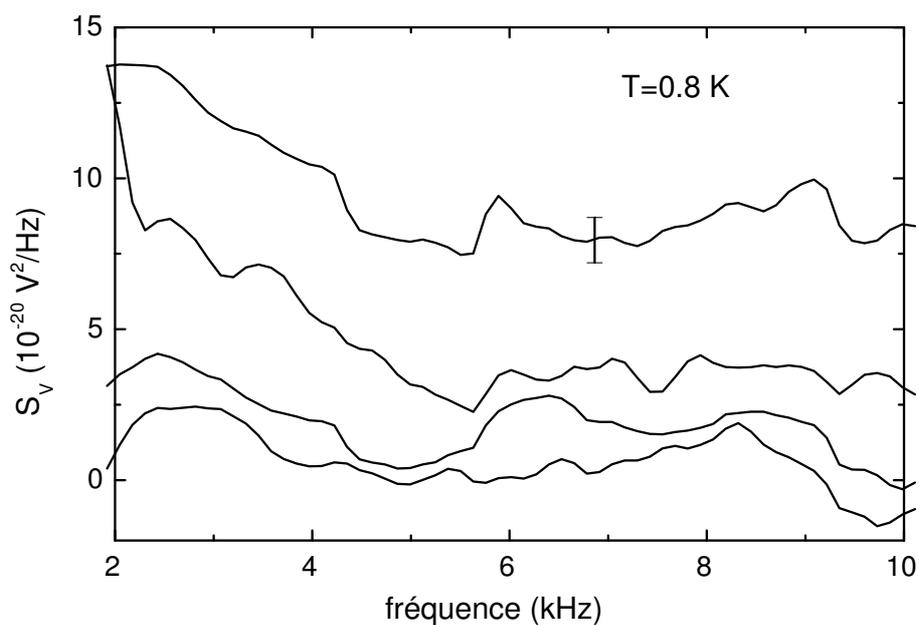


FIG. 11.17 – Bruit en tension en fonction de la fréquence pour l'échantillon R4 pour différentes valeurs de courant 20, 40, 50 et 80  $\mu\text{A}$  de bas en haut. L'erreur sur ces données est donnée par le bruit des amplificateurs qui est de  $1.5 \times 10^{-20} \text{ V}^2/\text{Hz}$  (Fig 11.16). Ce bruit a été mesuré à 0.8K quand R4 a déjà subi les deux premiers dépôts décrits dans le paragraphe "suppression de la supraconductivité par dépôt de matériaux organiques". Ces dépôts n'ont pas changé la valeur de sa résistance et l'échantillon présentait encore une transition supraconductrice en dessous de 100 mK.

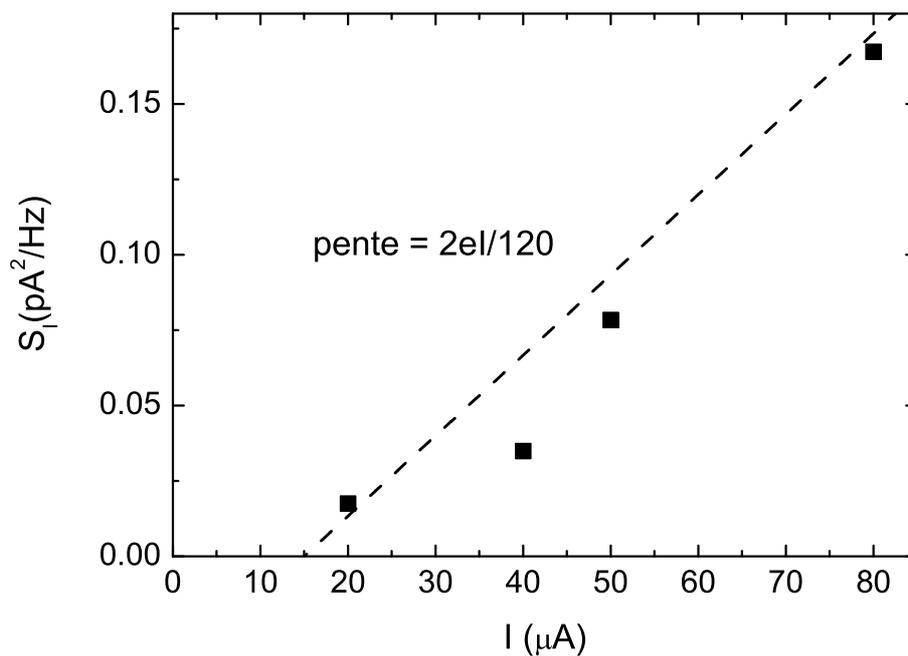


FIG. 11.18 – Bruit en courant en fonction du courant appliqué pour l'échantillon R4 à 0.8 K. La droite montre la pente  $2eI/120$ .

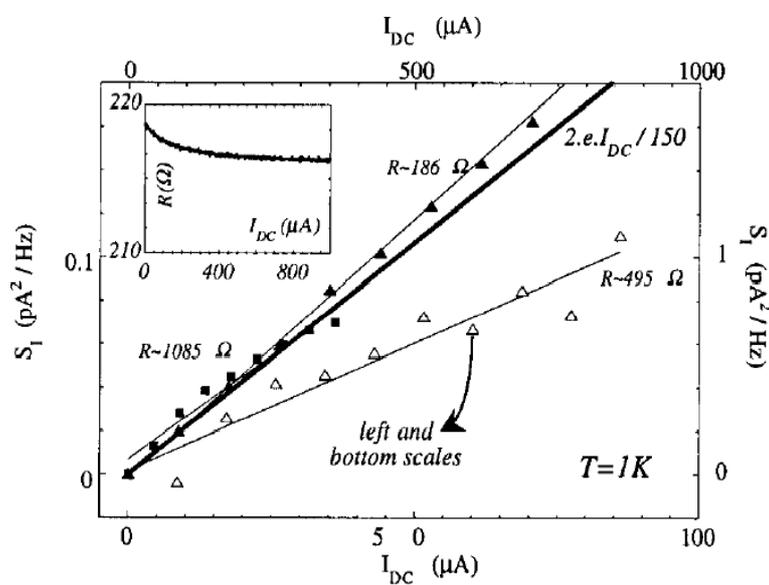


FIG. 11.19 – Bruit de grenaille en fonction du courant à 1K pour 3 cordes différentes. Extrait de la référence [96].

les valeurs des transmissions  $t_i$ . R4 contient 40 tubes ce qui correspond à 80 canaux de conduction au maximum. La résistance de  $620 \Omega$  nous donne  $\sum t_i = 20.9$ . La réduction maximum du bruit de grenaille est obtenue quand tous les canaux sont soit parfaitement ouverts soit parfaitement fermés sauf 1. On en déduit donc que la corde contient 11 tubes conducteurs dont 10 conduisent parfaitement et 1 a une transmission réduite de 0.9. On obtient alors une réduction du bruit de grenaille de  $4 \times 10^{-3}$  qui est un peu plus importante que celle mesurée.

Une importante réduction est aussi obtenue dans le cas plus probable ou seulement 11 tubes conduisent mais tous avec une même transmission proche de 1. On obtient alors une transmission de 0.95 par canal ouvert et une réduction du bruit de grenaille d'un facteur 20. Pour expliquer correctement le facteur 100 il faut donc considérer que certains de ces 22 canaux sont mieux ouverts que les autres et que la valeur de la transmission n'est pas exactement la même pour tous comme on l'a supposé pour simplifier le calcul. Cependant il est clair que cette réduction du bruit peut très bien s'expliquer dans une image où le transport électronique dans R4 se fait dans quelques nanotubes de la corde et de façon quasi-balistique.

c) Enfin, on peut aussi penser que les excitations de charge non-entière  $e^* = ge$  prévues dans un liquide de Luttinger jouent un rôle dans le bruit de grenaille. Dans les nanotubes on a  $g \approx 0.3$ . Remplacer  $e$  par  $e^*$  dans l'analyse peut aider à expliquer une partie de la réduction observée. Cependant même ainsi le transport doit être quasi-balistique car il faudrait invoquer une charge  $e^* = e/30$  pour expliquer la réduction dans l'hypothèse où le transport est diffusif. De plus il semble pour l'instant que cette substitution ne soit pas justifié théoriquement pour un nanotube connecté à des réservoirs [97]. Ce résultat rappelle l'absence de renormalisation de la conductance pour le nanotube (chapitre 6).

L'échantillon R4 ne peut donc pas être analysé de la même manière que les autres cordes supraconductrices pour lesquels le transport électronique semble diffusif. Cet échantillon correspond d'ailleurs mieux au modèle développé par *de Martino et Egger* qui prend uniquement en compte des nanotubes balistiques.

## 11.9 Suppression de la supraconductivité par dépôt de matériaux organiques

Dans le but d'approfondir la compréhension de la supraconductivité observée dans les nanotubes nous avons modifié l'échantillon R4. Pour cela nous avons déposé des substances organiques sur la corde R4 afin de modifier le spectre de phonons de basse énergie et de tester l'importance du caractère suspendu de l'échantillon.

### 11.9.1 Mesures de transport

Nous avons tout d'abord déposé une goutte de benzène di-thiol sur la fente en travers de laquelle R4 est contacté. Le but de cette manipulation était essentiellement de bloquer

les modes de vibration de R4 et changer le spectre des phonons de très basse énergie. Nous avons choisi cette substance car sa température de solidification est de (15 °C) ce qui permet de la déposer dans un état pâteux et de la solidifier tout de suite sur le tube avec un simple courant d'air frais. L'effet obtenu est assez surprenant car la résistance de R4 dans l'état normal n'est pas changée bien que la supraconductivité soit fortement affaiblie. En particulier la température critique a diminué de 90 mK à 60 mK et le courant critique a été divisé par 2 (Fig. 11.20).

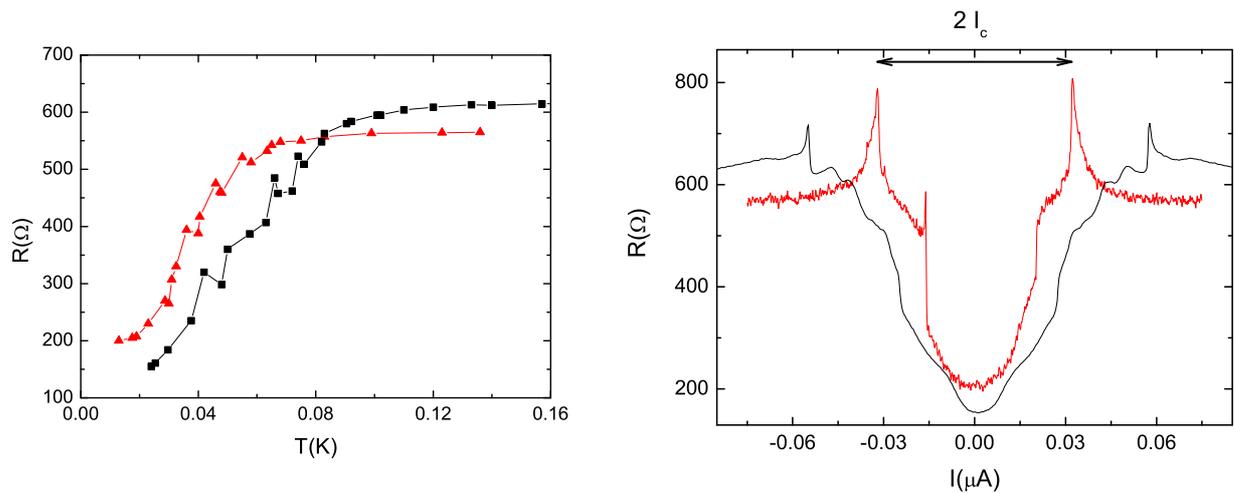


FIG. 11.20 – Transition supraconductrice avant (carrés) et après (triangles) le dépôt de benzène di-thiol. La température critique et le courant critique diminuent.

Nous avons ensuite ajouté davantage de matière dans la fente. Deux tentatives successives de dissolution du dichloroéthane du benzène ont en fait emprisonné la corde de nanotubes dans une gangue de plexiglas provenant du porte-échantillon qui équivalent au PMMA utilisé en lithographie électronique. Ceci s'est traduit par une disparition progressive de la supraconductivité sans toutefois affecter de façon importante la résistance dans l'état normal (Fig. 11.21) ce qui signifie en particulier que le désordre n'a pas changé.

### Réminiscence de la supraconductivité

Même lorsque la supraconductivité semble être détruite il reste quelques signes de celle-ci. En effet on voit sur la figure 11.22 que la corde de nanotube présente toujours une faible magnétorésistance positive caractéristique des fluctuations supraconductrices.

Il semblerait donc que le fait d'emprisonner les tubes dans une substance organique joue un rôle non trivial sur la supraconductivité. Il est possible notamment que l'on ait réussi à modifier le spectre de phonons de la corde de nanotubes responsable de l'appariement des paires de Cooper. Ceci est possible car les phonons invoqués dans la théorie de *de Martino et Egger*[60] sont les modes de respiration des tubes qui sont des phonons d'assez basse

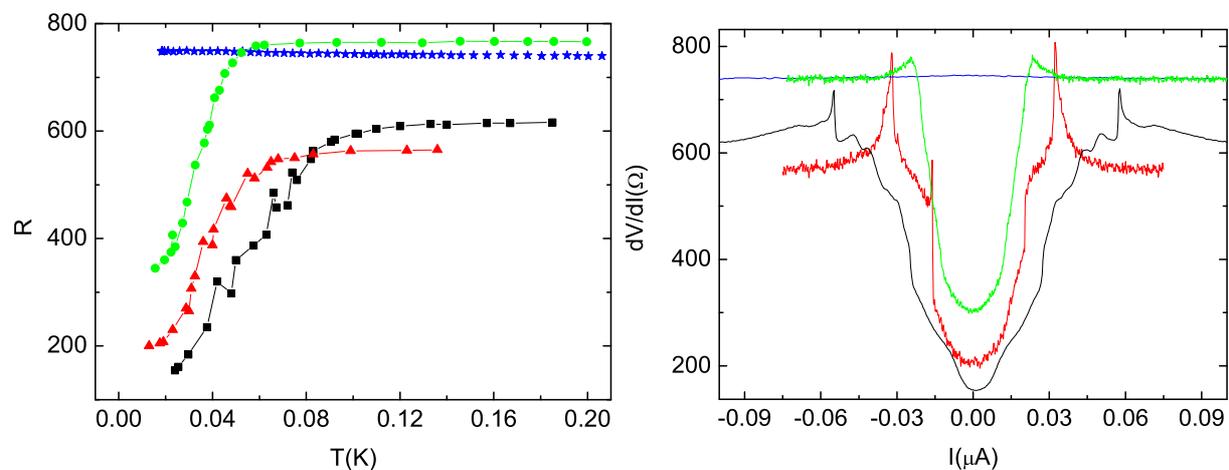


FIG. 11.21 – Evolution de la transition supraconductrice au cours des différents dépôts. Diminution progressive puis disparition de la transition supraconductrice. A gauche, sans dépôt (carrés), dépôt de benzène di-thiol (triangles), premier nettoyage au  $C_2H_2Cl_2$  (ronds) puis deuxième nettoyage (étoiles). A droite on retrouve le même ordre si on suit les courbes de bas en haut.

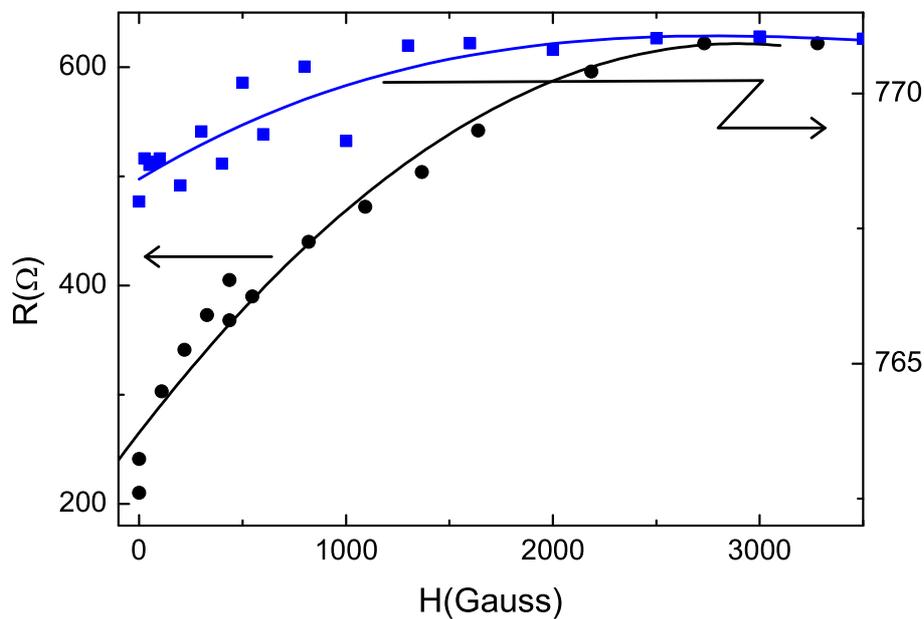


FIG. 11.22 – Magnétorésistance de l'échantillon R4 avant les différents dépôts (○) et après tous les dépôts(□).

énergie. Il est évident qu'on n'affecte pas les phonons de haute énergie en recouvrant le tube comme on l'a fait. Si c'est bien cet effet que l'on observe alors l'expérience devrait être réversible. Cependant nous n'avons pas encore été capable de nettoyer correctement la corde de nanotubes afin de vérifier que la supraconductivité était bien retrouvée.

### 11.9.2 Spectroscopie Raman

Nous avons parallèlement commencé une collaboration avec Anne Marie Bonnot<sup>1</sup> pour réaliser des expériences Raman sur des cordes de nanotubes suspendus afin de vérifier que le spectre de phonons est bien modifié et que l'effet est réversible. Pour cela nous avons utilisé les membranes fabriquées par l'IEMN sans contact métallique sur lesquelles nous avons déposé une couche de quelques nanomètres de cobalt. A.M. Bonnot a fait croître les tubes par CVD directement en travers de la fente à partir du cobalt déposé de part et d'autre. Les phonons ont ensuite été caractérisés par spectroscopie Raman. Nous pouvons ainsi visualiser les phonons de l'échantillon initial puis après dépôt de PMMA et enfin après le nettoyage du PMMA.

L'intensité Raman est fortement affaiblie quand les nanotubes sont recouvert de PMMA, cependant il est possible de comparer les intensités relatives des différentes raies Raman caractéristiques des différents modes. Ces résultats préliminaires montrent que les modes de respiration du nanotube sont fortement affectés par le dépôt de PMMA puisque l'intensité relative de ce mode par rapport au mode longitudinal passe de 3.6 à 0.5. Après nettoyage du PMMA on retrouve un rapport de 4.

Cet effet n'a été vérifié que pour du PMMA non recuit avant le nettoyage. Il s'avère que nous n'avons pas réussi à enlever le PMMA lorsqu'il est recuit. Ceci est important car dans toutes les expériences où les nanotubes sont contactés par lithographie ils sont recouverts de PMMA qui est généralement recuit ce qui peut donc gêner l'observation de supraconductivité.

## 11.10 Conclusion

Les mesures de transport sur les cordes de nanotubes de carbone suspendues ont permis d'observer de la supraconductivité dans une limite de faible nombre de canaux (40) encore jamais atteinte. Ceci a été possible grâce à la méthode de dépôt des nanotubes utilisant un laser qui permet d'obtenir des bons contacts entre les nanotubes et les électrodes.

Nous avons mis en évidence le rôle du désordre et du nombre de tubes sur la largeur de la transition supraconductrice ainsi que sur les valeurs de température et de champ critique qui varient de 0.1 K à 0.5 K et de 0.3T à 1.3T. Alors que dans un nanotube la répulsion coulombienne est tellement forte que la théorie des liquides de Fermi ne s'applique plus, il semble donc que dans une corde de nanotubes les interactions électroniques soient assez écrantées pour qu'une interaction attractive apparaisse grâce au couplage électron-phonon. Afin de tester cette idée, nous avons emprisonnée une corde dans des substances

---

<sup>1</sup>LEPES, CNRS, Grenoble

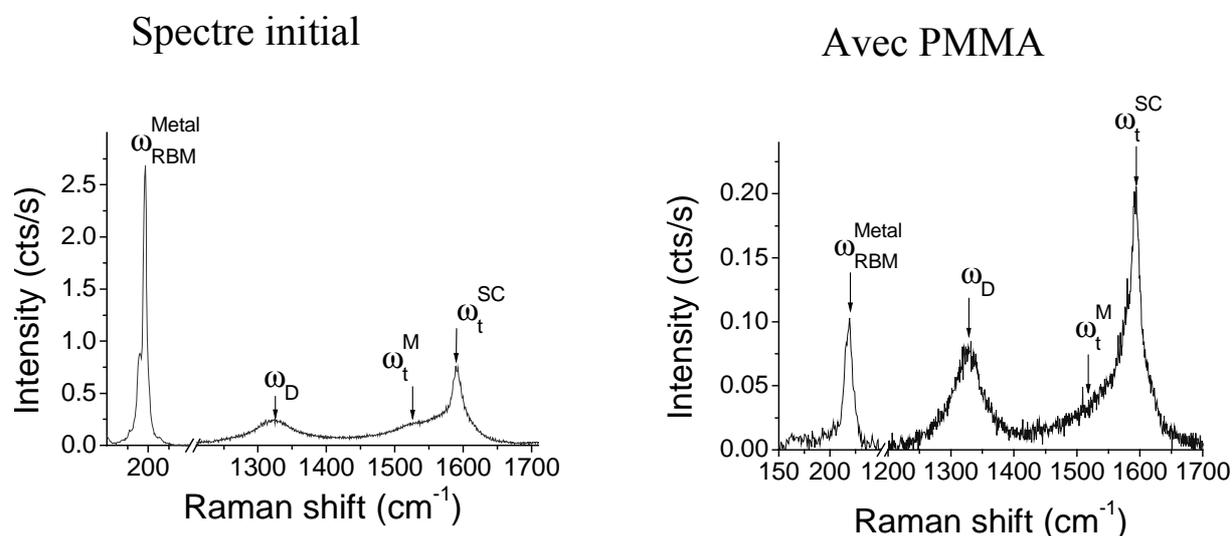


FIG. 11.23 – Evolution du spectre Raman lors du dépôt de PMMA.  $\omega_{RBM}$  correspond au mode de respiration et  $\omega_t$  est un mode tangentiel, dans le plan de la feuille de graphène. Le modes de respiration est beaucoup plus affecté par le PMMA.

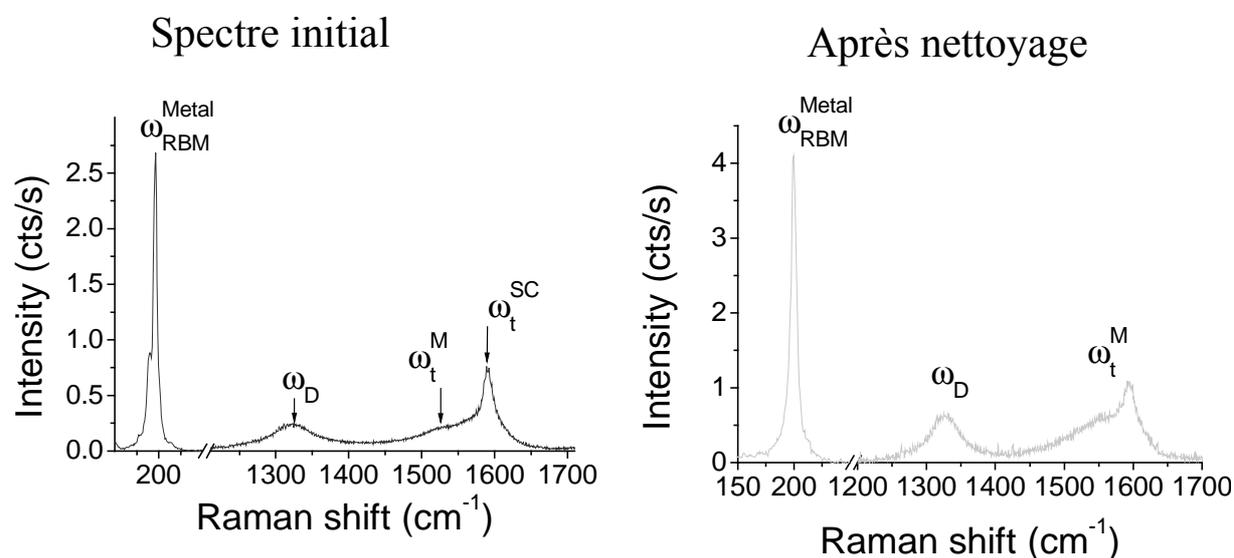


FIG. 11.24 – Spectre Raman après le nettoyage du PMMA (A. M. Bonnot) comparé au même spectre initial que précédemment. On retrouve le même poids relatif du mode de respiration et du mode tangentiel qu'avant le dépôt.

organiques ce qui a modifié la supraconductivité. Nous avons vérifié par spectroscopie Raman sur d'autres échantillons que ce traitement modifie aussi les phonons de basse énergie. Ceci semble montrer que le caractère suspendu de nos échantillons est important pour observer la supraconductivité. La question qui reste en suspens est bien sûr de savoir ce qu'il se passe pour le tube individuel. Il n'est normalement pas possible qu'un ordre supraconducteur se développe dans un liquide électronique unidimensionnel. De plus les observations expérimentales indiquent que la transition est de plus en plus faible quand le nombre de tubes dans la corde diminue. Cependant les fortes valeurs de supercourant observées par effet de proximité dans un tube individuel [89] restent toujours inexplicables. Pour aller plus loin dans l'investigation du rôle des phonons il conviendrait de mettre au point une méthode réversible de modification des phonons. Pour cela nous avons commencé une collaboration avec A.M. Bonnot pour des mesures de spectroscopie Raman.



# Chapitre 12

## Le magnétisme des nanotubes

Après avoir détecté la supraconductivité dans les cordes de nanotubes par des mesures de transport nous avons essayé de mesurer la signature magnétique de la supraconductivité : l'effet Meissner. Un supraconducteur soumis à un champ magnétique l'expulse en créant des courants d'écrantage de paires de Cooper. Ceci se traduit par une susceptibilité diamagnétique qui apparaît en dessous de la température critique et du champ critique. Cette expérience a été réalisée par *Tang et al.* pour des nanotubes individuels de 4Å de diamètre qui semblent présenter un effet Meissner partiel [98].

L'intérêt de la mesure d'aimantation est qu'elle ne nécessite pas de contacts électriques fortement invasifs qui peuvent masquer les propriétés intrinsèques des nanotubes. Nous avons vu qu'à cause d'un effet de proximité inverse la supraconductivité n'est pas toujours observable en transport. Le dépôt des tubes par laser peut aussi modifier le désordre d'un nanotube qui est un paramètre très important pour le transport électronique. D'autre part les mesures d'effet Meissner sont sensibles à des paramètres comme la longueur de pénétration du champ ( $\lambda$ ) et la densité d'électrons superfluides ( $n_s$ ), différents de ceux qui sont accessibles en transport. Comme l'expulsion du champ magnétique est due à des boucles de courant parcourues par les paires de Cooper, on s'attend à ce que la mesure de susceptibilité soit aussi sensible au couplage Josephson entre les tubes constituant les cordes.

Nous avons mesuré cet effet dans des fibres de nanotubes fabriquées par l'équipe de P. Poulin du CRPP<sup>1</sup>. Les mesures d'aimantation ont été faites dans le SQUID RF basse température de M. Ocio et F. Ladieu du SPEC<sup>2</sup>. Ces fibres permettent de mesurer l'aimantation d'un nombre macroscopique de nanotubes alignés. Elles devraient donc offrir la possibilité de mettre en évidence l'anisotropie des propriétés supraconductrices des nanotubes de carbone.

---

<sup>1</sup>Centre de Recherche Paul Pascal, Bordeaux

<sup>2</sup>Service de Physique de l'Etat Condensé, CEA Saclay

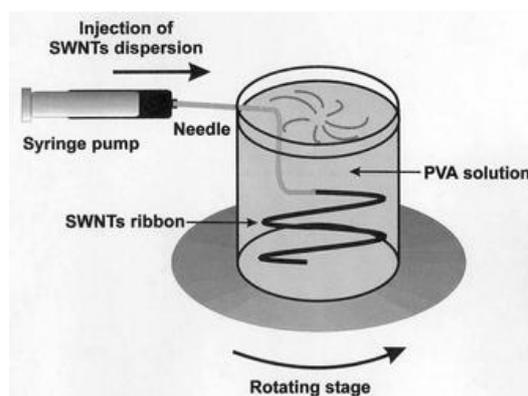


FIG. 12.1 – Injection de la solution de nanotubes dans le PVA en rotation pour former les fibres de nanotubes.

## 12.1 Les fibres de nanotubes

Les mesures d'aimantation ont été réalisées sur des fibres de cordes de nanotubes purifiées de type HiPCO (voir chapitre 8). Ce sont donc des nanotubes fabriqués par une autre méthode que ceux mesurés en transport (qui sont produits par la méthode d'arc électrique). Ces deux types de nanotubes possèdent des catalyseurs magnétiques différents (Fe pour les tubes HiPCO et Ni/Y pour la méthode par arc) et un désordre différent. Les cordes obtenues par la méthode HiPCO possèdent généralement un nombre de tubes inférieur à celles fabriquées par arc.

La purification des nanotubes s'effectue de la façon suivante : les tubes sont chauffés à  $300^{\circ}\text{C}$  sous oxygène afin d'oxyder les particules de fer puis ils sont passés à l'acide chlorhydrique et filtrés pour enlever l'oxyde de fer. Il reste alors environ 2% en masse de fer. Les tubes ainsi obtenus sont ensuite dispersés dans un tensio-actif, le SDS, mélangé à de l'eau. La solution est passée 30 minutes aux ultrasons pour séparer les cordes les unes des autres ce qui endommage aussi les tubes. Ainsi après ce traitement les tubes ont une longueur moyenne de 500 nm.

J'ai préparé les fibres dans le laboratoire CRPP à Bordeaux avec l'équipe de P. Poulin d'après la méthode qu'ils ont mise au point [99]. La dispersion de nanotubes est placée dans une seringue poussée par un ressort afin d'injecter à débit constant un mince filet de nanotubes dans un récipient en rotation contenant du PVA (Fig. 12.1). Le filet de nanotubes est emporté par le flux tournant de PVA et des rubans de nanotubes se forment ainsi dans le récipient de PVA. Nous avons ensuite rincé ces rubans à l'eau et les avons enroulés sur des cadres de saphir carrés de 7 mm de côté. L'alignement attendu des nanotubes dans la fibre est alors de  $\pm 20^{\circ}$ . Avant de procéder à la mesure d'aimantation de ces échantillons nous les avons recuits à  $320^{\circ}\text{C}$  à l'air pendant 3h afin d'enlever la gangue de PVA autour des nanotubes. Nous avons ainsi fabriqué deux cadres de saphir contenant chacun environ 5 mg de fibre de nanotubes.

Ces échantillons permettent de tester le rôle de l'orientation du champ sur la réponse

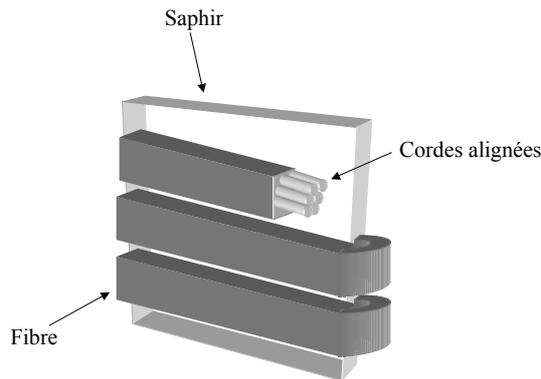


FIG. 12.2 – Schéma du cadre de saphir de  $7\text{ mm} \times 7\text{ mm}$  sur lequel est enroulée la fibre de quelques dizaines de microns de diamètre. Dans l'expérience le champ magnétique est dans le plan du cadre qui peut être tourné pour effectuer des mesures en champ parallèle ou perpendiculaire aux cordes de nanotubes.

magnétique des cordes de nanotubes. Dans l'expérience le champ magnétique est toujours dans le plan du cadre de saphir mais on peut placer les fibres perpendiculairement ou parallèlement au champ.

## 12.2 Le superparamagnétisme des nanoparticules de fer

Le signal principal que l'on mesure dans ces échantillons est la réponse magnétique de nanoparticules de fer servant de catalyseur lors de la croissance. Dans un cristal ferromagnétique l'énergie d'échange favorise l'alignement des spins voisins conduisant à un ordre magnétique. Mais une autre énergie, l'énergie d'anisotropie, contribue à aligner les domaines magnétiques dans des directions particulières, les directions de facile aimantation. Il existe plusieurs origines à cette anisotropie. Le potentiel cristallin allié au couplage spin-orbite donne lieu à l'anisotropie magnétocristalline qui domine dans les cristaux ferromagnétiques volumiques. Pour des particules nanométriques monodomaines, une énergie d'anisotropie de forme apparaît à cause du champ démagnétisant quand la forme de la particule diffère de la sphère. A ce terme s'ajoute aussi une énergie d'anisotropie de surface qui peut provenir du réseau cristallin ou de défauts en surface.

Dans le cas d'une ellipsoïde l'anisotropie est uniaxiale, il en résulte que l'énergie de la particule possède deux minima séparés par une barrière d'énergie d'anisotropie  $E_a$ . Ces deux minima définissent deux directions opposées de facile aimantation. Quand la température est supérieure ou de l'ordre de la barrière d'énergie le moment magnétique de la particule peut passer d'une position à l'autre par activation thermique avec un temps de relaxation :

$$\tau = \tau_0 e^{E_a/k_B T} \quad (12.1)$$

Le préfacteur  $\tau_0$  est de l'ordre de  $10^{-10}\text{s}$  ce qui est deux ordres de grandeur supérieur à la

relaxation d'un spin libre. Ce phénomène, analogue au paramagnétisme d'un spin libre, est appelé superparamagnétisme. On remarque qu'en fonction du temps typique de mesure de l'aimantation en dessous d'une certaine température les particules n'ont plus le temps de relaxer et l'aimantation paraît bloquée. On peut estimer cette température de blocage :

$$k_B T_{\text{Blocage}} = \frac{E_a}{\ln\left(\frac{\tau_{\text{obs}}}{\tau_0}\right)} \quad (12.2)$$

On voit que cette température dépend en fait très peu du temps d'acquisition qui est de quelques secondes pour le SQUID. Pour des particules de fer sphériques dont l'énergie d'anisotropie est de  $48 \text{ kJ/m}^3$ , on peut estimer qu'à 4K les particules de diamètre  $d > 2 \text{ nm}$  sont bloquées.

Au dessus de la température de blocage, il n'est pas possible de calculer de façon exacte la susceptibilité de telles particules dans le cas général où  $H$ ,  $M$  et l'axe de facile aimantation forment des angles quelconques. Cependant pour une assemblée de nanoparticules dont les axes sont orientés de façon aléatoire, il a été montré que la loi de Langevin pour les spins macroscopiques est une bonne approximation [100], ce qui donne :

$$M(H, T) = M(H = 0, T = 0) \left( \coth(x) - \frac{1}{x} \right) \quad (12.3)$$

avec  $x = m_0 \mu_0 H / k_B T$  où  $m_0$  est le moment magnétique porté par chaque atome.

## 12.3 Magnétisme dans l'état normal

Il est prévu théoriquement que les nanotubes présentent un magnétisme orbital dû à leur structure de bande particulière ([101, 102, 103]).

Si le champ est parallèle à l'axe du tube celui-ci crée un flux  $\Phi$  dans l'axe du nanotube. Le potentiel vecteur associé au champ, qui est dirigé suivant la circonférence du tube, se couple au vecteur d'onde électronique  $k_{\perp}$ . La phase accumulée le long de la circonférence devient donc  $k_{\perp} C_h + 2\pi\Phi/\Phi_0$ . Ceci se traduit par une modification des conditions aux limites des fonctions d'ondes électroniques sur la circonférence du tube qui revient à décaler les lignes de  $k_{\perp}$  autorisées dans la zone de Brillouin de  $\Phi/(R\Phi_0)$  (cf Fig. 12.3).

Pour les nanotubes métalliques les lignes qui passaient par le point K en l'absence de champ n'y passent plus et un gap s'ouvre dans la structure de bande. Comme la relation de dispersion près du point K est linéaire, le gap s'ouvre linéairement avec le champ appliqué faisant apparaître un terme de type Zeeman dans l'énergie électronique :

$$E = E_0 - g\mu_{orb}H \quad (12.4)$$

où  $\mu_{orb} = \frac{evFd}{4}$  est le moment créé par un électron décrivant une boucle de courant sur la circonférence du nanotube ( $d$  est le diamètre du tube). Cela se traduit par une susceptibilité paramagnétique de type Curie comme pour un spin libre où les projections du spin correspondent aux sens de parcours de la boucle de courant. Pour les nanotubes

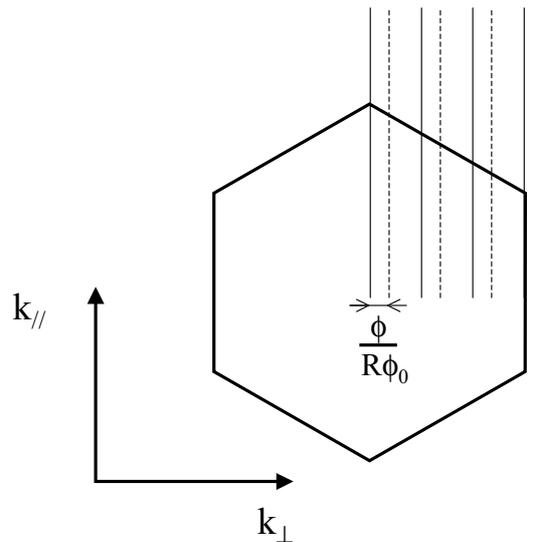


FIG. 12.3 – Modification des conditions de quantification du vecteur d'onde en champ parallèle pour un nanotube armchair. En trait plein les vecteurs d'ondes autorisés en champ nul. En pointillés les conditions quand le flux  $\phi$  est dans l'axe du nanotube.

semi-conducteurs au contraire le gap se referme et la susceptibilité est diamagnétique et constante en température [101].

En champ perpendiculaire par contre il n'y a plus de différence qualitative entre les tubes métalliques ou semiconducteurs, ils présentent tous un comportement diamagnétique constant en température. Ce comportement est relié à l'apparition de niveaux de Landau qui se développent partiellement dans le cas des nanotubes [41].

Le magnétisme des nanotubes dans l'état normal a été mesuré expérimentalement dans un ensemble macroscopique de nanotubes comparables à ceux que nous avons utilisés pour nos mesures d'aimantation [102, 103]. L'ordre de grandeur de la susceptibilité est de  $4 \cdot 10^{-6}$  emu/g à 1 Gauss. C'est-à-dire un signal de  $2 \cdot 10^{-8}$  emu pour nos échantillons de 5 mg. Récemment l'ouverture d'un gap dans un nanotube métallique en champ parallèle a été observée directement pour un tube individuel de 2 nm de diamètre [104]. Ceci a été réalisé par des mesures de transport dans lesquelles le gap de la structure de bande se traduit par une résistance thermiquement activée et par un dédoublement des pics de Coulomb à basse température comme pour l'effet Zeeman. Ces mesures, en accord avec les théories précédentes, donnent un moment magnétique de  $\mu_{orb} \approx 10\mu_B$ .

Calculons l'aimantation qui en résulterait dans un échantillon comme le nôtre où les tubes sont alignés. On peut estimer que pour un échantillon de 5 mg de nanotubes de 1.3 nm de diamètre et 500 nm de long, le nombre de nanotubes est de quelques  $10^{15}$ . A raison de  $5\mu_B$  par tube (nos nanotubes ont un diamètre 2 fois plus petit que ceux de la référence

[104]), on obtient une susceptibilité à 3K :

$$\chi = C/T = N_{tube} \frac{\mu_{orb}^2}{3k_B T} \approx 5.10^{-9} emu/Gauss \quad (12.5)$$

## 12.4 Modèle simple pour l'effet Meissner

### 12.4.1 Estimation de la susceptibilité

Pour estimer l'ordre de grandeur du signal supraconducteur attendu on peut modéliser simplement la réponse des nanotubes au champ magnétique dans l'hypothèse où la longueur de pénétration du champ ( $\lambda$ ) est très grande devant le nanotube. Afin d'éviter tout problème lié au champ démagnétisant nous nous plaçons en champ parallèle au tube. La quantité de mouvement des paires de Cooper se couple alors au potentiel vecteur selon la loi :  $p = eA$  où  $A = \frac{1}{2}B \times r$ . On considère le nanotube comme un cylindre creux de rayon  $R$  sur lequel les paires décrivent des boucles de courant pour écranter le champ, ce qui donne un moment magnétique  $M = IS$ . Il vient alors  $M = \frac{Ne^2}{4m} R^2 B = \frac{L}{4} \left(\frac{R}{\lambda}\right)^2 B$  avec  $\lambda^2 = m/ne^2$  où  $n$  est la densité d'électrons par unité de longueur et  $N$  le nombre total d'électrons [61].

Le moment est différent si les paires restent confinées sur chaque tube ou si elles se délocalisent sur la corde. Si les tubes sont indépendants l'aimantation d'une corde de  $N_t$  tubes sera  $N_t \times M_{1tube}$ . Calculons maintenant l'aimantation pour une corde dont les tubes sont couplés. Le nombre de tubes par corde est donné par le rapport des sections  $N_t = S_c/S_t$ . L'aimantation est alors

$$M_{corde} = \frac{e^2}{m} (N_t N_0) N_t R^2 = N_t^2 M_{1tube} \quad (12.6)$$

où  $N_0$  est le nombre d'électrons par tube. L'effet Meissner est donc amplifié par le nombre de tubes contenus dans une corde.

Pour 5 mg de nanotubes de 1 nm de diamètre formant des cordes de 10 nm de diamètre on s'attend, dans cette hypothèse où tous les électrons participent à la supraconductivité, à une aimantation de  $2.10^{-7} emu/G$  si les tubes sont indépendants et à un signal de  $2.10^{-5} emu$  si il existe un couplage Josephson entre tubes pour 5 mg de nanotubes.

L'aimantation des nanotubes dans leur état normal est donc beaucoup plus faible que l'estimation que l'on peut faire du signal supraconducteur.

### 12.4.2 Anisotropie de l'effet Meissner

On s'attend aussi à détecter une anisotropie dans l'effet Meissner de tels échantillons. On peut tout d'abord penser à un effet de champ démagnétisant. En effet pour un matériau possédant une susceptibilité  $\chi$  et un facteur de champ démagnétisant  $N_x$  dans la direction  $x$  dû à sa forme, l'aimantation s'écrit :

$$M_x = \frac{\chi}{1 + N_x \chi} H_{app} \quad (12.7)$$

On voit bien que cet effet est négligeable dans nos échantillons où la partie supraconductrice de la susceptibilité magnétique est très faible. De plus la forme carrée du saphir sur lequel sont enroulés les nanotubes et le fait que le champ soit toujours appliqué dans le plan de ce carré limite encore plus cet effet puisqu'on a la même forme globale dans les deux directions.

Une autre anisotropie peut venir de l'asymétrie des boucles de courant expulsant le champ magnétique. Pour évaluer cet effet, on peut faire une analogie avec les courants de Foucault qui empêchent la pénétration des ondes électromagnétiques dans un métal. En effet l'équation décrivant la pénétration de ces ondes et celle décrivant la pénétration du champ magnétique ont la même forme si l'on identifie l'épaisseur de peau ( $\delta$ ) et la longueur de pénétration du champ  $\lambda$ .

$$\Delta A + k^2 A = 0 \quad (12.8)$$

avec  $A$  le potentiel vecteur et  $k = (1 + i)/\delta$ . On obtient finalement une susceptibilité 2 fois plus forte dans la géométrie champ perpendiculaire [61].

Une troisième anisotropie peut venir de l'anisotropie des termes de saut dans une corde. En effet, comme dans les cuprates [105] ou dans les supraconducteurs organiques [106], l'anisotropie entre saut parallèle ( $t_{//}$ ) et saut transverse ( $t_{\perp}$ ) doit se traduire par une anisotropie sur  $\lambda$ , on parle alors de  $\lambda_{//}$  et  $\lambda_{\perp}$ . Les boucles de courant expulsant le champ sont plus efficaces en champ perpendiculaire car elles se font principalement par des sauts électroniques le long des tubes ( $t_{//}$ ) alors qu'en champ parallèle les boucles se font uniquement par des sauts électroniques inter-tube ( $t_{\perp}$ ). On s'attend donc encore une fois à une susceptibilité plus grande en champ perpendiculaire. Cet effet doit aussi se traduire par une anisotropie dans le champ critique  $H_{c1}$  qui est donné par  $H_{c1} = \phi_0/\lambda^2$ .

## 12.5 Mesure de l'aimantation des fibres de nanotubes

Nous présentons maintenant les mesures d'aimantation réalisées sur les fibres. Ces mesures ont été faites pour un champ magnétique orienté perpendiculairement ou parallèlement aux nanotubes de la fibre.

### 12.5.1 Le cycle d'hystérésis

On voit sur la figure 12.4 que l'aimantation mesurée en champ parallèle ou perpendiculaire entre -400 G et +400G est dominée par le signal paramagnétique du catalyseur (Fe) qui est responsable d'un cycle d'hystérésis. Dans les deux cas, le cycle est symétrique et le champ coercitif est de 65 Gauss. Le décalage du cycle en champ parallèle est dû au fait qu'un champ de l'ordre du Tesla a été appliqué avant de faire cette expérience<sup>3</sup> ce qui a pu orienter certaines particules de façon irréversible à cette température. Nous avons vérifié que ce cycle ne dépend pas de la température en soustrayant deux courbes d'aimantation

<sup>3</sup>Ceci est dû à l'alimentation en courant de la bobine qui a oscillé de façon incontrôlée.

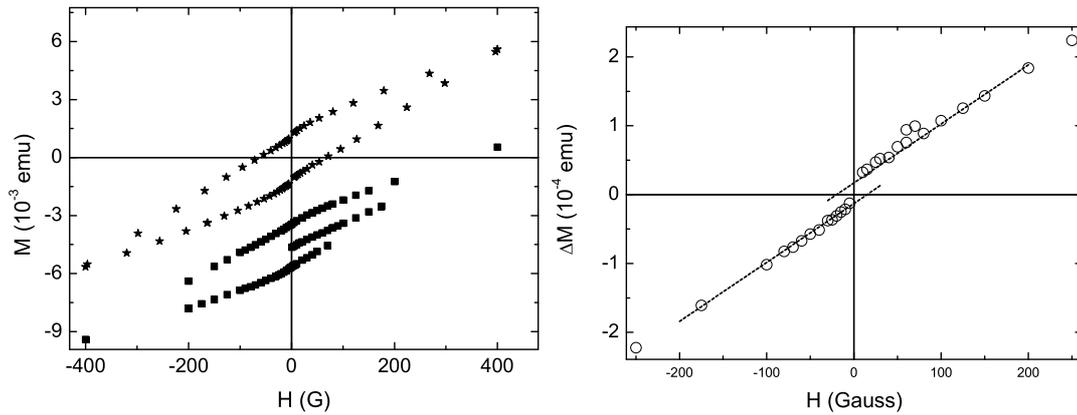


FIG. 12.4 – A gauche, aimantation totale en fonction du champ magnétique à 3K en champ perpendiculaire(★) et en champ parallèle(□)(L'aimantation résiduelle à champ nulle est due à l'application d'un champ de quelques tesla avant cette mesure, voir texte). A droite, résultat de la soustraction des courbes d'hystérésis mesurées à 3K et 0.9 K en champ parallèle. Il n'y a plus d'hystérésis détectable. Les droites en pointillés sont des ajustements linéaires entre 10G et 100G en champ positif et négatif. Dans les deux cas on obtient un champ résiduel de + ou  $-18G$ .

à 3 K et à 0.9 K. On obtient alors un signal d'aimantation paramagnétique sans hystérésis (Fig. 12.4).

Comme il peut exister différentes tailles de particules depuis le fer atomique jusqu'à de gros agrégats, le catalyseur apporte différents types de contributions à l'aimantation. Nous attribuons cet hystérésis à des agrégats de fer de quelques nanomètres dont l'aimantation est bloquée à 3 K. La partie non hystérétique du signal est attribuée à des nanoparticules de fer plus petites qui ne sont pas bloquées à ces températures. Leur aimantation, comme on l'a vu, peut être approchée par un loi de Curie qui est linéaire en champ magnétique. Cependant on voit que la courbe d'aimantation de ces particules présente une non-linéarité à très bas champ (Fig. 12.4). Dans la suite nous avons étudié la partie de l'aimantation qui n'est pas hystérétique. Pour cela, nous avons donc uniquement regardé la partie du signal qui dépend de la température à laquelle contribuent les nanotubes et les petites particules de catalyseur.

### 12.5.2 Aimantation non hystérétique

La partie de l'aimantation mesurée à 10 G dépendante de la température est paramagnétique. A haute température les données sont bien décrites par une loi de Curie entre 3 K et 0.7 K avec une déviation à basse température (figure 12.5).

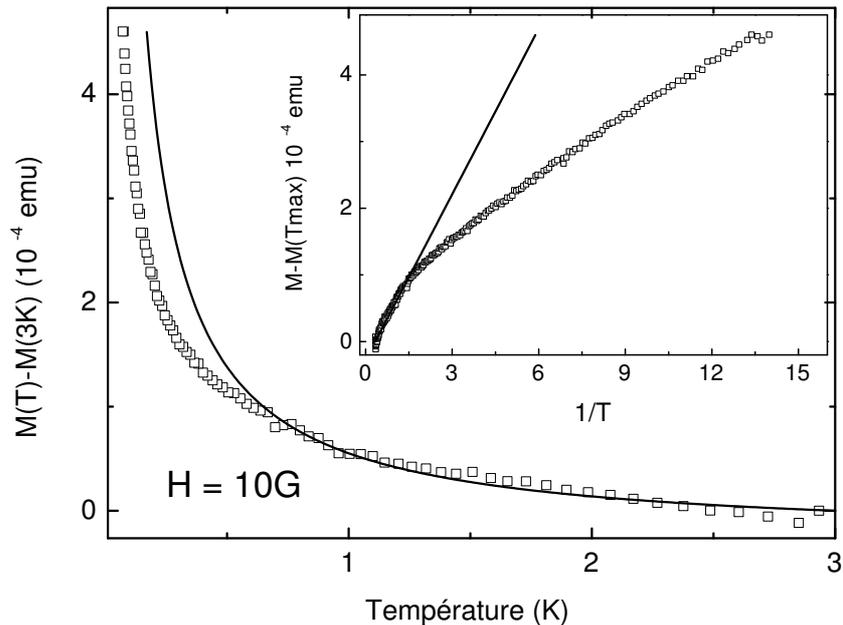


FIG. 12.5 – Aimantation en fonction de la température à 10 G en champ perpendiculaire. La courbe en trait plein est l'ajustement par une loi de Curie. En encart la même courbe portée en fonction de  $1/T$ . Dans cette représentation la loi de Curie est linéaire.

### Comparaison des données à différents champs

Nous avons réalisé cette mesure pour différents champs magnétiques entre 10 G et 400 G. Afin de comparer ces données prises à différents champs magnétiques, il faut comparer la susceptibilité. Cependant une simple division de l'aimantation par le champ appliqué ne suffit pas. Nous avons dû ajouter un champ résiduel de 18 G pour que les susceptibilités se superposent pour les différents champs dans la partie où la loi de Curie est vérifiée. Pour les mesures en champ négatif nous avons dû invoquer un champ résiduel de  $-18$  G.

### Ajustement par une loi de Curie

De façon équivalent, on peut ajuster l'aimantation par une loi de Curie de type  $M(H) = \alpha(H)/T$  à haute température pour chaque champ ce qui donne une constante de Curie qui n'est pas proportionnelle au champ appliqué mais qui varie comme  $\alpha = C(H + H_{res})$  avec le même champ résiduel de  $\pm 18$  G. La loi de Curie ainsi déterminée par un ajustement correspond à celle extraite de la soustraction des courbes d'aimantation qui ne suppose pas de loi a priori. On peut relier le champ résiduel invoqué dans la loi de Curie à la non-linéarité de la courbe d'aimantation à faible champ. En effet un ajustement linéaire de cette courbe entre 10 G et 100 G (resp. -10 G et -100 G) donne une loi pour l'aimantation  $M(H) \propto C(H + H_{res})$  avec à nouveau le même champ résiduel de 18 G (resp. -18 G) (Fig.

12.4).

On renormalise ensuite l'aimantation par cette constante, les courbes obtenues sont alors toutes identiques à haute température tant que la loi de Curie est une bonne approximation (Fig. 12.6). On observe alors que la déviation par rapport à la loi de Curie diminue quand le champ augmente entre 10 G et 100 G. En revanche, à plus fort champ la saturation augmente avec le champ appliqué. Nous obtenons exactement le même comportement en champ perpendiculaire et en champ parallèle.

### Interprétation

Comme l'aimantation mesurée à haute température est identique en champ parallèle et en champ perpendiculaire et beaucoup plus importante que ce qui a déjà été mesuré pour des nanotubes (paragraphe aimantation dans l'état normal), le signal paramagnétique vient donc des impuretés de fer qui ne sont pas bloquées à si basse température.

La déviation en dessous de 0.5 K (Fig. 12.5) peut être due au blocage des impuretés superparamagnétiques de fer ou bien à un terme diamagnétique qui s'ajouterait à la loi de Curie. C'est l'évolution en champ magnétique de cette saturation qui nous permet de faire la distinction entre ces deux phénomènes. En effet si la saturation est due au superparamagnétisme elle doit être de plus en plus prononcée quand augmente le champ. Par contre le signal diamagnétique de l'effet Meissner doit disparaître quand le champ augmente faisant ainsi disparaître la saturation.

Ainsi le comportement bas champ de l'aimantation correspond à l'effet Meissner des cordes de nanotubes alors qu'à plus fort champ l'augmentation de la saturation s'explique par la saturation de l'aimantation des nanoparticules de fer.

Afin de quantifier la partie supraconductrice de la susceptibilité, nous avons soustrait la courbe de susceptibilité déterminée à 90G aux courbes de susceptibilité mesurées à plus bas champ afin de ne garder que la partie diamagnétique du signal. Ceci est une sous-estimation du signal diamagnétique car on ne prend pas en compte le fait que la susceptibilité est plus saturée à 90G qu'à 10G. On voit alors (Fig 12.7) que la supraconductivité apparaît autour de 500 mK ce qui correspond à la température critique mesurée dans les expériences de transport mais sur des nanotubes de fabrication différente.

La partie supraconductrice de la susceptibilité est toujours décroissante avec le champ et n'est plus détectable à partir de 90 G à cause du superparamagnétisme du fer. Ceci peut signifier que le champ critique  $H_{c1}$  est inférieur à 10G. Cette valeur est très inférieure au champ critique mesuré en transport correspondant au champ critique  $H_{c2}$ . Ce faible  $H_{c1}$  est comparable à ce qui est mesuré dans les supraconducteurs organiques 1D où il correspond à la destruction du couplage Josephson entre les chaînes unidimensionnelles. Ainsi ces mesures d'aimantation semblent confirmer la prédiction de Gonzalez [58] qui est reprise dans [60] selon laquelle la supraconductivité se stabilise dans la corde de nanotubes grâce à un couplage Josephson entre les nanotubes.

De plus la valeur du signal mesuré qui est de  $-2.5 \times 10^{-6}$  emu/G est de l'ordre de grandeur de ce que l'on a estimé dans les cas où les boucles de supercourant sont délocalisées sur toute la corde.

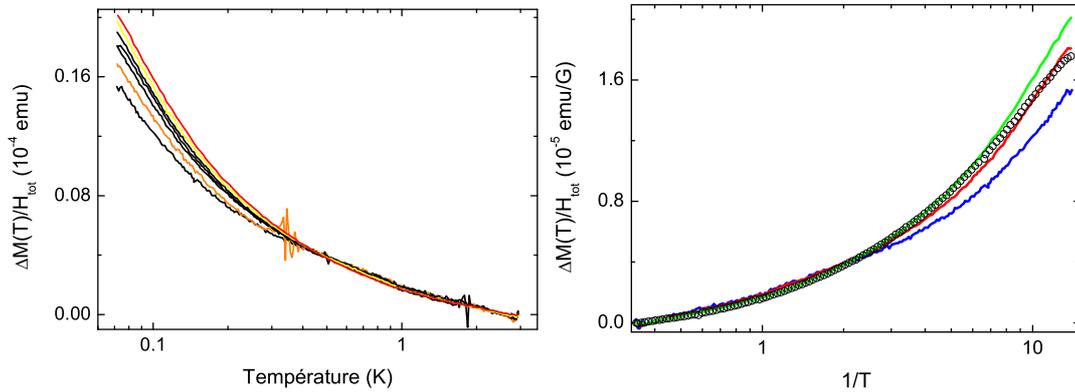


FIG. 12.6 – A gauche, susceptibilité de l'ensemble (nanoparticules + nanotubes) à différents champs magnétiques. Le champ  $H_{tot}$  est la somme du champ appliqué et du champ résiduel de 18 G. Les champs appliqués sont de bas en haut 10 G, 15 G, 25 G, 30 G, 40 G, 50 G et 90 G. A droite la même susceptibilité à plus fort champ. Les courbes en trait pleins ont été prises (de bas en haut) à 10 G, 30 G, 100G. La courbe en  $\circ$  correspond à  $H = 250$ G.

Dans ces expériences nous n'avons pas décelé d'anisotropie sur le signal supraconducteur. Cependant il est difficile de comparer des données entre deux refroidissements successifs de l'échantillon. Le signal mesuré dans une expérience de squid est une différence d'aimantation entre deux positions de l'échantillon dans la bobine du gradiomètre. Toutefois il est difficile de s'assurer que l'échantillon ne s'est pas déplacé sur le porte-échantillon entre deux expériences car il doit être retourné à la main. Si tel est le cas, l'échantillon est alors situé à une hauteur différente dans la bobine du gradiomètre et le signal mesuré est légèrement modifié. Cette faible anisotropie peut aussi être reliée au fait que toutes les mesures sont faites au dessus de  $H_{c1}$ . La susceptibilité est donc fortement diminuée ainsi que l'anisotropie.

### Susceptibilité à fort champ magnétique

Comme l'effet Meissner n'est plus détectable au delà de 100G, on peut analyser l'échantillon comme une assemblée de nanoparticules de fer dont l'aimantation est bien approximée par une loi de Langevin (eq. 12.3).

Ainsi à fort champ magnétique (400G), on a pu ajuster la courbe expérimentale (Fig 12.8) avec une fonction de Langevin correspondant à un moment magnétique d'environ  $10\mu_B$  ce qui correspond au moment de 2 atomes de fer. Connaissant ce moment on peut estimer le nombre d'atomes de fer qui participent à la loi de Curie. L'ajustement linéaire de la loi de Curie en champ magnétique nous donne une constante de Curie  $\mathcal{C} = 1.3 \times 10^{-9}$  SI. Le nombre de moments contribuant à la loi de Curie est  $N = 3k_B\mathcal{C}/\mu_0 m_0^2$  avec  $m_0 = 10\mu_B$ . Chaque moment correspondant environ à deux atomes de fer on en déduit que  $10^{17}$  atomes contribuent.

Ceci est cohérent avec le nombre d'impuretés présentes dans l'échantillon. En effet 2%

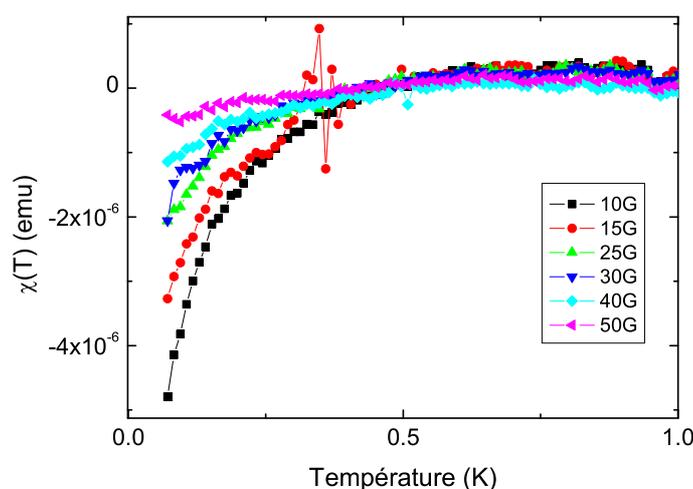


FIG. 12.7 – Susceptibilité des nanotubes en fonction de la température à différents champs magnétiques. La susceptibilité à 90 G a été soustraite.

de fer correspond à  $10^{-4}$  g c'est à dire  $10^{18}$  atomes de fer.

### D'où vient le champ résiduel ?

Il reste à expliquer maintenant le fort champ résiduel ( $\pm 18$  G) que nous avons observé. Nous avons vérifié que ce champ n'existe pas en l'absence de fibres de nanotubes. Celui-ci est donc a priori créé par les particules de catalyseur. Comme ce champ change de signe autour de 0G pour passer de  $-18$ G à  $+18$ G, il faut que ce champ soit créé par des particules dont l'aimantation se retourne avec un cycle d'hystérésis très fin ( $< 5$  G). Ceci correspond au comportement d'un matériau ferromagnétique doux (très faible champ coercitif). Le fer et certains de ses composés peuvent présenter ce comportement si les particules sont assez volumineuses pour que les effets de surface ne dominent pas l'énergie d'anisotropie.

### 12.5.3 Mesure à deux échantillons

Après avoir caractérisé l'aimantation d'un tel échantillon nous envisageons de mesurer directement la différence de susceptibilité de deux échantillons tournés de  $90^\circ$  l'un par rapport à l'autre en même temps. Pour cela nous plaçons un échantillon dans chaque bobine du gradiomètre du SQUID. Comme ces bobines sont enroulées en sens opposés pour que l'application d'un champ ne crée aucun flux au niveau du SQUID, le courant circulant dans ces bobines est proportionnel à la différence d'aimantation entre les deux échantillons. Nous avons vérifié lors de cette expérience que la loi de Curie des impuretés est isotrope. Si la concentration en impuretés ainsi que la masse de nanotubes sont assez proches sur les deux échantillons, il est alors possible de trouver une position dans le gradiomètre telle que la loi de Curie soit très bien compensée sur la partie haute température. Dans ces conditions

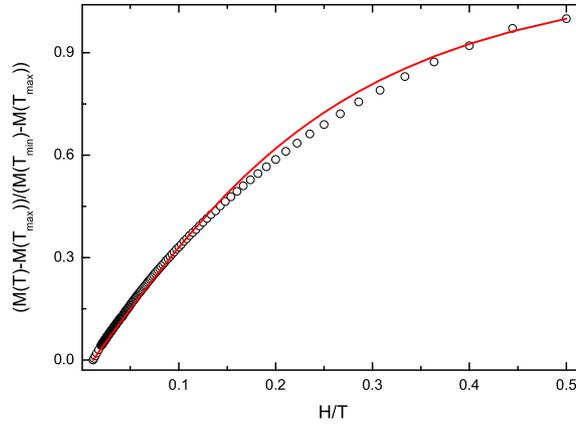


FIG. 12.8 – Aimantation mesurée à 400 G ( $\circ$ ) en fonction de  $H/T$ . La courbe en trait plein est un ajustement avec une fonction de Langevin.

si la susceptibilité supraconductrice est anisotrope elle devrait alors être beaucoup plus importante (relativement à la loi de Curie observée) dans cette expérience que dans les mesures avec un seul échantillon.

En conclusion, nous avons mesuré un effet Meissner partiel dans un ensemble macroscopique de cordes de nanotubes de carbone. L'amplitude de ce signal correspond à une phase supraconductrice ordonnée sur toute la corde de nanotubes. De plus il semble que le champ critique  $H_{c1}$  du système soit inférieur à 10G ce qui est compatible avec la présence de courants Josephson inter-tube dans la corde qui permettent d'écranter partiellement le champ magnétique. En revanche il n'a pas été possible de mettre en évidence une anisotropie de l'effet Meissner qui devrait a priori exister puisque les boucles de courant ne sont pas équivalentes en champ parallèle ou perpendiculaire.

Il est aussi important de confirmer ces observations par des mesures de transport dans des nanotubes de type HiPCO qui sont utilisés dans ces fibres. En effet comme la fabrication de ces nanotubes est différente de celle des nanotubes fabriqués par arc électrique (voir paragraphe fabrication) le désordre et le catalyseur magnétique sont différents. On a vu dans les expériences de transport que ces paramètres peuvent jouer un rôle important dans l'observation de la supraconductivité et il n'est donc pas justifié a priori de comparer les températures et les champs critiques observés dans les deux types d'échantillons par deux mesures différentes.



# Chapitre 13

## Conclusions

Dans cette thèse nous avons mis en évidence des propriétés électroniques de basse énergie et la cohérence de phase dans des conducteurs quasi-unidimensionnels contenant très peu de canaux de conduction, les cordes de nanotubes et les fils de gaz bidimensionnel d'électrons.

### 13.1 Détermination de $L_\varphi$ dans les réseaux de fils quantiques

Dans les réseaux de fils réalisés en gaz 2D d'électrons, nous avons mis au point une nouvelle méthode permettant de déterminer la longueur de cohérence de phase du système sans aucun paramètre ajustable. Cette méthode repose sur la théorie de la localisation faible, en particulier les oscillations Altshuler-Aronov-Spivak, dont les effets ne dépendent de la température que par la longueur de cohérence de phase. Nous avons montré que si l'on décompose ces oscillations en harmoniques, le rapport de deux harmoniques ne dépend que de  $L_\varphi$  et du pas du réseau. Nous avons alors obtenu une longueur de cohérence qui varie en puissance  $-1/3$  avec la température jusqu'à 25 mK sans saturation. Ceci suggère qu'à l'instar des métaux il n'existe pas de mécanisme de saturation intrinsèque du temps de cohérence de phase électronique jusqu'aux plus basses températures explorées.

De façon surprenante, la forme des courbes de magnéto-conductance et la longueur de cohérence que nous avons extraite est quantitativement très bien décrite par une théorie qui est valable dans les métaux contenant un grand nombre de canaux de conduction alors que nous sommes dans une limite proche d'un seul canal effectif de conduction. Par ailleurs il a été très récemment prédit que pour les trajectoires électroniques contribuant aux oscillations AAS, la relaxation de la phase du Cooperon devrait être affectée par la géométrie du réseau. Ceci conduit à une décroissance non-exponentielle des harmoniques avec la longueur de cohérence de phase :  $e^{-(L/L_\varphi)^{3/2}}$  qui correspond à un comportement en température  $e^{-n\sqrt{T}}$ . Nos mesures ne sont pas en accord avec cette prédiction, ce qui reflète peut être justement la faible dimensionnalité de nos fils. Afin de conclure, il faudrait vérifier expérimentalement cette dernière prédiction sur des réseaux métalliques qui sont

dans la limite très diffusives et loin de la transition métal-isolant ( $L_\varphi = L_T$ ) même aux plus basses températures.

## 13.2 Transport dans les cordes de nanotubes de carbone

### 13.2.1 Transport dans l'état normal

Les mesures de transport sur les cordes de nanotubes de carbone suspendues ont permis d'observer de la supraconductivité dans une limite de faible nombre de canaux (quarante) jamais atteinte auparavant. Ceci a été possible grâce à la méthode de dépôt des nanotubes utilisant un laser qui permet d'obtenir des bons contacts entre les nanotubes et les électrodes. Dans l'état normal nous avons montré que la qualité des contacts ainsi que le désordre des cordes de nanotubes conduisait à des comportements très différents. Pour cela nous avons développé un modèle simple pour rendre compte de l'effet sur le transport du couplage inter-tubes dans une corde. Afin d'aller plus loin dans cette étude expérimentalement il serait intéressant de mesurer la résistance d'une corde placée dans un TEM et de la modifier de façon contrôlée grâce au faisceau d'électrons du microscope. On pourrait ensuite la placer dans un cryostat à dilution pour voir l'évolution des propriétés de transport en fonction de la température.

### 13.2.2 Supraconductivité des cordes de nanotubes

Nous avons mis en évidence le rôle du désordre et du nombre de tubes sur la largeur de la transition supraconductrice ainsi que sur les valeurs de température et de champ critique qui varient de 0.1 K à 0.5 K et de 0.3T à 1.3T. Alors que dans un nanotube la répulsion coulombienne est tellement forte que la théorie des liquides de Fermi ne s'applique plus, il semble que dans une corde de nanotubes les interactions électroniques soient assez écrantées pour qu'une interaction attractive apparaisse grâce au couplage électron-phonon.

Afin de tester cette idée, nous avons modifié les modes de vibration d'une corde en déposant une substance organique (benzène di-thiol) ce qui a modifié la supraconductivité. Nous avons vérifié par spectroscopie Raman sur d'autres échantillons que ce traitement modifie bien les phonons de basse énergie. Ceci semble montrer que le caractère suspendu de nos échantillons est important pour observer la supraconductivité.

La question qui reste en suspens est bien sûr de savoir ce qu'il se passe pour le tube individuel. Il n'est normalement pas possible qu'un ordre supraconducteur se développe dans un liquide électronique unidimensionnel. De plus nos observations expérimentales indiquent que la transition est de plus en plus faible quand le nombre de tubes dans la corde diminue. Cependant les fortes valeurs de supercourant observées par effet de proximité dans un tube individuel [89] restent toujours inexplicables.

Pour aller plus loin dans l'investigation des phonons il faut mettre au point une méthode de modification du spectre des phonons réversible. Pour cela nous avons commencé une collaboration avec A.M. Bonnot pour des mesures de spectroscopie Raman. Nous avons

aussi réalisé des mesures de transport sur un tube multiparoï connecté de la même manière mais nous n'avons pas décelé de signes de supraconductivité.

### 13.2.3 Effet Meissner des cordes de nanotubes

Enfin nous avons mesuré la signature de cette supraconductivité sur la susceptibilité magnétique. Nous avons détecté, en plus d'une forte susceptibilité paramagnétique due aux particules de catalyseur de fer, l'apparition d'un signal diamagnétique en dessous de 0.5K qui disparaît au delà de 100 G. Ceci correspond bien à l'effet Meissner qui traduit l'expulsion du champ magnétique par les paires de Cooper. Cependant nous n'avons pas détecté d'anisotropie sur cet effet Meissner ce qui semble surprenant dans un matériau aussi anisotrope. Il faudrait réussir à mesurer cet effet à très bas champ magnétique ( $< 10$  G) où l'effet Meissner est plus important ce qui pose des problèmes de sensibilité expérimentale. Pour cela nous avons mis au point une méthode de compensation utilisant deux échantillons orientés différemment qui devrait permettre de réaliser cette expérience.



## Annexe A

# Annulation du flux lors des réflexions sur les bords d'un fil quantique.

Dans cette annexe nous montrons qu'une trajectoire fermée qui n'effectue que des collisions sur les bords d'un fil englobe un flux nul.

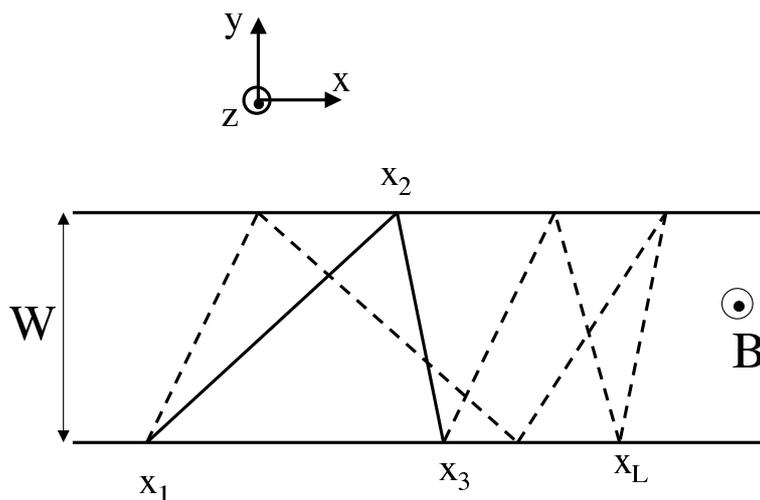


FIG. A.1 – Trajectoire électronique se réfléchissant uniquement sur les bords du fil.

Pour un champ magnétique perpendiculaire au fil (suivant  $z$ ) on peut choisir un potentiel vecteur  $\vec{A} = (0, Bx)$  suivant les directions  $(x, y)$ . Considérons la trajectoire rectiligne allant de 1 à 2 et calculons la circulation de  $\vec{A}$  le long de la ligne :

$$\phi_{1,2} = \int \vec{A} \cdot d\vec{l} = \int A_y(x) dy \quad (\text{A.1})$$

Comme la trajectoire de l'électron est :

$$y = W \frac{x - x_1}{x_2 - x_1} \quad (\text{A.2})$$

on a alors :

$$dy = \frac{W}{x_2 - x_1} dx \quad (\text{A.3})$$

et l'intégrale devient :

$$\phi_{1,2} = \frac{BW}{x_2 - x_1} \int_{x_1}^{x_2} x dx = BW \frac{x_2 + x_1}{2} \quad (\text{A.4})$$

Lors de la trajectoire de  $x_2$  vers  $x_3$ , l'orientation du potentiel vecteur est opposé au déplacement  $dy$  et on obtient :

$$\phi_{2,3} = -BW \frac{x_3 + x_2}{2} \quad (\text{A.5})$$

Le flux accumulé par ces deux trajectoires est donc :

$$\phi_{1,3} = BW \frac{x_1 - x_3}{2} \quad (\text{A.6})$$

On voit donc bien que le flux englobé ne dépend que de la distance entre le point de départ et le point d'arrivée sur le même bord du fil. Si l'électron part de  $x_1$  et revient en  $x_1$  le flux englobé est nul.

## Annexe B

# Elargissement des harmoniques des oscillations AAS

Nous allons vérifier que la pénétration du champ magnétique dans les fils du réseau ne change pas l'aire des harmoniques des oscillations AAS. Pour cela il faut partir de la formule (3.7). Ce développement donne les premiers termes de la décomposition de la conductance en série de Fourier ; ce qu'on peut écrire comme :

$$\langle \sigma(L_\varphi, \phi) \rangle = \sum_{n=0}^{\infty} f_n(L_\varphi) \cos(4n\pi\phi/\phi_0)$$

Si  $L_\varphi$  ne dépend pas du champ, le spectre de Fourier  $\int d\phi e^{-ik\phi} \langle \sigma(L_\varphi, \phi) \rangle$  est une série de pics de Dirac d'amplitude  $2\pi f_n(L_\varphi)$  en  $k_n = 4n\pi/\phi_0$ . On peut identifier chaque terme du développement (3.7) aux amplitudes  $f_n$ . On a vu que la pénétration du champ dans les fils se traduit par un  $L_\varphi$  effectif (2.12) qui va donner aux pics une largeur  $L_\varphi W/a^2$ . L'aire du pic correspondant à une harmonique  $f_n$  s'écrit :

$$\begin{aligned} \int f_n(k) &= \int dk \int d\phi e^{-ik\phi} f_n(L_\varphi(\phi)) \\ &= 2\pi \int d\phi \delta(\phi) f_n(L_\varphi(\phi)) \\ &= 2\pi f_n(L_\varphi(0)) \end{aligned} \tag{B.1}$$

Ainsi l'aire de l'harmonique en présence de champ magnétique est exactement égale à l'amplitude du pic de Dirac associé à la même harmonique quand on ne prend pas en compte l'effet de pénétration du champ.

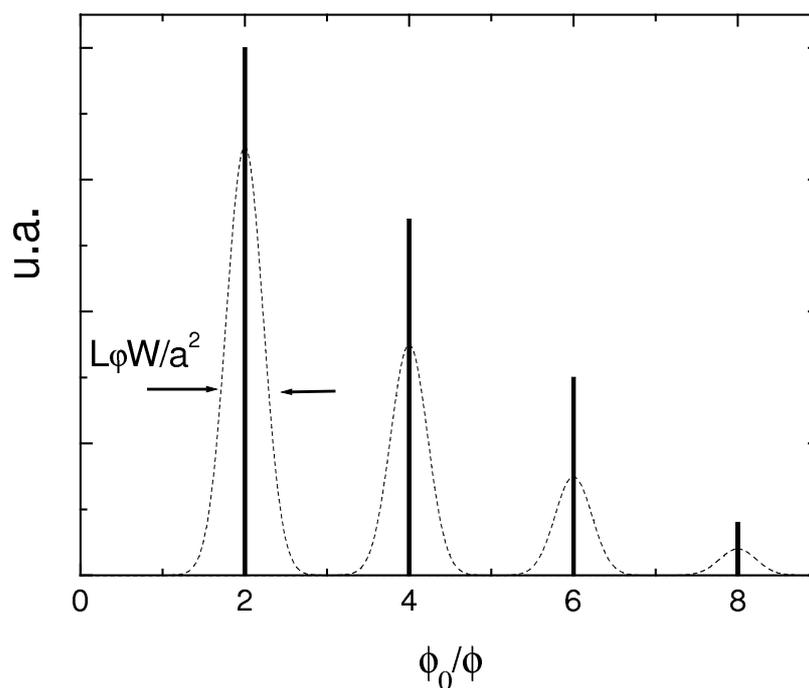


FIG. B.1 – En traits pleins : transformée de Fourier (TF) des oscillations AAS pour des fils de largeur nulle. En pointillés : les harmoniques de la TF sont élargies à cause de la pénétration du champ dans les fils. L'aire des pics est conservée.

## Annexe C

### Câblage du réfrigérateur à dilution

Toutes les mesures de transport réalisées sur les cordes de nanotubes ont été réalisées dans un cryostat à dilution dont nous avons dû adapter le porte-échantillon et les câbles coaxiaux reliant le porte-échantillon au haut du cryostat.

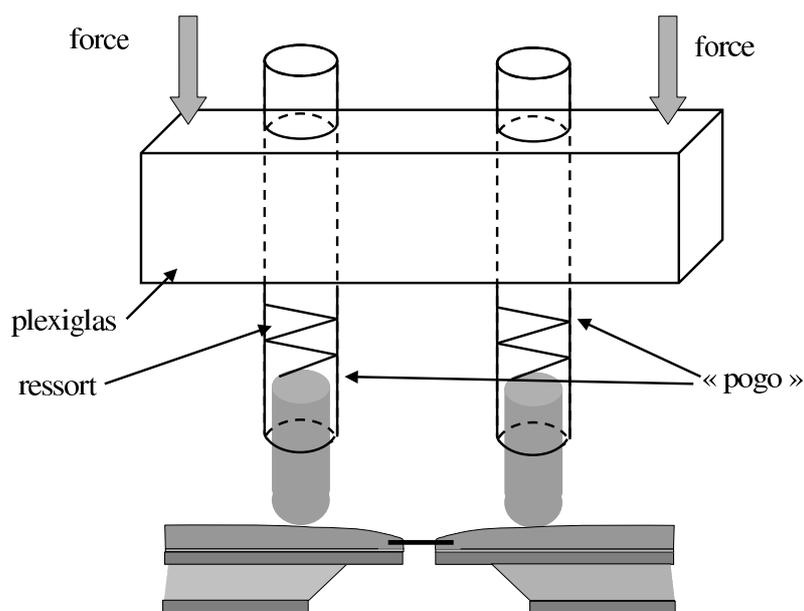


FIG. C.1 – schéma des pogo servant à la fois à contacter électriquement et fixer mécaniquement la membrane sur laquelle le nanotube est déposé. Les pogo font 0.5 mm de diamètre et sont collés au plexiglas. La force appliquée sur le plexiglas est par un écrou vissé sur une tige filetée de 1.6 mm qui traverse aussi le plexiglas et est fixée au porte échantillon.

En effet il n'est pas facile une fois que la corde de nanotube est soudée en travers de la fente de se connecter électriquement à l'échantillon et de le maintenir mécaniquement sur le porte-échantillon fixé au point le plus froid du cryostat. Pour réaliser cela nous avons utilisé des "pogo" qui sont des bâtonnets de diamètre 0.5 mm dorés à l'or montés sur

ressort et qui permettent à la fois d'avoir de bons contacts électriques avec la membrane et de maintenir celle-ci plaquée au porte-échantillon (Fig. C.1).

Chaque pogo est relié à un câble coaxial dont la gaine est constituée d'un capillaire de cupronickel de diamètre extérieur 1 mm, diamètre intérieur de 0.6 mm et d'une longueur d'environ 1.5 m. L'âme est constituée d'un fil de manganin gainé capton de 0.2 mm. Ces câbles permettent de filtrer le rayonnement électromagnétique haute fréquence grâce au filtre RC créé par la résistance de l'âme et la capacité entre l'âme et la gaine. La résistance est de  $50 \Omega/\text{m}$  et la capacité totale est de 500 pF. Nous avons mesuré une atténuation de 40 dB/m à 2.7 GHz ce qui correspond aux câbles commerciaux Thermocoax Philips. Ceci permet de limiter le bruit thermique créé par le rayonnement électromagnétique qui vient chauffer les électrons de l'échantillon et limite la température minimum que l'on peut atteindre. Nous avons aussi laminé nos câbles afin de rapprocher l'âme et la gaine pour augmenter la capacité des câbles et améliorer le filtrage mais aussi pour que l'âme soit mieux thermalisée. En effet les câbles sont thermalisés par la gaine en plusieurs endroits du cryostat mais il est important que l'âme aussi se thermalise afin de ne pas injecter des électrons de trop haute température dans l'échantillon froid.

# Bibliographie

- [1] S. Datta, *Electronic transport in mesoscopic systems*, University Press, Cambridge, 1995.
- [2] R. Landauer, IBM J. Res. Dev **1**, 223 (1957).
- [3] I. Safi and H. J. Schultz, Transport in an Inhomogeneous Interacting One-Dimensional System, Phys. Rev. B **52**(24), R17040 (1995).
- [4] M. P. Fisher and L. I. Glazman, Transport in One Dimensional Luttinger Liquid, cond-mat/9610037 .
- [5] S. Hikami, A. Larkin, and Y. Nagaoka, Prog. Theor. Phys. **63**, 707 (1980).
- [6] F. Pierre, A. B. Gougam, A. Anthore, H. Pothier, D. Esteve, and N. O. Birge, Phys. Rev. B **68**, 085413 (2003).
- [7] P. A. Lee and A. D. Stone, Universal Conductance Fluctuations in Metals, Phys. Rev. Lett. **55**(15), 1622 (1985).
- [8] B. L. Al'tshuler, Fluctuations in the extrinsic conductivity of disordered conductors, JETP Lett. **41**(12), 648 (1985).
- [9] B. L. Altshuler and A. G. Aronov, Magnetoresistance of Thin Films and of Wires in a Longitudinal Magnetic Field, JETP Lett. **33**(10), 499 (1981).
- [10] C. Beenakker and H. V. Houten, Boundary Scattering and Weak Localization of Electrons in a Magnetic Field, Phys. Rev. B. **38**, 3232 (1988).
- [11] B. L. Altshuler, A. G. Aronov, and B. Z. Spivak, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.[JETP Lett **3**, 94 (1981)] **33**, 101 (1981).
- [12] D. Y. Sharvin and Yu. V. Sharvin, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. [JETP Lett. **34**, 272 (1981)] **34**, 285 (1981).
- [13] A. D. Stone, Phys. Rev. Lett. **54**, 2692 (1985).
- [14] S. Washburn, C. P. Umbach, R. B. Laibowitz, and R. A. Webb, Phys. Rev. B **32**, 4789 (1985).
- [15] B. L. Altshuler, A. G. Aronov, and D. E. Khmel'nitsky, J. Phys. C : Solid St. Phys. **15**, 7367 (1982).
- [16] E. Akkermans and G. Montambaux, *Physique Mésoscopique Des Électrons et Des Photons*, CNRS-interedition edition, 2004.

- [17] E. Abrahams, P. Anderson, D. Licciardello, and T. Ramakrishnan, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 673 (1979).
- [18] P. Mohanty, E. Jariwala, and R. Webb, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3366 (1997).
- [19] J. J. Lin and J. P. Bird, Recent Experimental Studies of Electron Dephasing in Metal and Semiconductor Mesoscopic Structures, *J. Phys. : Condens. Matter* **14**, 501 (2002).
- [20] B. Reulet, H. Bouchiat, and D. Mailly, *Europhys. Lett.* **31**(5-6), 305–310 (1995).
- [21] A. G. Huibers, J. A. Folk, S. R. Patel, C. M. Marcus, C. I. Duruöz, and J. S. Harris, Jr, Low-Temperature Saturation of the Dephasing Time and Effects of Microwave Radiation on Open Quantum Dots, *Phys. Rev. Lett* **83**, 5090 (1999).
- [22] B. Douçot and R. Rammal, Quantum Oscillations in Normal-Metal Network, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1148 (1985).
- [23] B. Douçot and R. Rammal, Interference Effect and Magneto-Resistance Oscillations in Normal Metal Networks, *J. Physique* **47**, 973–999 (1986).
- [24] M. Pascaud and G. Montambaux, Persistent Currents on Networks, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4512 (1999).
- [25] J. P. Roth, Spectre Du Laplacien sur un Graphe, *C.R. Acad. Sc. Paris* **296**, 793 (1983).
- [26] E. Akkermans, A. Comtet, J. Desbois, G. Montambaux, and C. Texier, On the Spectral Determinant of Quantum Graphs, *Ann. Phys.* **284**, 10–51 (2000).
- [27] M. Ferrier, L. Angers, S. Guéron, H. Bouchiat, C. Texier, G. Montambaux, and D. Mailly, Direct Measurement of the Phase Coherence Length in a GaAs/GaAlAs Square Network, *Cond-mat/0402534* (2004).
- [28] B. Pannetier, J. Chaussy, R. Rammal, and P. Gandit, Magnetic Flux Quantization in the Weak-Localization Regime of a Nonsuperconducting Metal, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 718 (1984).
- [29] G. J. Dolan, J. C. Licini, and D. J. Bishop, Quantum Interference Effects in Lithium Ring Arrays, *Phys. Rev. Lett* **56**, 1493 (1986).
- [30] T. J. Thornton, M. Pepper, H. Ahmed, D. Andrews, and G. J. Davies, *Phys. Rev. Lett* **56**, 1198 (1986).
- [31] Yu. B. Khavin, M. E. Gershenson, and A. L. Bogdanov, *Phys. Rev. Lett* **81**, 1066 (1998).
- [32] C. Kurdak, A. M. Chang, A. Chin, and T. Y. Chang, *Phys. Rev. B* **46**, 6846 (1992).
- [33] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solis State Physics*.
- [34] H. V. Houten, C. W. J. Beenakker, B. Van Wees, and J. E. Mooij, *Surf. Sci.* **196**, 144 (1988).
- [35] T. Ludwig and A. D. Mirlin, Mesoscopic Aharonov-Bohm Oscillations in Metallic Rings, *cond-mat/0312577* (2003).

- [36] B. L. Altshuler, D. E. Khmel'nitzkii, A. Larkin, and P. A. Lee, Magnetoresistance and Hall Effect in a Disordered Two-Dimensional Electron Gas, *Phys. Rev. B* **22**, 5142 (1980).
- [37] S. Iijima, *Nature* **56**, 154 (1991).
- [38] C. L. Kane and E. J. Mele, *Phys. Rev. Lett* **78**, 1932 (1997).
- [39] C. Zhou, J. Kong, and H. Dai, *Phys. Rev. Lett* **84**, 5604 (2000).
- [40] M. Ouyang, J. L. Huang, C. L. Cheung, and C. M. Lieber, *Science* **292**, 702 (2001).
- [41] M. Dresselhaus, G. Dresselhaus, and P. Eklund, *Science of Fullerenes and Carbon Nanotubes*, Academic Press, San Diego, CA, 1996.
- [42] J. W. Mintmire, B. I. Dunlap, and C. T. White, Are Fullerene Tubules Metallic?, *Phys. Rev. Lett.* **68**(5), 631 (1992).
- [43] H. Grabert, Transport in Single Channel Quantum Wires, cond-mat/0107175, to appear in Exotic state in quantum nanostructure ed. by S. Sarkar, Kluwer, Dordrecht.
- [44] C. Beenakker, *Reviews of Modern Physics* **69**(3), 731 (1997).
- [45] M. Bockrath, D. Cobden, J. Liu, A. Rinzler, R. Smalley, L. Balents, and P. McEuen, *Nature* **397**, 598 (1999).
- [46] Z. Yao, H. Postma, L. Balents, and C. Dekker, *Nature* **402**, 273 (1999).
- [47] A. Bachtold, M. de Jonge, K. Grove-Rasmussen, P. McEuen, M. Buitelaar, and C. Schonenberger, Suppression of Tunneling in Multiwall Carbon Nanotubes, *Phys. Rev. Lett* **87**(16), 166801 (2001).
- [48] H. Ishii *et al*, Direct Observation of Tomonaga Luttinger Liquid State in Carbon Nanotubes at Low Temperature, *Nature* **426**, 540 (2003).
- [49] H. Rauf, T. Pichler, M. Knupfer, J. Fink, and H. Kataura, Transition from a Tomonaga-Luttinger Liquid to a Fermi Liquid in Potassium Intercalated Bundles of Single Wall Carbon Nanotubes, cond-mat/0404535.
- [50] M. Ferrier, A. de Martino, A. Kasumov, S. Guéron, M. Kociak, R. Egger, and H. Bouchiat, Superconductivity in Ropes of Carbon Nanotubes, *Solid. Stat. comm.* (2004).
- [51] H. J. Schultz, *Phys. Rev. B* **53**, R2959 (1996).
- [52] R. Egger and A. O. Gogolin, Effective Low-Energy Theory for Correlated Carbon Nanotubes., *Phys. Rev. Lett.* **79**(25), 5082 (1997).
- [53] E. Perfetto, G. Stefanucci, and M. Cini,  $W=0$  Pairing in (N,N) Carbon Nanotubes Away from Half Filling., *Phys. Rev. B* **66**, 165434 (2002).
- [54] A. Sédéki, Thèse de l'université de Sherbrooke.
- [55] A. D. Martino and R. Egger, Acoustic Phonon Exchange, Attractive Interactions, and the Wentzel-Bardeen Singularity in Single Wall Nanotubes., *Phys. Rev. B* **67**, 235418 (2003).
- [56] D. Loss and T. Martin, *Phys. Rev. B* **50**, 12160 (1994).

- [57] A. Sédéki, L. G. Caron, and C. Bourbonnais, Superconductivity in Armchair Carbon Nanotubes., Phys. Rev. B **65**, 140515 (2002).
- [58] J. Gonzalez, Microscopic Model of Superconductivity in Carbon Nanotubes., Phys. Rev. Lett. **88**(7), 76403 (2002).
- [59] J. Gonzalez, Superconductivity in Carbon Nanotube Ropes, Phys. Rev. B **67**, 014528 (2003).
- [60] A. D. Martino and R. Egger, Superconductivity in Carbon Nanotube Ropes : Ginzburg-Landau Approach and the Role of Quantum Phase Slips., cond-mat/0308162 (2003).
- [61] L. Landau and E. M. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media*.
- [62] J. S. Langer and V. Ambegaokar, Intrinsic Resistive Transition in Narrow Superconducting Channels, Phys. Rev **164**, 498 (1967).
- [63] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity*, McGraw-Hill, Singapore, 2nd edition, 1996.
- [64] N. Giordano, Dissipation in a One-Dimensional Superconductor : Evidence for Macroscopique Quantum Tunneling, Phys. Rev. B **41**, 6350 (1990).
- [65] C. Journet, W. Maser, P. Bernier, A. Loiseau, M. L. de la Chapelle, S. Lefrant, P. Deniard, R. Lee, and J. Fisher, Nature **388**, 756 (1997).
- [66] L. Vaccarini, C. Goze, R. Aznar, V. Micholet, C. Journet, P. Bernier, K. Metenier, F. Beguin, J. Gavillet, and A. Loiseau, Purification Des Nanotubes de Carbone Monofeuillets, C. R. Acad. Sci. Paris **327**, 925 (1999).
- [67] M. J. Bronikowski, P. A. Willis, D. T. Colbert, K. A. Smith, and R. E. Smalley, Gas-Phase Production of Carbon Single Walled Nanotubes from Carbon Monoxide Via the HiPco Process : A Parametric Study, J. Vac. Sci. Technol. A **19**(4) (2001).
- [68] M. E. Gershenson, Yu. B. Khavin, A. G. Mikhalechuk, H. M. Bozler, and A. L. Bogdanov, Phys. Rev. Lett. **79**, 725 (1997).
- [69] T. W. Odom, J.-L. Huang, C. L. Cheung, and C. M. Lieber, Magnetic Cluster on Single-Walled Carbon Nanotubes : The Kondo Effect in a One Dimensional Host, Science **290**, 1549 (2000).
- [70] G. Ingold and Yu. V. Nazarov, Coulomb Blockade Phenomena in Nanostructure, in *Single Charge Tunneling*, edited by H. Grabert and M. Devoret, Plenum, New York, 1992.
- [71] A. Levy-Yeyati, A. Martin-Rodero, D. Esteve, and C. Urbina, Direct Link Between Coulomb Blockade and Shot Noise in a Quantum-Coherent Structure, Phys. Rev. Lett **87**(4), 046802 (2001).
- [72] F. Dolcini, H. Grabert, I. Safi, and B. Trauzettel, Oscillatory Non-Linear Conductance of an Interacting Quantum Wire with an Impurity, cond-mat/0311168 (2003).
- [73] A. Maarouf, C. Kane, and E. Mele, Phys. Rev. B **61**(16), 11156 (2000).

- [74] P. Delaney, H. J. Choi, J. Ihm, S. G. Louie, and M. L. Cohen, Broken Symmetry and Pseudogaps in Ropes of Carbon Nanotubes, *Nature* **391**, 466 (1998).
- [75] C. T. White and T. N. Todorov, Carbon Nanotubes as Long Ballistic Conductors, *Nature* **393**, 240 (1998).
- [76] V. N. Prigodin and K. B. Efetov, Localization Transition in a Random Network of Metallic Wires : A Model for Highly Conducting Polymers, *Phys. Rev. Lett* **70**, 2932 (1993).
- [77] I. Zambetaki, S. N. Evangelou, and E. N. Economou, The Anderson Transition in a Model of Coupled Random Polymer Chains, *J. Phys. : Condens. Matter* **8**, 605 (1996).
- [78] N. Dupuis, Metal-Insulator Transition in Highly Conducting Oriented Polymers, *Phys. Rev. B* **56**, 3086 (1997).
- [79] J. T. Edwards and D. J. Thouless, Numerical Studies of Localization in Disordered Systems, *J. Phys. C : Solid State Phys* **5**, 807 (1972).
- [80] M. Kociak, A. Kasumov, S. Guéron, B. Reulet, I. I. Khodos, Y. B. Gorbatov, V. T. Volkov, L. Vaccarini, and H. Bouchiat, *Phys. Rev. Lett.* **86**(11), 2416 (2001).
- [81] A. Kasumov, M. Kociak, M. Ferrier, R. Deblock, S. Guéron, B. Reulet, I. Khodos, O. Stéphan, and H. Bouchiat, Quantum Transport Through Carbon Nanotubes : Proximity-Induced and Intrinsic Superconductivity, *Phys. Rev. B* **68**, 214521 (2003).
- [82] W. Belzig, C. Bruder, and G. Schön, *Phys. rev. B* **54**, 9443 (1996).
- [83] G. R. Boogaard, A. H. Verbruggen, W. Belzig, and T. M. Klapwijk, Resistance of Superconducting Nanowires Connected to Normal Metal Leads, cond-mat/0401364 (2004).
- [84] N. D. Mermin and H. Wagner, Absence of Ferromagnetism or Antiferromagnetism in One- or Two- Dimensional Isotropic Heisenberg Models., *Phys. Rev. Lett* **17**, 1133 (1966).
- [85] R. Smith, B. Handy, and V. Ambegaokar, *Phys. Rev. B* **63**, 094513 (2001).
- [86] N. Giordano, *Phys. Rev. B* **43**, 160–174 (1991).
- [87] J. Romijn, T. M. Klapwijk, M. J. Renne, and J. E. Mooij, *Phys. Rev. B* **26**, 3648 (1982).
- [88] J. Bardeen, *Rev. Mod. Phys.* **34**, 667 (1962).
- [89] A. Kasumov, R. Deblock, M. Kociak, B. Reulet, H. Bouchiat, I. Khodos, Y. Gorbatov, V. Volkov, C. Journet, and M. Burghard, *Science* **284**, 1508 (1999).
- [90] N. Akaaboune, *Diagramme de Phase (H,T) Du Supraconducteur Organique (TMTSF)<sub>2</sub>ClO<sub>4</sub> Faiblement Désordonné*, PhD thesis, Université Paris XI, 2002.
- [91] J. Johnson, *Phys. Rev.* **32**, 97 (1928).
- [92] H. Nyquist, *Phys. Rev.* **32**, 110 (1928).

- [93] Ya. M. Blanter and M. Büttiker, Shot Noise in Mesoscopic Conductors, *Phys. Rep* **336** (2000).
- [94] W. Schottky, *Ann. Phys.* **57**, 541 (1918).
- [95] C. W. J. Beenakker and M. Büttiker, Suppression of shot noise in metallic diffusive conductors, *Phys. Rev. B* **46**(3), 1889 (1992).
- [96] P. E. Roche, M. Kociak, S. Guéron, A. Kasumov, B. Reulet, and H. Bouchiat, Very Low Shot Noise in Carbon Nanotubes, *Eur. Phys. J. B* **28**, 217 (2002).
- [97] B. Trauzettel, R. Egger, and H. Grabert, Coulomb Drag Shot Noise in Coupled Luttinger Liquids, *Phys. Rev. Lett* **88**(11), 116401 (2002).
- [98] Z. Tang, L. Zhang, N. Wang, X. Zhang, G. Wen, G. Li, J. Wang, C. Chan, and P. Sheng, Superconductivity in 4 Angstrom Single-Walled Carbon Nanotubes, *Science* **292**, 2462–2465 (2001).
- [99] B. Vigolo, A. Pénicaud, C. Coulon, C. Sauder, R. Paillet, C. Journet, P. Bernier, and P. Poulin, Macroscopic Fibers and Ribbons of Oriented Carbon Nanotubes., *Science* **290**, 1331 (2000).
- [100] C. P. Bean and J. D. Livingston, *J. Appl. Phys.* **30**, 120S (1959).
- [101] J. P. Lu, Novel Magnetic Properties of Carbon Nanotubes, *Phys. Rev. Lett.* **74**(7), 1123–1126 (1995).
- [102] A. P. Ramirez, R. C. Haddon, O. Zhou, R. Fleming, J. Zhang, S. M. McClure, and R. Smalley, Magnetic Susceptibility of Molecular Carbon : Nanotubes and Fullerite, *Science* **265**, 84–86 (1994).
- [103] X. K. Wang, R. Chang, A. Patashinski, and J. Ketterson, Magnetic Susceptibility of Buckytubes, *J. Mater. Res.* **9**(6), 1578–1582 (1994).
- [104] E. D. Minot, Y. Yaish, V. Sazonova, and P. L. McEuen, Measuring Electron Orbital Magnetic Moments in Carbon Nanotubes, *cond-mat/0402425* (2004).
- [105] L. Guerrin, *Mesures Des Excitations de Basses Énergies Dans Des Poudres Supraconductrices  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  Orientées et Calibrées En Taille.*, PhD thesis, Université Paris XI, 1996.
- [106] D. Mailly, M. Ribault, and K. Bechgaard, Anisotropy of the Meissner Effect and the Diamagnetic Shielding in  $(TMTSF)_2ClO_4$ , *Journal de physique* , 1037 (1983).