

Première partie

Théorie

Chapitre 1

Transport mésoscopique

Nous allons dans ce chapitre aborder quelques notions de transport mésoscopique essentielles à la compréhension des résultats présentés dans la suite de cette thèse. La physique mésoscopique traite des systèmes de petites tailles, habituellement de la dizaine ou de la centaine de nanomètres (parfois moins). Le transport mésoscopique s'intéresse plus particulièrement à la façon dont les électrons vont pouvoir circuler mais aussi interagir dans de telles structures pour donner naissance à des phénomènes quantiques tels que l'effet Kondo ou le blocage de Coulomb.

Il s'agit d'un domaine bien trop riche pour être traité dans un chapitre introductif et je concentrerai donc mon propos sur trois phénomènes déjà largement étudiés. Deux de ces phénomènes ont un point commun historique en cela qu'ils ont été découverts et expliqués bien avant la naissance de la physique mésoscopique telle que nous la connaissons aujourd'hui.

Le blocage de Coulomb par exemple que nous aborderons dans la première partie a été pour la première fois mis en évidence en 1951 par C.J. Gorter. Il avait constaté qu'en mesurant la conductance d'un matériau métallique granuleux à basse température, celle-ci diminuait de façon inattendue. Il expliquait cette baisse de conductance par la répulsion coulombienne au sein des grains de métaux composant son matériaux. Nous montrerons comment ce phénomène joue un rôle central dans le transport à travers des structures mésoscopiques.

L'effet Kondo que nous introduirons en fin de chapitre a lui aussi été mis en évidence dans la première partie du siècle dernier (dans les années 1930) par des mesures sur des échantillons de métaux massif contenant des impuretés magnétiques. Les mesures de conductances à basse température avait montré qu'après avoir atteint un maximum, la conductance diminuait à nouveau. L'explication du phénomène n'a pas été immédiate et

ce n'est qu'en 1964 que Jung Kondo a pu fournir une explication satisfaisante. Selon lui, les impuretés magnétiques agissent, à basse température, comme des centres diffuseurs très actifs diminuant d'autant la conductance de l'échantillon. Je donnerai plus de détails sur ce phénomène dans la suite du chapitre. En particulier, je détaillerai comment l'effet Kondo se manifeste dans les systèmes mésoscopiques.

Nous aborderons également un autre phénomène, le cotunneling, qui permet aux électrons de s'affranchir pendant un temps très court du régime de blocage de Coulomb. Nous verrons que ceci n'est possible que de part les lois de la physique quantique. Pour cela, nous distinguerons deux situations, l'une dans laquelle aucun apport en énergie n'est nécessaire au phénomène - le cotunneling élastique - et une seconde pour laquelle il faudra fournir une certaine énergie au système - le cotunneling inélastique.

Afin d'étudier ces différents phénomènes, nous commencerons par définir les paramètres de notre système. En particulier, nous détaillerons chacun des éléments qui le composent ainsi que l'influence des paramètres qui le caractérisent. Nous poursuivrons ensuite par la définition et l'illustration du concept de potentiel chimique dans le cadre du transport mésoscopique. Nous verrons comment cette notion permet de façon simple et intuitive de comprendre quelles sont les conditions pour qu'un courant traverse le système.

Quand cela sera possible, nous préciserons pour chacun de ces phénomènes les conditions nécessaires à leur observation ainsi que les variables expérimentales dont ils dépendent.

1.1 Les paramètres du système

Dans le cadre de nos expériences, nous avons utilisé ce que l'on appelle un transistor à électron unique ou Single Electron Transistor (SET). En général un tel système est composé d'un point quantique (ou îlot) connecté à trois terminaux que l'on nommera source, drain et grille (en référence aux transistors à effet de champ). L'îlot est couplé à ces trois terminaux par trois capacitances : C_g pour la grille, C_d pour le drain et C_s pour la source. De plus, des barrières tunnel entre le point quantique, la source et le drain permettent le passage d'électron (sous certaines conditions) et sont caractérisées par les paramètres γ_s (source/îlot) et γ_d (drain/îlot). La source et le drain sont considérés comme des matériaux métalliques massifs et dont les électrons obéissent à la statistique de Fermi-Dirac. Enfin, nous attribuons à l'îlot une taille caractéristique L .

Ce système, les paramètres qui le caractérisent ainsi qu'un schéma électrique équivalent sont représentés dans la Fig. 1.1. Nous allons maintenant détailler chacun de ces éléments.

1.1.1 Les capacitances du système

Comme expliqué précédemment, trois capacitances couplent l'îlot central aux trois terminaux. L'application d'une tension sur l'un ou plusieurs de ces terminaux va donc modifier l'énergie du point quantique. Cette modification s'exprime comme suit :

$$E = \frac{(C_s V_s + C_d V_d + C_g V_g)^2}{2(C_g + C_s + C_d)} = \frac{(C_s V_s + C_d V_d + C_g V_g)^2}{2C_\Sigma}$$

Ces capacitances vont également induire un "coût" énergétique à l'ajout d'un électron dans l'îlot central. Cet ajout est associé à l'énergie E_c appelée énergie de charge dont la valeur est donnée par :

$$\frac{E_c}{2} = \frac{e^2}{2(C_s + C_d + C_g)} = \frac{e^2}{2C_\Sigma}$$

Cette énergie est à l'origine de la diminution de la conductance observée par C.J. Gorter en 1951. Lorsque la température est suffisamment élevée, elle fournit l'énergie nécessaire aux électrons pour passer d'un grain à l'autre. A basse température en revanche, les électrons n'ont plus la possibilité de se mouvoir de la sorte et la conductance mesurée diminue. On voit ici une première condition nécessaire à l'apparition du phénomène de blocage de Coulomb : $E_c \gg k_b T$.

En tenant compte de ces deux contributions, l'énergie d'un îlot contenant N électrons et soumis à trois tensions V_g , V_d et V_s est donnée par :

$$U(N) = \frac{1}{2C_\Sigma} (-|e|N + C_s V_s + C_d V_d + C_g V_g)^2 \quad (1.1)$$

On inclut parfois dans cette expression une charge eN_0 pour tenir compte de l'environnement électrostatique. Nous verrons en abordant la notion de potentiel chimique que seule la différence d'énergie entre les différents états de charge importe et que donc l'offset introduit par ce dernier terme peut être ignoré.

Remarque : dans les expériences de Microscopie à Effet Tunnel ou Scanning Tunneling Microscopie (STM), seules les tensions de source et de drain peuvent être modifiées. Ce désavantage est compensé par la possibilité de modifier les paramètres de couplage γ (que l'on détaillera dans la suite) en modulant la distance séparant la pointe de l'échantillon.

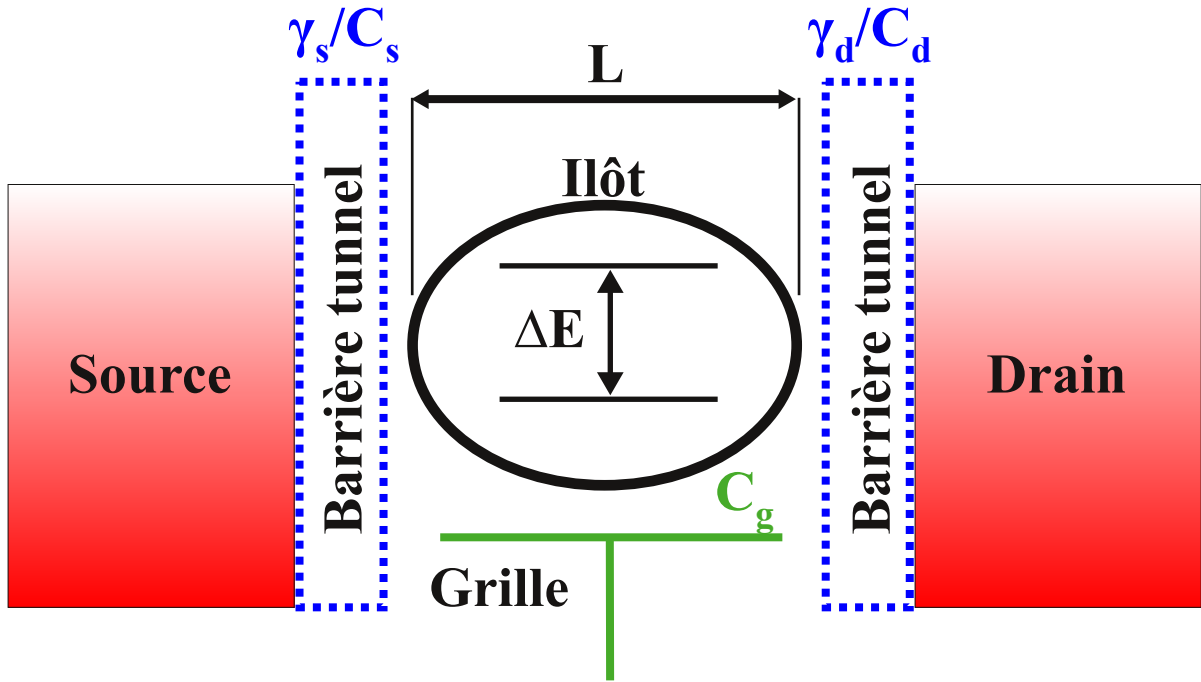


FIGURE 1.1 – Paramètres caractérisant un système à trois terminaux

1.1.2 L'îlot

Les points quantiques que l'on utilise le plus fréquemment dans les expériences mésoscopiques sont souvent (mais pas exclusivement) basés sur l'un des systèmes suivants :

- **un gaz d'électron bidimensionnel** : généralement une hétérostructure de semi-conducteur est utilisée pour obtenir un gaz d'électron bidimensionnel proche de la surface. Par des technique de lithographie, des électrodes sont ajoutées sur l'échantillon. En appliquant une tension sur ces grilles, le gaz d'électron peut être manipulé pour former un ou plusieurs points quantiques connectés à plusieurs électrodes.
- **un grain métallique** : une grain de metal (souvent noble) de quelques nanomètres joue le rôle de point quantique. Ces grains peuvent être notamment obtenue en utilisant la technique d'électromigration que l'on verra dans la suite.
- **une molécule** : c'est ce type de point quantique que nous utiliserons. Les molécule pouvant être utilisées pour jouer ce rôle sont trop nombreuses pour toutes être citée mais on donner quelques célèbres : les nanotubes, les fullerène, les aimants moléculaires etc..

Dans le cas d'électrons bidimensionnel ou celui d'un grain métallique, du fait de la taille des échantillons ($\sim 100nm$ pour les premiers, $\sim 10nm$ pour les seconds), on observe une quantification des différents états du système. Le spectre énergétique de l'îlot peut s'exprimer en fonction de trois nombres quantiques n_x , n_y et n_z à travers la relation suivante :

$$E_n = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m} \left(\frac{n_x^2}{L_x^2} + \frac{n_y^2}{L_y^2} + \frac{n_z^2}{L_z^2} \right)$$

Il s'agit bien entendu ici d'une expression très simplifiée car elle suppose une forme de potentiel de confinement difficile (pour ne pas dire impossible) à obtenir en pratique (variation abrupte et hauteur de potentiel infini). Elle a le mérite en revanche de faire apparaître une deuxième condition nécessaire à l'observation de ce que l'on appelle habituellement le blocage de Coulomb quantique (par opposition au blocage de Coulomb classique où seul la quantification de la charge joue un rôle). En effet, pour résoudre le spectre de l'îlot, l'énergie associée à l'agitation thermique doit être négligeable devant l'énergie séparant deux niveaux à savoir :

$$\frac{\hbar^2}{2mL^2} \gg k_b T$$

Si cette condition est facilement atteinte lorsque l'on utilise des gaz d'électrons bidimensionnels, elle est en revanche plus difficile à satisfaire dans le cas d'un point quantique métallique (du fait d'une masse effective de l'électron très petite dans le premier cas contrairement au second).

Lorsque des molécule sont utilisées, cette quantification apparait beaucoup plus naturellement à travers la notion d'orbitales moléculaires. En effet, c'est sur ces orbitales que vont venir s'ajouter les électrons lors de la charge de l'îlot. On désigne souvent la dernière orbitale contenant un électron par HOMO (Highest Occupied Molecular Orbital). De même, la première orbitale ne contenant aucun électron est désignée par le terme LUMO (Lowest Unoccupied Molecular Orbital).

Il faut se garder cependant de penser qu'une molécule jouant le rôle de point quantique conserve les même propriétés que cette même molécule isolée. Tout d'abord, les niveaux d'énergie sont fortement influencés par la présence des électrodes du fait de l'hybridisation. De plus, les électrodes peuvent induire une déformation qui va altérer la structure électronique de celle-ci. Ce phénomène est connu sous le nom d'effet Jahn-Teller.

Nous montrerons par la suite que dans le cadre de l'électronique moléculaire et plus particulièrement celui de la spintronique moléculaire, il est important de pouvoir évaluer l'influence de ces différents phénomènes.

1.1.3 Les paramètre de couplage tunnel $\gamma_{s/d}$

On peut voir ces coefficient comme définissant "l'aisance" avec laquelle les électrons peuvent passer par effect tunnel de la source ou du drain vers l'îlot et vice-versas. Les valeurs $\gamma_{s/d}$ sont déterminantes dans la valeur du courant qui va être mesuré dans notre système. Plus précisément, de leurs valeurs va dépendre la conductance G de l'échantillon. Partant de cette conductance, on peut par un raisonnement simple montrer que celle-ci doit satisfaire la relation suivante :

$$G \ll G_0 \text{ avec } G_0 = \frac{2e^2}{h} \quad (1.2)$$

où G est la conductance de l'échantillon, G_0 est le quantum de conductance ($\sim 77.5\mu S$), e est la charge de l'électron et h la constante de Planck.

De plus, le paramètre γ rend compte de l'hybridisation des niveaux d'énergie du point quantique avec ceux des électrodes. Cette hybridisation entraîne l'élargissement des niveaux d'énergie d'une largeur $\Delta E_{\text{intrinsèque}}$ donnée par :

$$\Delta E_{\text{intrinsèque}} = h(\gamma_s + \gamma_d) \quad (1.3)$$

Cette élargissement est appelé élargissement intrinsèque par opposition à l'élargissement induit par la température. On peut deviner ici une seconde condition nécessaire à l'apparition du phénomène de blocage de Coulomb à savoir $\Delta E_{\text{intrinsèque}} \ll E_c$. De plus, dans un régime de blocage fort on a $\Delta E_{\text{intrinsèque}} \ll k_b T$. Si cette dernière condition est remplie, on peut avoir accès aux distributions de Fermi-Dirac des électrodes et donc ,à la température du système.

1.2 La notion de potentiel chimique

La notion de potentiel chimique est à mes yeux une des notions les plus importantes afin de comprendre de manière simple et intuitive le phénomène de blocage de Coulomb. Un exemple de son utilisation dans la cadre du transport quantique peut être trouvé dans la très belle et très pédagogique revue de Hanson *et Al.*. Dans cette section, nous allons tout d'abord présenter le concept de potentiel chimique. Nous exprimerons ensuite,

à partir des considérations exposés dans la partie précédente, le potentiel chimique de la source, du drain et surtout de l'îlot central.

1.2.1 Définition

On rencontre souvent le potentiel chimique en thermodynamique lorsque l'on s'intéresse aux systèmes ouverts échangeant des particules (cf. ensemble Grand Canonique). Cette grandeur définit la variation d'énergie d'un système dû à la modification du nombre de particules qui le compose. On le trouve parfois défini comme suit :

$$\mu = \frac{\partial U}{\partial N}$$

U étant l'énergie du système et N le nombre de particules. Dans la suite, nous allons plutôt adopter la notation de Hanson et Al. et prendre la définition suivante :

$$\mu(N) = U(N) - U(N - 1) \quad (1.4)$$

où $\mu(N)$ est le potentiel chimique de l'état de charge N , $U(N)$ et $U(N - 1)$ étant respectivement l'énergie du système avec N et $N - 1$ particules.

1.2.2 Expérience de pensée

Partant de cette définition on peut imaginer un système de deux réservoirs contenant un grand nombre de particules, chacune d'entre elles possédant un potentiel chimique différent. Connectons les par un canal ne laissant passer qu'une particule de potentiel chimique μ_{canal} . Si une particule du réservoir de droite possède ce potentiel chimique, elle peut donc passer dans le réservoir de gauche. Pour cela, elle passe tout d'abord du réservoir de droite au canal ce qui n'entraîne pas de variation dans l'énergie du système ($\Delta E = -\mu_{canal} + \mu_{canal} = 0$). De même, la particule peut ensuite passer du canal au réservoir de gauche. Les trois configurations : particule dans le réservoir de droite, de gauche ou dans le canal sont dégénérées et la particule peut circuler librement dans le système.

Supposons maintenant que le nombre de particules au potentiel chimique μ_{canal} soit plus grand dans le réservoir de droite que dans le réservoir de gauche. Même si les particules de gauche peuvent circuler en direction du réservoir de droite, il y aura en proportion, plus de particules venant du réservoir de droite et allant vers le réservoir de gauche. Il y a donc un flux moyen de particules de la droite vers la gauche. Au bout d'un temps

plus ou moins long, le système devrait tendre vers un équilibre et le flux vers zéro. En revanche, si l'on maintient "artificiellement" cette différence en nombre de particules, le flux devrait perdurer.

Dans le cadre de notre nanostructure, les particules sont des électrons, le nombre de particule au potentiel μ est gouverné par la distribution de Fermi pondéré par la densité d'état. Le canal filtrant n'est rien d'autre que notre point quantique. En introduisant une tension source drain, on induit une différence entre la source et le drain dans le nombre d'électron possédant le potentiel chimique μ tel que $\mu_s < \mu < \mu_d$ (cf Fig.1.2.a). Un courant peut donc être mesuré si le potentiel chimique du point quantique se trouve dans cette fenêtre.

Ce raisonnement certes un peu simpliste peut être formalisé aisément dans le cadre de la méthode des équations pilotes. L'ensemble de la procédure à suivre est détaillé dans l'annexe ?!.

1.2.3 Les potentiels chimique de la source et du drain.

L'expression du potentiel chimique de la source et du drain est directement donnée par $\mu_i = eV_i$ ou $i = \text{source/drain}$. Il s'agit en fait du niveau de Fermi des électrons dans la source et le drain (à ne pas confondre avec l'énergie de Fermi). La probabilité dans un métal de niveau de fermi μ_F de trouver un électron de potentiel chimique μ est donnée par la distribution de fermi :

$$p(\mu) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{\mu - \mu_F}{k_b T}\right)}$$

où μ est le potentiel chimique de l'électron, μ_F celui du métal, k_b est la constante de Boltzmann et T est la température du système. On obtient donc en fonction des tensions source et drain :

$$p_i(\mu) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{\mu - eV_i}{k_b T}\right)} \quad (1.5)$$

ou $i = \text{source/drain}$, V_i est la tension appliquée et e la charge de l'électron. Comme nous l'avons vu dans notre expérience de pensée, cette notion est essentielle dans la détermination du courant qui traverse notre structure.

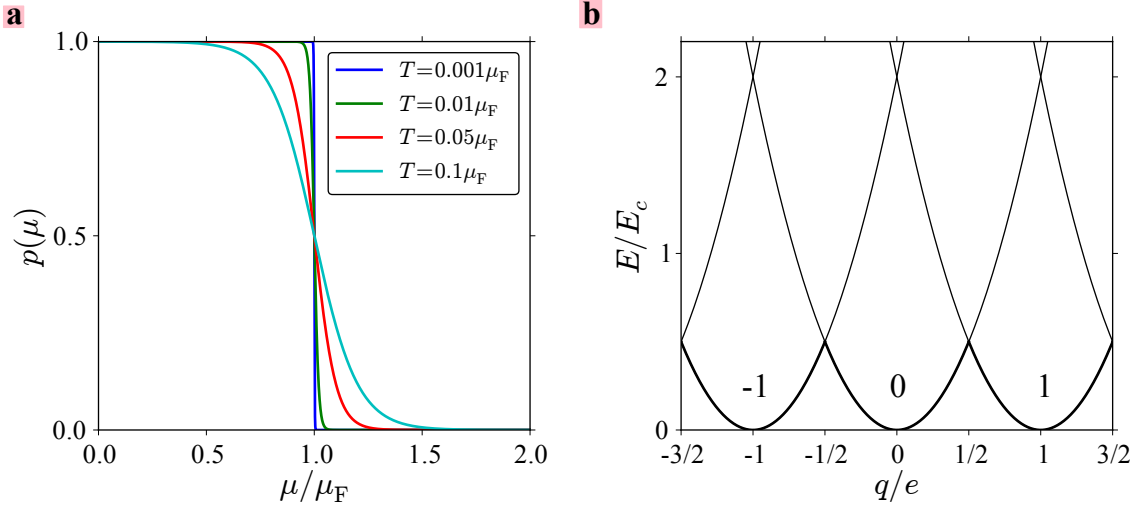


FIGURE 1.2 – Probabilité d’avoir un électron de potentiel chimique μ sachant que le potentiel chimique du métal est μ_F . Le potentiel chimique μ_F correspondant à une tension de $1mV$ que l’on applique habituellement dans ce genre d’expérience correspond à une énergie de $11.5K$.

1.2.4 Le potentiel chimique de l’îlot

Si l’expression du potentiel chimique de la source et du drain n’a rien de compliquée (dans le cas d’électrode normale tout du moins), on ne peut pas en dire de même de celle de l’îlot. C’est même là que réside toute la difficulté de la compréhension d’une expérience. Heureusement, dans la partie précédente nous avons déjà fait le bilan des différentes énergie en jeu dans le système. A savoir, nous devons prendre en compte l’énergie électrostatique, l’énergie d’interaction électron-électron ainsi que la discrétisation des niveaux d’énergie dans l’îlot. Tout ceci donne :

$$U(N) = \underbrace{\frac{1}{2C_\Sigma}(-|e|N + C_s V_s + C_d V_d + C_g V_g)^2}_{\text{couplage électrostatique et énergie de charge}} + \underbrace{\sum_{n=1}^N E_n}_{\text{énergie liés aux aux états discret}} \quad (1.6)$$

On peut également tenir compte d’un éventuel champ magnétique en faisant le remplacement suivant :

$$\sum_{n=1}^N E_n = \sum_{n=1}^N E_n(B)$$

c’est à dire en attribuant à chaque niveau discret, une dépendance en champ magnétique. Nous verrons rapidement dans la suite comment cela se traduit dans le cas d’un système

simple.

Une fois l'énergie en fonction de N exprimée simplement, il suffit d'appliquer la définition précédente à savoir :

$$\mu(N) = U(N) - U(N - 1)$$

On se retrouve avec une expression relativement simple du potentiel chimique :

$$\mu(N) = (N - \frac{1}{2}) \frac{e^2}{C_\Sigma} + \frac{e}{C_\Sigma} (C_g V_g + C_s V_s + C_d V_d) + E_N(B) \quad (1.7)$$

En utilisant la définition de l'énergie de charge E_c introduite précédemment, nous pouvons réécrire la relation sous la forme (le terme $1/2$ introduit précédemment permet une écriture plus compacte dans ce qui va suivre) :

$$\mu(N) = (N - \frac{1}{2}) E_c - \frac{E_c}{|e|} (C_g V_g + C_s V_s + C_d V_d) + E_N(B) \quad (1.8)$$

L'énergie E_c est donc la quantité d'énergie dû à la répulsion Coulombienne qui sépare deux potentiels chimiques d'état de charge différents.

1.3 Détermination des conditions de circulation d'un courant

Pour rendre l'exposé qui va suivre plus clair, nous allons le décomposer en trois parties. Dans la première partie, nous allons voir quelles sont les conditions à remplir pour qu'un électron du drain puisse aller dans l'îlot. Dans la deuxième partie, nous ferons de même pour la source. Enfin, dans la dernière partie, nous exploiterons les résultats obtenus pour en déduire les conditions nécessaires pour qu'un courant circule dans notre structure. Afin d'adapter les solutions trouvées aux conditions expérimentales, on posera $V_s = 0$ car dans la grande majorité des dispositifs, une des électrodes est directement connectée à la masse. Ce qui donnera $V_d = V_{ds}$, V_{ds} étant la tension appliquée à l'échantillon.

1.3.1 Charge de l'îlot par le drain

Comme nous en avons discuté précédemment, pour qu'une particule (ici un électron) puisse passer d'un réservoir à l'autre, il faut que son potentiel chimique soit identique

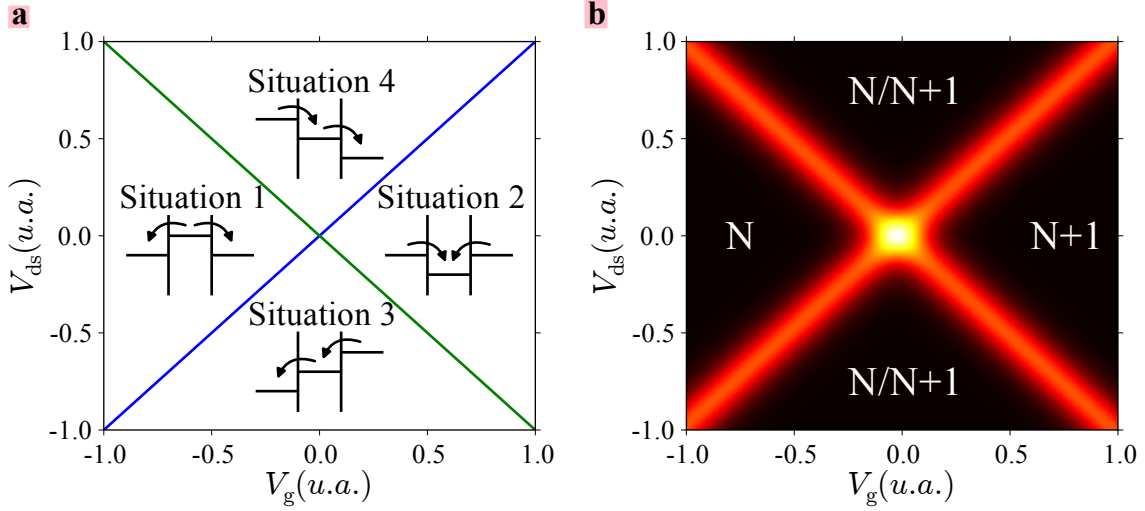


FIGURE 1.3 – Représentation de la charge et de la décharge de l'îlot dans le plan (V_g, V_{ds})

dans les deux réservoirs. Si l'on adapte ce raisonnement à notre système, il faut donc qu'il y ait dans le drain des électrons dont le potentiel chimique corresponde à celui de cet électron une fois sur l'îlot. Supposons l'îlot dans l'état de charge $N - 1$, pour passer à l'état de charge N , il faut qu'il y ait au moins un électron dans le drain dont le potentiel chimique soit égale à $\mu(N)$. Il nous suffit d'observer la courbe de la Fig. 1.2 pour comprendre que cela suppose :

$$p(\mu) > 0 \implies -|e|V_{ds} \geq \mu(N)$$

Ce qui conduit à la relation suivante :

$$-|e|V_{ds} \geq (N - \frac{1}{2}) \frac{e^2}{C_\Sigma} - \frac{|e|}{C_\Sigma} (C_g V_g + C_s V_s + C_d V_d) + E_N(B)$$

En tenant compte des conditions $V_s = 0$ et que $V_{ds} = V_d$ évoquées plus haut, cette relation peut se réécrire de la façon suivante :

$$V_{ds} \leq \frac{1}{C_g + C_s} \left\{ C_g V_g - \frac{C_\Sigma}{|e|} \left(E_N(B) + (N - \frac{1}{2}) E_c \right) \right\} \quad (1.9)$$

La zone de transition entre charge et décharge dans le plan (V_g, V_{ds}) est délimité par une droite dont la pente $\frac{C_g}{C_g + C_s}$ déterminée par les différentes capacitances du système.

1.3.2 Charge de l'îlot par la source

Un raisonnement similaire au précédent conduit à la relation suivante :

$$V_{ds} \geq -\frac{1}{C_d} \left\{ C_g V_g + \frac{C_\Sigma}{|e|} \left(E_N(B) + (N - \frac{1}{2}) E_c \right) \right\} \quad (1.10)$$

On peut extraire une deuxième pente $-\frac{C_g}{C_d}$ qui correspond à la charge ou la décharge de l'îlot par la source.

Nous pouvons également déduire de ce qui précède une deuxième relations importantes. Deux états de charge consécutifs sont séparés par une tension de grille ΔV_g que l'on peut relier aux paramètres du système par la formule suivante :

$$\frac{C_g}{C_\Sigma} |e| \Delta V_g = E_c + \Delta E \quad (1.11)$$

où $\Delta E = E_N(B) - E_{N-1}(B)$ est l'écart entre deux niveaux d'énergie du spectre discret.

1.3.3 Condition de circulation du courant

Si l'on reprend les deux paragraphes précédents, on peut imaginer quatre situations :

- **Situation 1** : aucun électron ne peut être chargé ni par la source ni par le drain. L'état de charge reste à N.
- **Situation 2** : un électron peut être chargé à la fois par la source et par le drain. L'état de charge est donc fixé à N+1.
- **Situation 3** : un électron ne peut être chargé que par la source. Dans ce cas, il finit par se décharger dans le drain
- **Situation 4** : un électron ne peut être chargé que par le drain. Dans ce cas, il finit par se décharger dans la source.

Dans les situations un et deux, l'état de charge de l'îlot est bien défini et on se trouve dans le régime de blocage de Coulomb. Dans la situation 3 les électrons circulent de la source vers le drain. Un courant positif est donc mesuré. Dans la situation 4, les électrons circulent du drain vers la source. Un courant négatif est donc mesuré. L'ensemble de ces régimes est représenté dans la Fig. 1.5.a.

Souvent, les mesures ne se font non pas en courant mais en conductance différentielle dI/dV . Une simulation d'une telle mesure obtenue par la méthode des équations pilote est présenté dans la Fig.1.5.b où les différentes zones décrites précédemment sont séparées

par de grande variations dans la conductance différentielle mesurée.

Remarque : dans le cas d'une tension source-drain nulle, la condition de circulation de courant impose $\mu(N) = 0$ soit $U(N) = U(N-1)$. Les deux états de charge sont dégénérés et on parle alors de point de dégénérescence. Une représentation de l'énergie $U(N)$ pour différents états de charge est représenté dans la Fig.1.2.b.

1.4 Etats excités et transport

Dans de nombreux cas, une transition d'un état de charge à l'autre ne peut pas être associée à un unique potentiel chimique du fait de la présence d'états excités pour l'un ou les deux états de charges. Il faut donc prendre en compte toutes les transitions afin de déterminer correctement la signature transport. Pour illustrer ceci, nous allons prendre un exemple simple dans lequel une boîte quantique oscille entre les états de charges $N = 0/1$. Nous tiendrons de plus compte du spin de l'électron.

Sans champ magnétique appliqué le potentiel chimique μ_+ associé à la transition d'un état de charge $N = 0$ à un état de charge $N = 1$ avec un état de spin up ($0 \rightarrow +$) possède la même énergie que le potentiel chimique μ_- associé la transition de l'état de charge $N = 0$ à l'état de charge $N = 1$ avec un état de spin down ($0 \rightarrow -$).

Si l'on applique un champ magnétique au système, la dégénérescence en d'énergie des deux états de spin est levée du fait de l'effet Zeeman (cf Fig. 1.5.b). Les deux potentiels chimiques μ_- et μ_+ ne sont plus égaux. Le premier correspond désormais à la transition entre deux état fondamentaux ($EF(0) \rightarrow EF(1)$). Le second en revanche correspond à la transition de l'état fondamental de $N = 0$ à l'état excité de $N = 1$ ($EF(0) \rightarrow EE(1)$).

On peut donc construire deux jeux de diamants de Coulomb, l'un correspondant à μ_- et l'autre à μ_+ (cf Fig. 1.5.a en bleu et rouge respectivement). Cependant, dans les zones de blocage associé au diamant de la transition $EF(0) \rightarrow EF(1)$ (représenté ici par le potentiel chimique μ_-), aucun courant ne peut circuler (zone grisé dans la Fig.1.5.a). Les bords de diamant situés dans cette zone doivent apparaître en pointillés car ils ne correspondent pas réellement à une modification du courant.

De part cette construction, on constate que l'intersection entre les bord de diamant de la transition $EF(0) \rightarrow EE(1)$ et ceux de la transition $EF(0) \rightarrow EF(1)$ donne une lecture directe de l'effet Zeeman (cf Fig. 1.5.a). On peut donc par une mesure transport faire la spectroscopie du point quantique en fonction du champ magnétique. Dans ce cas précis, celle-ci est fort simple.

Cependant, dans la plus part des cas, les états $N/N+1$ possèdent tout deux des états

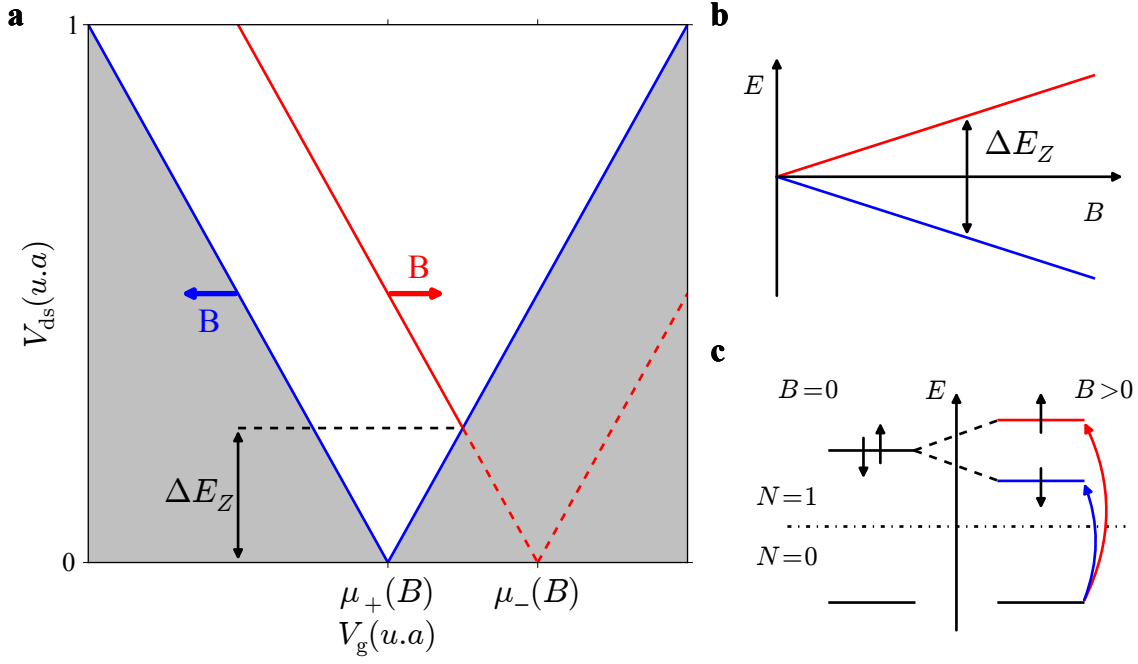


FIGURE 1.4 – Diagramme Zeeman de l'état de charge $N=1$. Potentiel chimique correspondant à la transition 0/1

fondamentaux et des états excités et l'analyse de la signature du système en transport devient plus difficile. Ces différentes configurations sont notamment traitées par Hanson et Al., et un exemple peut être trouvé dans l'analyse du $N@C_{60}$ et les références qu'elle contient proposée en fin de thèse.

1.5 Cotunneling

Nous avons vu jusqu'à maintenant que dans les zones de blocage de Coulomb, l'état de charge du système est fixe du fait de l'énergie de charge. En effet, l'ajout d'un électron supplémentaire aurait un "coût" énergétique trop grand pour le système. Cependant, de part les inégalités d'Heisenberg, un système peut outrepasser ce problème de "coût" énergétique pendant un temps très court. L'ordre de grandeur de ce temps dépend de l'énergie nécessaire et est donné par la relation :

$$\tau \simeq \frac{\hbar}{E_c}$$

Une façon de voir le phénomène est de dire que pendant le temps τ un électron est entré dans le point quantique pendant qu'un autre en est sorti. Si un même état de charge possède plusieurs états (fondamentaux et excités), on peut imaginer deux situations.

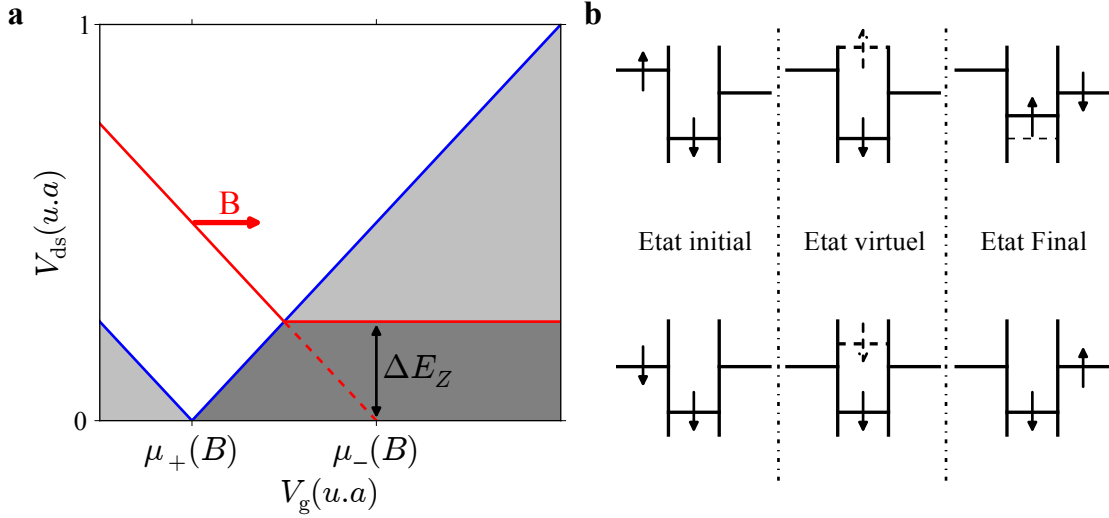


FIGURE 1.5 – Représentation du cotunneling dans le plan (V_g, V_{ds})

Dans le premier cas, l'électron entrant vient occuper un état de même énergie que celui de l'électron sortant et dans ce cas on parle de cotunneling élastique. L'électron entrant occupe un état d'énergie plus élevée que l'électron sortant et dans ce cas on parle de cotunneling inélastique. Dans le deuxième cas, cette différence en énergie que l'on notera ΔE_{cot} dans la suite doit être fournie au système. Dans notre cas, ce rôle est assuré par la tension V_{ds} . Pour qu'un processus inélastique ait lieu, il faut donc que :

$$|e|V_{ds} \geq \Delta E_{cot} \quad (1.12)$$

Dans le cas du cotunneling élastique cette condition est toujours remplie. C'est ce phénomène qui donne le fond de conductance mesuré dans les expériences de blocage de Coulomb. Plus intéressant encore, en faisant varier la tension de polarisation on peut venir sonder les différents états d'énergie pour un état de charge donnée. Dans la zone de blocage de Coulomb, on va donc observer des zones avec des valeurs de courant différentes (cf nuance de gris Fig.1.5.a). Dans le cas présenté ici, la limite entre les deux zones permet une lecture directe de l'effet Zeeman ΔE_z . Encore une fois, il s'agit ici d'un cas simple avec seulement un état excité. Une étude plus complexe de la molécule endofullerène est présentée dans l'article en fin de thèse.

Remarque : je voudrais ici insister sur la différence entre la spectroscopie en tunneling et celle en cotunneling. La première s'intéresse aux transitions entre des états relatifs à deux états de charges différents. Il faut donc "deconvoluer" le signal pour pouvoir analyser le spectre des deux états de charge. Dans le cas du cotunneling, on peut accéder directement aux spectres d'un état de charge donné. De part cette différence, les règles de sélection des transitions sont également différentes. Dans le cas du tunneling, on doit avoir $\Delta m = \pm 1/2$. Pour le cotunneling, cette règle de sélection devient $\Delta m = 0$ ou ± 1 . Il peut arriver que des états inaccessibles par une spectroscopie en régime de tunneling soient en revanche accessibles par une mesure en régime de cotunneling. Une comparaison des deux méthodes peut être trouvée dans l'article en fin de thèse ainsi que dans la thèse de Nicolas Roch.

1.6 Effet Kondo

Tout comme le blocage de Coulomb, l'effet Kondo a d'abord été mesuré sur des échantillons macroscopique consistant en un metal massif contenant des impuretés magnétiques. En mesurant la conductance d'un tel échantillon, on avait constaté qu'en dessous d'une certaine température la conductance avait tendance non plus à augmenter mais à atteindre un maximum pour diminuer à nouveau et tendre vers une limite inférieure à celle attendu par les modèles de l'époque. Ce problème est resté insoluble pendant quelques années jusqu'au modèle proposé par Jun Kondo en 1964. Ce modèle est relativement simple à concevoir mais en revanche très difficile à résoudre car faisant appel à la physique à N corps. Dans ce modèle, les électrons de conduction viennent se coupler de façon antiferromagnétique aux impuretés du métal de telle sorte que le moment magnétique total devient nul. Chaque impureté agit donc comme un centre de diffusion très actif diminuant d'autant la conductance du système. La physique à N corps apparait au travers des électrons de conduction. En effet, l'impureté magnétique n'interagit pas avec un seul électron du métal mais plutôt avec ce que l'on appelle un nuage Kondo. Il s'agit d'un phénomène hautement cohérent. Le seul problème du modèle à l'époque, c'est qu'il prévoit une divergence de la conductance quand la température tend vers zero. Il faudra attendre encore quelques années avec la théorie de renormalization proposée par Wilson, pour résoudre complètement le problème.

Ce problème est réapparu récemment dans ce que certains ont appelé "The revival of the Kondo Effect" (mettre la référence). La physique mésoscopique a permis de mettre à disposition des théoriciens des modèles bien plus simples à résoudre dans lesquels le

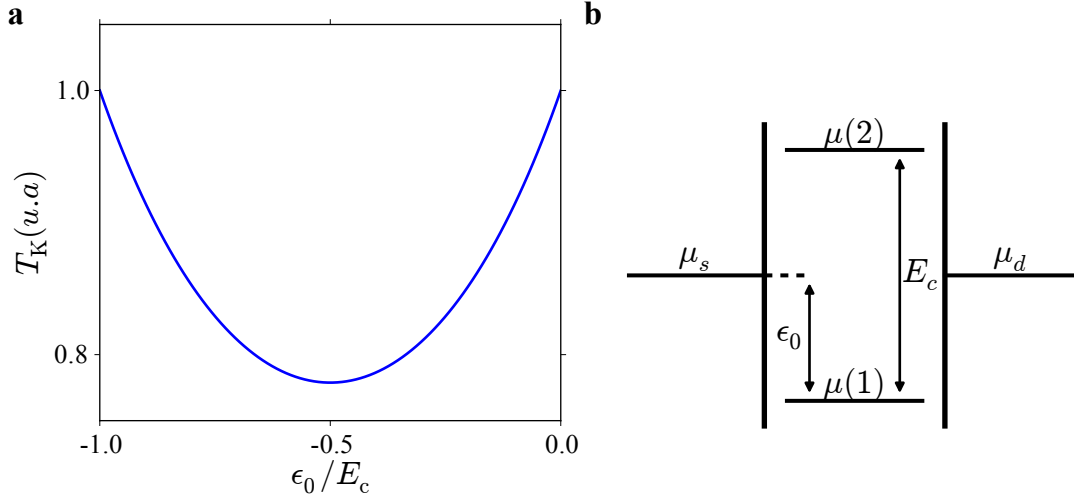


FIGURE 1.6 – Kondo

nombre d'impuretés magnétiques pouvait être réduit à l'unité et également dans lequel le couplage aux électrons pouvait être contrôlé de manière précise. Les 2DEG par exemple permettent un contrôle quasi-parfait de ces différents paramètres. La littérature est riche en articles et revues de toutes sortes couvrant de nombreux aspects de l'effet Kondo. Notre groupe a notablement contribué à l'investigation de cette physique au travers notamment de l'étude de transition de phase et de Kondo sous écrantage. Cependant, je ne traiterai pas en détail ici de ces effets.

Je voudrais en revanche dresser quelques généralités de l'effet Kondo dans les transistors moléculaires. Comme je le disais précédemment, l'effet Kondo (de spin) réside dans le couplage entre une impureté magnétique et les électrons de conduction. Dans notre système, cette impureté peut être jouée par un niveau ne contenant qu'un seul électron non apparié. Il s'agit donc d'une impureté de spin $1/2$. Cette impureté est couplée aux électrons de la source et du drain. Le couplage anti-ferromagnétique n'est effectif qu'en dessous d'une température caractéristique nommée température Kondo et noté T_K dans la suite. Cette température T_K dépend principalement de trois paramètres : l'énergie de charge E_c , le couplage aux électrodes γ et la différence en énergie entre le potentiel chimique du point quantique et le niveau de Fermi des électrodes. Ces trois paramètres sont représentés sur la Fig.1.6.b et sont liés par la relation suivante :

$$T_K \sim \frac{\sqrt{\gamma E_c}}{2} \exp\left(\frac{\pi \epsilon_0 (\epsilon_0 + E_c)}{2 \gamma E_c}\right) \quad (1.13)$$

Première constatation, plus l'énergie de charge E_c est grande plus la température Kondo sera élevée. C'est ici que réside un des avantages des transistors moléculaires com-

parativement aux 2DEGs. Les énergies de charge sont en général beaucoup plus élevée ce qui peut conduire à des T_K de l'ordre de quelques dizaines de Kelvin. On remarque également que lorsqu'on s'éloigne d'un point de dégénérescence (quand les trois potentiels chimiques sont alignés), ϵ_0 augmente et donc la température Kondo diminue pour atteindre son minimum au centre du diamant (cf Fig.1.6.a). On peut donc moduler T_K par l'intermédiaire de la grille.

De plus, l'effet Kondo se traduit dans nos structures par une augmentation de la conductance contrairement à ce qui avait été observé dans les matériaux massifs. En effet, la forte interaction des électrons de conduction avec le point quantique va grandement augmenter les événements tunnels d'ordre plus élevé (cotunneling d'ordre supérieur). Ceci peut être vu comme l'apparition d'une densité d'état dans l'îlot alignée avec le niveau de Fermi des électrodes. Cela se traduit dans les mesures de transport par une conductance non nulle à tension source-drain proche de zéro à l'intérieur des zones des blocage.

L'effet Kondo est sensible à des perturbations extérieures comme la tension source/drain ($E \sim eV_{ds}$), la température ($E \sim k_b T$) ou bien encore le champ magnétique ($E \sim g\mu_b B$). On peut discerner deux régimes :

- $E \ll k_b T_K$: dans ce cas, la conductance est donnée par $G(E) = G_0(1 - C(E/k_b T_K))^2$, C étant un nombre qui dépend de la perturbation appliquée au système ainsi que de la géométrie du système.
- $E \gg k_b T_K$: on obtient la dépendance suivante : $G(E) = 1/\ln^2(E/k_b T_K)$. C'est ce régime qu'avait décrit Kondo.

Afin de décrire le régime intermédiaire, il est nécessaire de faire appel à la technique du groupe de renormalization numérique, NRG en anglais. Nous verrons dans la partie résultat comment cette sensibilité aux perturbations peut être utilisé pour évaluer l'énergie d'interaction des électrons du point quantique avec un moment magnétique proche.