

Première partie

Théorie

Chapitre 1

Transport mésoscopique

Dans ce chapitre nous allons aborder le transport à travers une structure nanoscopique et nous allons nous intéresser en particulier au phénomène de blocage de Coulomb. Ce phénomène a d'abord été observé sur des échantillon métallique macroscopique composé de petit grain métallique par C.J. Gorter en 1951. En mesurant la conductance d'un de ces échantillon en fonction de la température, l'auteur a constaté une diminution inattendu à basse température. Cette diminution de la température à été attribué à l'aspect granuleux du métal. Plus précisément, pour ajouter un électron dans un des grains constituant le métal, il fallait fournir une énergie e^2/C où e est la charge de l'électron et C est la capacité que l'on peut associé à un de ces grains. A haute température ($k_b T \gg e^2/C$), cette énergie n'affecte pas la conductance du système. A basse température en revanche ($k_b T \ll e^2/C$), cette énergie réduit l'habilité des électron à se mouvoir librement dans le métal ce qui entraîne une diminution de la conductance. Depuis, l'étude de ce phénomène à beaucoup évolué et de nos jours et le rôle central du grain de métal est souvent remplacé par des molécules, des point quantique de gaz d'électron à deux dimensions etc..

Dans ce chapitre, nous verrons tout d'abord qu'elles sont le différent paramètres physique d'un système type. En particulier, nous donnerons quelques conditions nécessaire à l'apparition d'un phénomène de blocage de Coulomb classique et quantique. Nous aborderons ensuite la notion de potentiel chimique et nous montrerons comment cette notion peut expliquer de façon intuitive le phénomène de blocage de Coulomb. Nous déterminerons notamment comment certain paramètre du système par une simple mesure de courant. Nous développerons ensuite un modèle plus quantitatif afin de déterminer le courant circulant à travers une structure nanoscopique. Pour cela, nous nous concentrerons sur le cas particulier d'une boîte quantique oscillant entre deux états de charge.

1.1 Les paramètres du système

Dans la suite de ce chapitre, nous considérerons un système simple composé d'un point quantique (ou îlot) connecté à trois terminaux que l'on nommera source, drain et grille. 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 barrière tunnel entre le point quantique et la source et le drain permettent le passage d'électron (sous certaines conditions). Ces deux barrières tunnels sont caractérisées par les paramètre γ_s pour le système source/îlot et γ_d pour le système 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 de façon plus précise.

1.1.1 Les capacitances du système

Comme expliqué précédemment, trois capacitances couples l'îlot central aux trois terminaux. L'application d'une tension sur l'un ou plusieurs terminaux va donc modifier l'énergie des électrons situés sur le point quantique. Cette modification peut facilement s'exprimer comme suit :

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

C'est la possibilité de moduler continuellement cette énergie qui permet d'effectuer une spectroscopie des états énergétiques comme nous le verrons dans la suite. Il est à noter que dans les expériences de Microscopie à Effet Tunnel ou Scanning Tunneling Microscopie (STM), seul les tensions de source et de drain peuvent être modifiées. L'équivalent de la tension de grille est joué par l'environnement électrostatique et hors d'accès pour l'expérimentateur. 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.

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 $\frac{E_c}{2}$ appelé énergie de charge (nous verrons l'utilité du facteur un-demi dans la suite) 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 ce 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 rajoute 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.

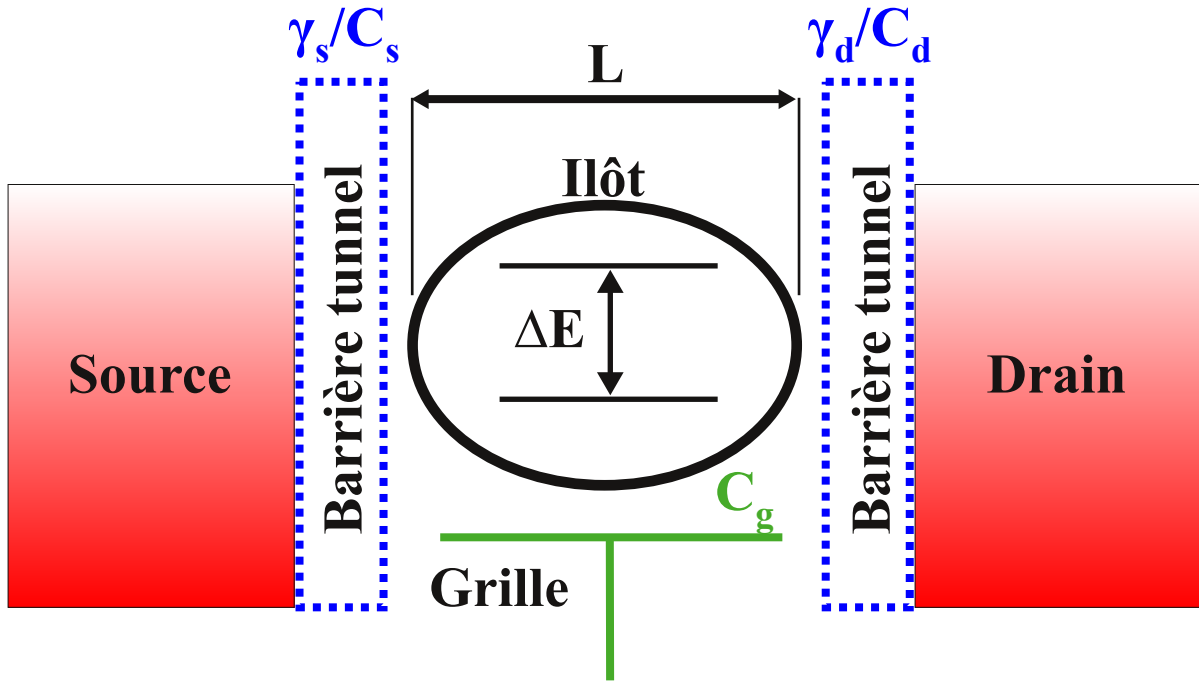


FIGURE 1.1 – Paramètres caractérisant un système à trois terminaux

1.1.2 L'îlot

De la nature de l'îlot vont dépendre les paramètres servant à le caractériser. Les points quantiques que l'on rencontre dans les publications sont souvent (mais pas exclusivement) basés sur les 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 techniques de lithographie, des électrodes sont ajoutées sur la surface de 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** : l'or est souvent choisi en tant que métal car non-oxydable. Ces grains d'or peuvent être obtenus notamment 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 molécules pouvant être utilisées pour jouer ce rôle sont trop nombreuses pour toutes être citées mais on peut néanmoins donner quelques exemples : les nanotubes, les fullerènes, 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 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 apparaît dans les mesures de transport). 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.

Lorsque des molécule sont utilisées, cette quantification apparaît 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 peut donc venir sonder les différents niveaux d'énergie d'une molécule en étudiant les différentes énergies nécessaires à l'ajout d'un ou plusieurs électrons sur les différentes orbitales.

Il faut se garder cependant de penser qu'une molécule jouant le rôle de point quantique conserve les mêmes propriétés qu'une molécule isolée. Tout d'abord, les niveaux d'énergie sont fortement influencé par la présence des électrodes du fait de l'hybridisation. De plus, la présence des électrodes peut induire une déformation qui va altérer la structure électronique de celle-ci. Ce phénomène est connu sous le nom d'effet Jhan-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 effet tunnel de la source ou du drain vers l'îlot et vice-versas. Les valeur $\gamma_{s/d}$ sont déterminantes dans la valeur du courant qui va être mesuré dans notre système. Plus précisément, de leur valeur va dépendre la conductance G de l'échantillon. Partant de cette conductance, on peut par un raisonnement simple montrer que sa valeur doit être telle que :

$$G \ll G_0 \tag{1.2}$$

où G est la conductance de l'échantillon et G_0 est le quantum de conductance ($\sim 77.5 \mu S$).

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 par l'intermédiaire de des distribution de Fermi-Dirac des électrode, à la température du système. C'est cette propriété qui est utilisée dans le thermomètre à blocage de Coulomb.

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 présenté le concept de potentiel chimique. Nous exprimerons ensuite, à partir des considération exposé 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 ouvert échangeant des particules. Cette grandeur définit la variation d'énergie d'un système dû à la modification du nombre de particule 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 particule. Dans la suite, nous allons plutôt adopter la notation de Hanson et Al. et prendre la définition suivante :

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

ou $\mu(N)$ est la modification en énergie apporté par l'ajout de la $N^{\text{ième}}$ particules, $U(N)$ 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 trois réservoirs. Supposons que l'on puisse attribuer à chacun des ces réservoirs un potentiel chimique. On nommera ces potentiels chimiques μ_{droit} , μ_{centre} et μ_{gauche} . Faisons également l'hypothèse que ces

trois potentiels chimiques sont égaux. Si je prends une particule dans le réservoir de droite et que je la mets au centre, l'énergie du réservoir de droite va varier de $-\mu_{droit}$ tandis que l'énergie du réservoir du centre va varier de μ_{centre} . En revanche la variation totale en énergie du système est nulle. Je peut procéder de même avec le réservoir de gauche. On constate que les trois configurations ; la particule à droite au centre ou à gauche ont la même énergie ou autrement dit, sont dégénéré. De fait, la particule est libre de circuler d'un point à l'autre du système.

Supposons maintenant que le nombre de particule au potentiel chimique μ_{droit} est plus important que celui possédant le potentiel chimique μ_{gauche} . Même si les particule de gauche peuvent circuler en direction du réservoir de droite, il y aura en proportion, plus de particule venant du réservoir de droite vers le réservoir de gauche. Il y a donc un flux moyen de particule 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 particule, 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. En introduisant une tension source drain, on induit une différence entre la source et le drain dans le nombre d'électron possédant le bon potentiel chimique (i.e le potentiel chimique de l'îlot central). Un courant peut donc être mesuré. Si l'on s'en tient à ce raisonnement fort simple, ce courant devrait être proportionnel à cette différence dans le nombre de particule, autrement dit, directement lié à la tension source drain.

Ce raisonnement certes un peu simpliste peut être formalisé aisément dans le cadre de la méthode des équations pilotes. Il faudra pour cela tenir compte du fait que pour qu'un électron de potentiel μ passe par exemple de l'électrode droite à l'électrode gauche, il faut non seulement qu'il soit présente à droite (cette probabilité est donné par la distribution de fermi) mais aussi qu'il y est un état disponible de même potentiel chimique à gauche (ceci est donné par 1 soustrait de la distribution de Fermi). 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 $i = source/drain$. Il s'agit en fait du niveau de Fermi des électron dans la source et le drain (à ne pas confondre avec l'énergie de Fermi). Si l'on veut maintenant savoir quel est la probabilité dans un métal de niveau de fermi μ_F de trouvé un électron de potentiel chimique μ , je peux utiliser la distribution de fermi et cette probabilité est donc égale à :

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

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 $i = source/drain$. Comme nous l'avons vu dans notre expérience de pensée, cette notion est essentielle dans la détermination du courant qui traverse notre structure.

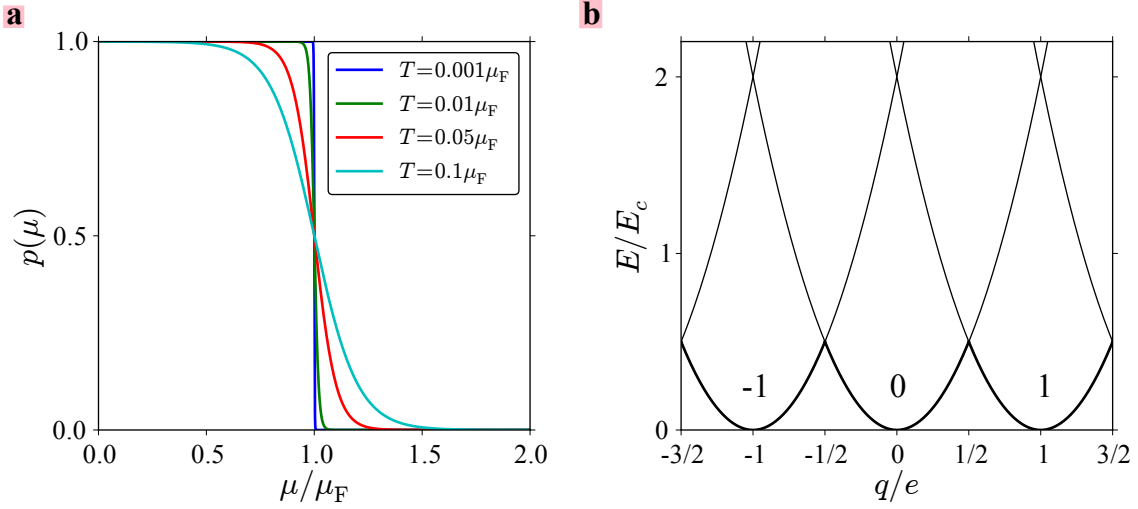


FIGURE 1.2 – Probabilité d’avoir un électron de potentiel chimique μ sachant que le potentiel chimique du métal est μ_F . Le potentiel chimique μ_F correspondant à une tension de $1mV$ que l’on applique habituellement dans ce genre d’expérience correspond à une énergie de $11.5K$.

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 compliqué (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 du système, 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 :

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

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 ainsi que le signe de ce courant en fonction des paramètres. Afin d'adapter les solutions trouvées à la condition expérimentale, 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 au travers de la source et du drain.

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 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 cette 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 égal 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 :

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

Puis, en se rappelant que $V_s = 0$ et que $V_{ds} = V_d$:

$$V_{ds} \leq \frac{1}{C_\Sigma} (C_g V_g + C_d V_{ds}) + \frac{E_N(B)}{|e|} - (N - \frac{1}{2}) \frac{|e|}{C_\Sigma}$$

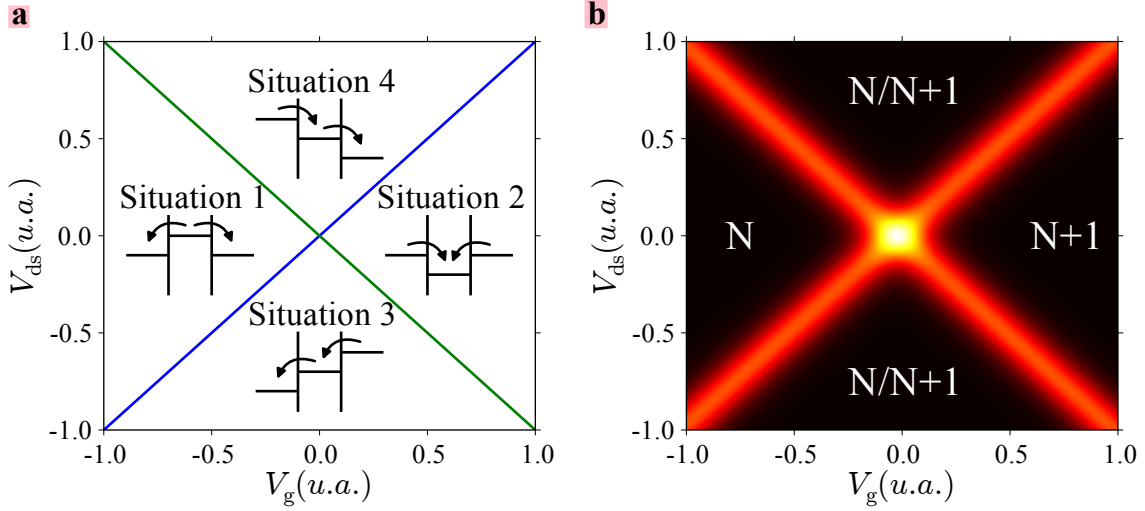


FIGURE 1.3 – Représentation de la charge et de la décharge de l'îlot dans le plan (V_g, V_{ds})

Cette relation peut se réécrire de la façon suivante :

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

La zone de transition entre charge et décharge dans le plan (V_g, V_{ds}) est délimité par une droite dont la pente est donnée par les différentes capacitances du système. Cette pente est donnée par

$$\frac{C_g}{C_g + C_s}$$

1.3.2 Charge de l'îlot par la source

Un raisonnement similaire au précédent et en se rappelant que $V_s = 0$ conduit à la relation suivante :

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

On peut extraire une deuxième pente qui correspond à la charge ou la décharge de l'îlot par la source :

$$-\frac{C_g}{C_d}$$

De plus nous pouvons en déduire 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 :

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

1.3.3 Condition de circulation du courant

Si l'on reprend les deux paragraphes précédent, 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. Il va donc y décharger et l'état de charge est $N+1$.
- **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.

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. Afin de décrire le transport dans ce cas précis, nous allons prendre un exemple simple d'un boîtier quantique oscillant 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 celui (μ_-) associé à 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 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 états fondamentaux ($EF(0) \rightarrow EF(1)$). Le second en revanche correspond à la transition de l'état fondamental $N = 0$ à l'état excité de l'état de charge $N = 1$ ($EF(0) \rightarrow EE(1)$).

On peut donc construire deux jeux de diagrammes 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 associées au diagramme de la transition $EF(0) \rightarrow EF(1)$, aucun courant ne peut circuler (zone grisée dans la Fig. 1.5.a). Les bords de diagramme situés dans cette zone doivent apparaître en pointillés car ils ne correspondent pas réellement à une modification du courant.

On voit que dans ce cas précis, une mesure en transport nous permet de mesurer directement le diagramme Zeeman, c.à.d la dépendance en champ magnétique des états du système. On peut donc utiliser cette technique pour effectuer une véritable spectroscopie du point quantique. De plus, comme nous l'avons vu précédemment, les états de charge de l'îlot peuvent être modifiés à l'aide de la tension de grille. On peut donc choisir l'état de charge du système pour lequel on veut effectuer la spectroscopie.

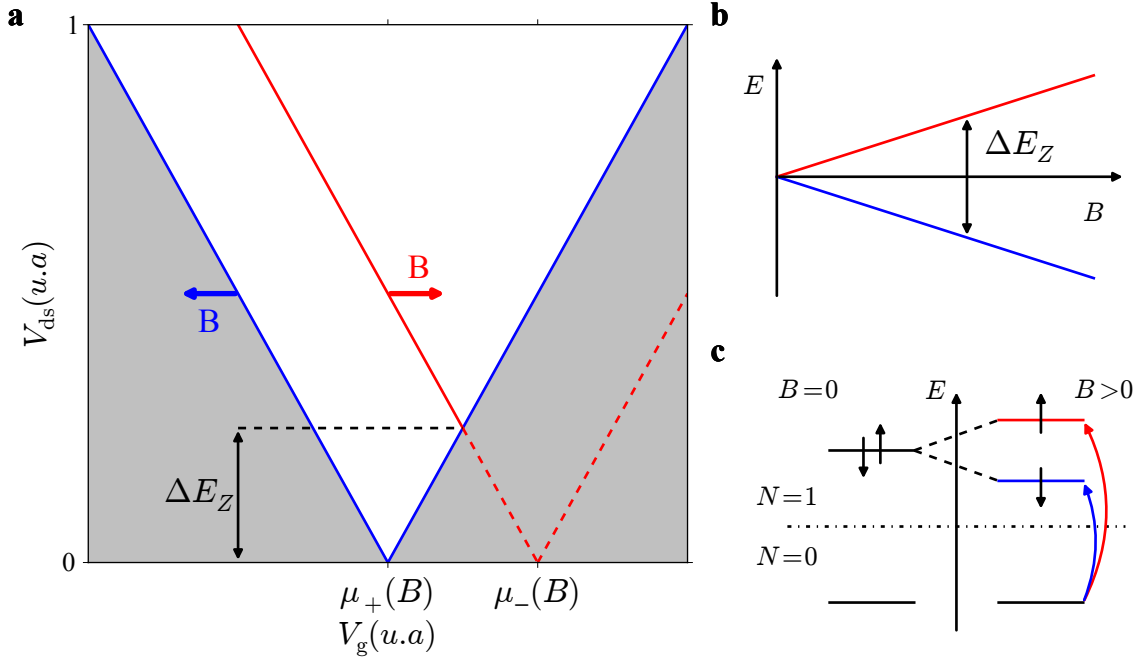


FIGURE 1.4 – Diagramme Zeeman de l'état de charge $N=1$. Potentiel chimique correspondant à la transition 0/1

Bien sûr, il s'agit ici d'un système relativement simple et ceux rencontrés dans les expériences de transport sont parfois plus complexes. Ils arrivent souvent que les états $N/N+1$ possèdent tout deux des états fondamentaux et des états excités. Dans ce cas, 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 $N@C_{60}$ proposé en fin de thèse et les références qu'il contient.

1.5 Cotunneling

Nous avons vu jusqu'à maintenant que dans les zones de blocage de Coulomb, l'état de charge du système était 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, l'on sait de part les inégalités d'Heisenberg qu'un système peut outrepasser ce problème de "coût" énergétique en "empruntant" l'énergie nécessaire pendant un temps très court. L'ordre de grandeur de ce temps dépend de l'énergie nécessaire et est donnée 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. Dans le premier cas, l'électron entrant vient occuper un état de même énergie que celui de l'électron sortant. On parle de cotunneling élastique. L'électron entrant occupe un

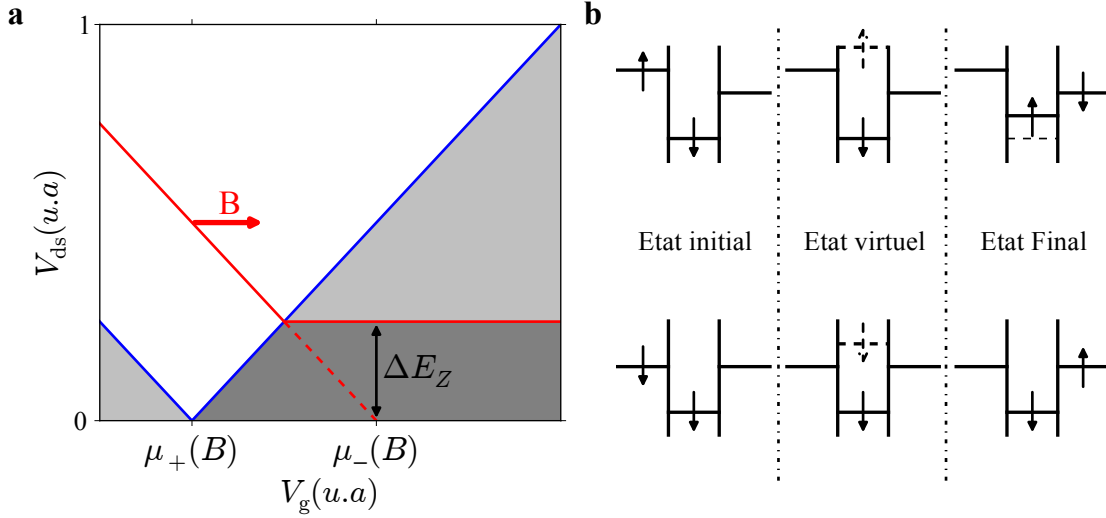


FIGURE 1.5 – Représentation du cotunneling dans le plan (V_g, V_{ds})

état d'énergie plus grand que l'électron sortant. On parle de cotunneling inélastique. Dans le deuxième cas, on comprend donc qu'il faut fournir cette différence en énergie à l'électron pour que ce type de cotunneling est lieu. Dans la suite, l'on notera cette différence d'énergie ΔE_{cot} . Dans nos système, cette énergie est fournis par la tension V_{ds} . Pour qu'un processus inélastique est lieu, il faut donc que :

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

On comprend donc que dans ce cas que le cotunneling élastique est toujours présent. 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 état d'énergie pour un état de charge donnée. On peut donc effectuer une spectroscopie d'un point quantique en mesurant le cotunneling inélastique pour chacun

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 à basse température, on avait constaté qu'en dessous d'une certaine température la conductance avait tendance non plus a augmenté mais à atteindre un maximum pour diminuer à nouveau pour attendre 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 Jung Kondo en 1964. Le modèle qu'il propose 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 magnétique du métal de telle sorte que le moment magnétique de l'impureté devient nul. Chaque impureté agit donc comme un centre de diffusion diminuant d'autant la conductance du système. La

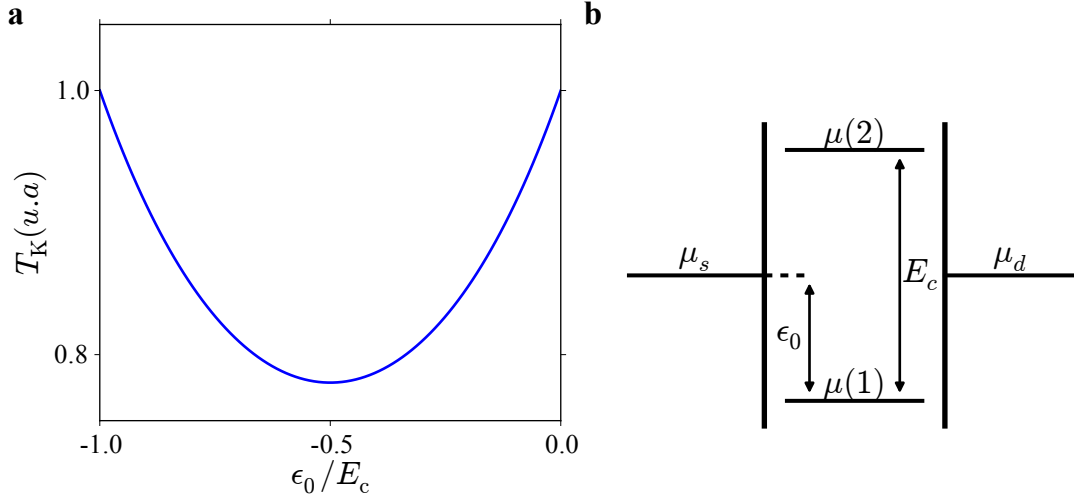


FIGURE 1.6 – Kondo

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 proposé 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 beaucoup plus simples à résoudre dans lesquels le nombre d'impureté magnétique 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 écrantement. Cependant, je ne traiterai pas en détail ici de ces effets là car je n'ai eu à utiliser l'effet Kondo que comme une sonde et non pas comme étude en soi. Je décrirai plus en détail de quelle manière nous avons procédé dans la partie résultats de cette thèse.

Je voudrais cependant 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 anti-ferromagnétique entre une impureté magnétique et les électrons de conduction. Dans notre système, l'impureté magnétique 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. Première différence avec les systèmes à base de 2DEG. Le couplage de l'impureté ne peut pas être contrôlé dans notre cas. Ce 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 point quantique et le niveau de Fermi

des électrodes. Ces trois paramètres sont représentés sur la figure ?? . La relation liant ces trois paramètres est la 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 comparativement aux 2DEG. Les énergies de charge sont en général beaucoup plus élevées ce qui peut conduire à des T_K de l'ordre de quelques dizaines de Kelvin. De plus, lorsqu'on s'éloigne d'un point de dégénérescence, ϵ_0 augmente et donc la température Kondo diminue pour atteindre son minimum au centre du diamant. On peut donc moduler T_K par l'intermédiaire de la grille.