



Projet de Recherche

LÉO FRIEDRICH, PAUL NOËL, LUCA PANAT, FÉLIX PIÉDALLU

TUTEUR : FRANK BALESTRO

Table des matières

1	État de l'art	1
1.1	L'idée d'une électronique moléculaire	1
1.2	Le premier transistor moléculaire	1
1.3	De nouvelles molécules : vers la spintronique moléculaire	1
2	Aspects théoriques	3
2.1	Le testeur sous pointes et ADWin	3
2.2	Le fullerène	4
2.3	L'électromigration	4
2.4	Le blocage de Coulomb dans un transistor à électron unique	5
3	Réalisation de l'expérience	8
3.1	La réalisation des circuits en salle blanche (faite en amont par Mr Balestro)	8
3.2	Le dépôt de Fullerène	8
3.3	Une expérience à 4.2K grâce à l'hélium liquide	9
3.3.1	L'Hélium Liquide	9
3.4	Les méthodes de mesure	9
3.4.1	La mesure de résistivité	9
3.4.2	Les précautions à prendre	10
3.5	L'électromigration	11
3.6	L'étude du blocage de Coulomb	11
4	Résultats obtenus	12
4.1	Électromigration	12
4.2	Observation du blocage de Coulomb	12
4.3	Quelques cas particuliers	13
5	Aller plus loin ? Vers de nouvelles expériences...	15
5.1	Une expérience à 20mK	15
5.2	Vers l'information quantique ?	15

Résumé

L'équipe avec laquelle s'est effectué notre projet de recherche est l'équipe Nanospintronique et Transport Moléculaire de l'institut Louis Néel. Et c'est en particulier Franck Balestro qui nous a encadré lors de l'expérience et en amont de celle-ci.



FIGURE 1 – Frank Balestro et l'équipe NanoSpin

L'équipe travaille à la manipulation et à la lecture de spins nucléaires uniques, c'est à dire relier le monde quantique au monde macroscopique et permettre à terme l'avènement de l'informatique quantique. Pour ce faire ils utilisent des molécules ayant des propriétés spécifiques : les aimants moléculaires, d'excellents candidats pour le stockage et le traitement de l'information quantique.[1] Les molécules étant de plus de très petite taille comparativement aux dimensions des transistors utilisés en électronique classique, elles pourraient permettre d'améliorer la densité des circuits. Pour résumer et comme le dit Franck Balestro l'objectif de l'équipe est "de créer l'électronique du futur avec des molécules"[2].

Les enjeux sont donc immenses, particulièrement dans un contexte où la réduction des dimensions des transistors devient de plus en plus problématique et où le besoin en puissance de calcul de nos ordinateurs devient de plus en plus important ; une "nouvelle électronique" peut être la solution.

Pour notre part nous avons réalisé un transistor à molécule unique à l'aide de fullerène. Une telle molécule ne possède pas de propriété particulière mais permet de comprendre le fonctionnement général des transistors à molécule unique. Historiquement, c'est la toute première molécule utilisée pour ce type de réalisation en 2000 par l'équipe de Park[13].

Chapitre 1

État de l'art

1.1 L'idée d'une électronique moléculaire

¹C'est en 1974 que l'idée d'utiliser des molécules uniques dans la fabrication de composants électroniques est apparue, lors d'un séminaire tenu par Arie Aviram et Mark Ratner.

Cette date peut être considérée comme la naissance de ce que l'on appelle l'électronique moléculaire. Le but étant à la fois de permettre d'aller encore plus loin dans la miniaturisation des composants en microélectronique mais aussi d'adopter une technique de fabrication basée sur l'auto-organisation de petites molécules en structure complexe : technique dite "bottom-up".

1.2 Le premier transistor moléculaire

Mais en 1974, on est encore loin de l'utilisation concrète de molécules uniques dans l'électronique, et il faudra attendre 1995 pour que la première mesure de courant à travers une molécule unique soit réalisée à l'aide d'un microscope à effet tunnel (STM).

De nombreuses autres expériences vont suivre, et en 1997 apparaît la technique de "break junction" qui consiste à effectuer la cassure d'un pont métallique sur substrat flexible en pliant le substrat. On peut alors sans STM mesurer les caractéristiques de molécules uniques, et caractériser l'influence de la taille du gap. Mais on n'a toujours pas de grille pour pouvoir permettre l'utilisation comme transistor.

Ce n'est qu'en 2000 que J.W. Park et son équipe utiliseront une technique d'électromigration² pour permettre la fabrication du premier transistor à molécule unique avec une molécule de fullerène C_{60} . D'autres groupes vont alors utiliser cette même technique en utilisant d'autres molécules et leurs propriétés, et en particulier des aimants moléculaires (SMM) pour leurs propriétés liées au spin. Mais aussi en mettant en place des expériences qui permettront d'effectuer les mesures à quelques milliKelvins.

1.3 De nouvelles molécules : vers la spintronique moléculaire

En 2006 l'utilisation de SMM débute afin de permettre la réalisation de dispositifs de spintronique moléculaire. Les équipes de H.S.J Van der Sant (à Cornell) et D.C. Ralph (à Delft) vont étudier tout d'abord l'aimant moléculaire le plus fameux, Mn_{12} , mais les résultats sont peu satisfaisants et la première réalisation d'un véritable dispositif de spintronique moléculaire est réalisée à Delft par l'équipe de Ralph en 2008 à l'aide d'une molécule de $N@C_{60}$ (atome d'azote piégé dans une molécule de fullerène). Il est possible avec une telle molécule de retrouver dans les mesures de transport ses propriétés magnétiques.

1. Cet état de l'art se base sur ceux présentés dans [3] et [4]

2. Nous présentons plus en détail l'électromigration dans une partie dédiée.

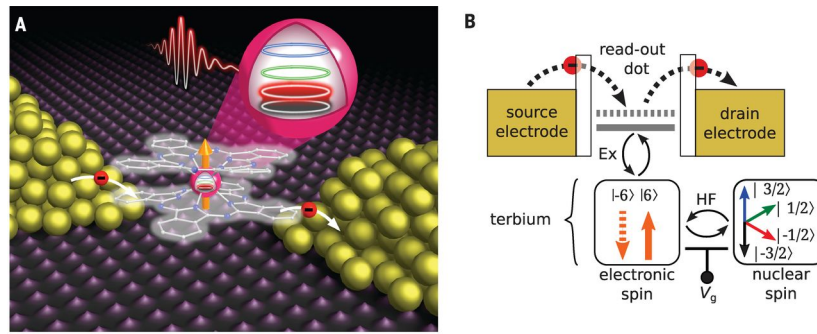


FIGURE 1.1 – Vue de la molécule de TbPc₂, et schéma de principe.

Cependant cette molécule n'est pas un aimant moléculaire, et il est donc impossible de se servir des propriétés quantiques liées au magnétisme moléculaire. Les équipes vont alors se tourner vers d'autres aimants moléculaires notamment Fe₄ (à Delft), Ni₄ (à Cornell)...etc et la molécule TbPc₂ (molécule organique avec un atome de Terbium) à l'institut Louis Néel dans l'équipe de Franck Balestro. L'aimant moléculaire TbPc₂ utilisé dans un transistor à molécule unique a permis de réaliser la lecture électrique et la manipulation quantique d'un spin nucléaire unique.

Chapitre 2

Aspects théoriques

2.1 Le testeur sous pointes et ADWin

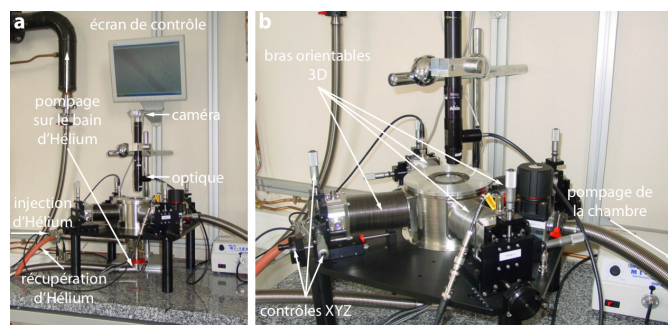


FIGURE 2.1 – Le Testeur sous Pointes

Photo disponible à <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00456601v2/document>

Pour réaliser l'électromigration, on a besoin du testeur sous pointes qui, grâce à ses quatre bras orientables supportant les pointes, permet d'imposer une rampe de tension et de mesurer simultanément la conductance. Le testeur sous pointe possède un accès optique permettant de connecter rapidement les échantillons et de les refroidir à 4,2K. Notons que le contact est moins bon qu'avec des microsoudures.

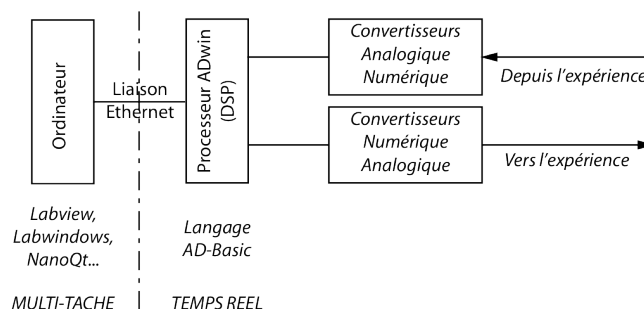


FIGURE 2.2 – Schéma de fonctionnement d'ADWin

Schéma disponible à <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00456601v2/document>

On doit disposer d'une électronique de mesure en temps réel et d'une détection synchrone : c'est le rôle d'ADWin.

La première partie constituant ADWin est l'ordinateur permettant le stockage des données et l'interface graphique. Vient ensuite le processeur propre à ADWin qui garantit la répétition de suites d'instructions toutes les 3,3ns. Ceci est une nécessité car un OS (multitâche) ne pourrait garantir

une base de temps inférieure à 10ms et compromettrait le résultat de l'électromigration. Enfin les convertisseurs génèrent et reçoivent les signaux expérimentaux.

Un des autres avantages d'ADWin est la diminution du bruit. En incrémentant bit par bit des rampes de mesures (tension, courant) et grâce à la très petite base de temps du système on peut balayer des plages entières de tension, courant, charges en des temps très faible et obtenir une très bonne précision.

2.2 Le fullerène

Les fullerènes sont des molécules composées de carbone d'un nanomètre de diamètre. Leur découverte en 1985 a donné lieu au prix Nobel de chimie 1996 et à toute une nouvelle classe de matériau massif. Le fullerène utilisé est le C_{60} , une molécule très simple de la forme d'un ballon de football.

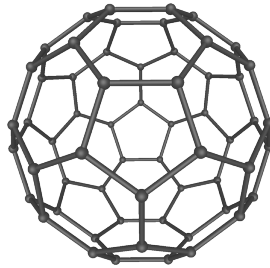


FIGURE 2.3 – Structure de la molécule de Fullerène

On dépose le fullerène C_{60} avant l'étape d'électromigration et on espère qu'une molécule tombe dans le gap créé sur le nanofil d'or. La probabilité d'occurrence est plus importante que si l'on essaye de déposer une molécule dans un gap préexistant. On essaye d'avoir des molécules uniques de C_{60} plutôt que des agrégats car la molécule unique présente une énergie de charge plus importante et un couplage à l'environnement moins fort gage de stabilité. Une dilution dans le toluène permet de caractériser si une solution est composée de molécules uniques (couleur jaune) ou d'agrégats (couleur violette).

2.3 L'électromigration

L'électromigration est un phénomène bien connu en microélectronique. Il s'agit d'un transport de matière observé dans les métaux traversés par de fortes densités de courant ; c'est une cause d'endommagement des interconnexions métalliques et donc de fiabilité dans les circuits intégrés[8]. Ce phénomène est néfaste pour la microélectronique "classique", mais son utilisation est très intéressante pour la réalisation de transistors à molécule unique. En effet il faut que la molécule soit reliée à un dispositif métallique macroscopique et donc que les électrodes (source-drain) soient séparées d'une distance nanométrique proche de la taille de la molécule ; ce qui est impossible par des méthodes de nanofabrication limitées à environ 10nm de résolution, alors qu'une résolution inférieure est possible grâce à l'électromigration[9].

Intéressons-nous maintenant à la description théorique de l'électromigration, "mise en mouvement des atomes par un métal causée par l'application d'un champ électrique". La force de transport peut être notée :

$$\vec{F} = eZ^* \vec{E}$$

où le terme Z^* se décompose en deux parties, l'une modélisant l'effet du champ électrostatique, l'autre le "vent des électrons" qui transmettent leurs mouvements aux ions.

$$Z^* = Z_{\text{électrostatique}} + Z_{\text{vent}}$$

Dans les métaux c'est principalement le vent d'électrons qui est responsable du transport, ainsi le transport de matière a lieu dans le sens de circulation des électrons[10].

Il faut maintenant pouvoir suivre l'électromigration pour pouvoir réaliser un nanogap, cela est possible grâce à une mesure en temps réel de la conductance (ou la résistance) à l'aide d'ADWin.

Au cours de l'électromigration, les propriétés de conduction vont évoluer et on peut distinguer deux régimes de conduction :

Le régime diffusif, lorsque le libre parcours moyen ($L_m \simeq 10nm$) est inférieur aux dimensions du nanofil

Le régime ballistique, lorsque le libre parcours moyen est supérieur aux dimensions du nanofil

Or dans le cas du régime balistique, d'après la formule de Landauer Buttiker, la conductance est un multiple du quantum de conductance :

$$G = G_0 \sum_{n=1}^N T_n \quad \text{où} \quad G_0 = \frac{2e^2}{h} = 77.5\mu S$$

avec les T probabilités de transmission pour les N canaux de conduction.

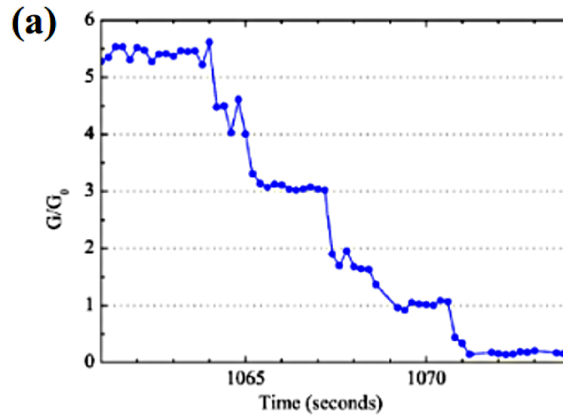


FIGURE 2.4 – Variation de G en fonction du temps à la fin d'une électromigration (au moment de l'ouverture du nanogap). On observe bien des paliers de conductance

Photo disponible à <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00515127/document>

On en déduit ainsi que si $G < G_0$ ou $R > R_0$, il n'y a plus de canaux de conduction et donc qu'on a créé un nanogap. Il suffit donc de stopper l'électromigration à cette limite de conductance dans un temps très court de l'ordre de la microseconde ce qui est possible grâce à l'électronique temps réel[11].

En réalité on stoppera plutôt notre expérience à $R > 2R_0$ qui expérimentalement assure de meilleurs résultats.

2.4 Le blocage de Coulomb dans un transistor à électron unique

¹ On considère un îlot quantique, placé entre 3 électrodes : le drain, la source et la grille. Le drain et la source sont séparés de l'îlot par des jonctions tunnels. On note V_d , V_s et V_g respectivement les tensions de drain, source et grille. De plus, on note N le nombre d'électrons à l'intérieur de l'îlot.

L'îlot possède donc une énergie électrostatique E_c .

1. Cette partie s'inspire librement du cours de nanophysique de Monsieur Thierry Ouisse de 2A PNS ainsi que des aspects théoriques présentés dans [3], [5], [10], [13] et [15] qui présentent en détail le blocage de Coulomb.

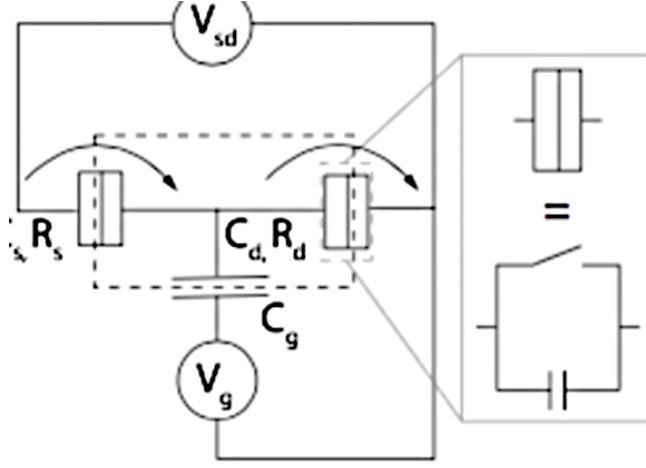


FIGURE 2.5 – Schéma équivalent du transistor

Ainsi, il va falloir apporter de l'énergie à un électron pour pouvoir le faire rentrer dans l'îlot Quantique. Si $V_{sd} > 0$, il va être plus simple d'injecter un électron dans l'îlot depuis la source plutôt que depuis le drain. Une fois l'électron apporté dans l'îlot, on modifie l'énergie à l'intérieur de l'îlot, ce qui va rendre plus difficile l'entrée d'un nouvel électron (on passe de N à $N+1$). Cette variation d'énergie doit être négative si l'on veut continuer à faire rentrer des électrons :

$$\Delta E = \frac{e}{C_1 + C_2 + C_G} \left((N + \frac{1}{2})e - C_G V_G - C_2 V_D \right)$$

ce qui donne la condition :

$$V_D > (N + \frac{1}{2}) \frac{e}{C_2} - \frac{C_G}{C_2} V_G$$

De manière analogue, si $V_{sd} > 0$, il va être plus facile de sortir un électron de l'îlot par le drain que par la source (on passe de N à $N-1$). On va cette fois ci avoir une variation d'énergie positive si l'on veut arrêter de faire rentrer des électrons dans l'îlot :

$$\Delta E = \frac{e}{C_1 + C_2 + C_G} \left(-(N + \frac{1}{2})e + C_G V_G - (C_1 + C_G) V_D \right)$$

(car il va être plus simple de rentrer un nouvel électron). Cette variation va donner la condition :

$$V_D > -(N + \frac{1}{2}) \frac{e}{C_1 + C_G} + \frac{C_G}{C_1 + C_G} V_G$$

De même, en refaisant le raisonnement pour $V_{sd} < 0$. Dans ce cas, il sera plus simple de rentrer un électron dans l'îlot à partir du drain et d'en sortir un à partir de la source. On obtient deux nouvelles conditions similaires au cas où $V_d > 0$:

$$V_D < -(N + \frac{1}{2}) \frac{e}{C_1 + C_G} + \frac{C_G}{C_1 + C_G} V_G$$

$$V_D < (N + \frac{1}{2}) \frac{e}{C_2} - \frac{C_G}{C_2} V_G$$

À présent, on peut visualiser les diamants de Coulomb et les domaines de blocage de Coulomb quand on trace les droites dans le plan (V_{sd}, V_g) . Quand on est sur une droite, on a dans l'îlot N électrons. Ces droites coupent l'espace (V_{sd}, V_g) en 2 demi-plans avec chacun une certaine condition (impossibilité de faire transiter un électron par la source ou le drain par exemple).

Quand on est à l'intérieur d'un de ces diamants, nous ne pouvons plus faire circuler d'électrons dans l'îlot. Quand nous sommes au-dessus ou en dessous d'un de ces diamants, il y a possibilité de faire rentrer puis sortir un électron un par un.

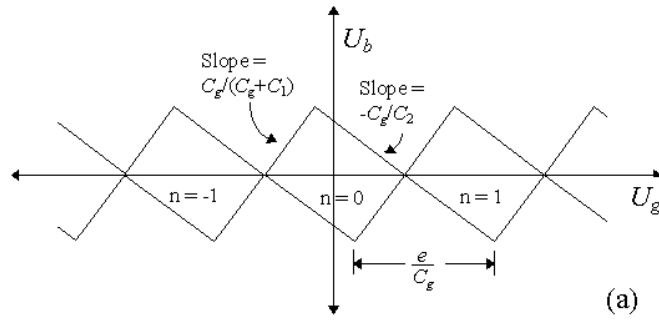


FIGURE 2.6 – Diamant de Coulomb théorique

Il y a ainsi des pics de conductance pour certaines valeurs de tension de grille lorsque la dégénérescence entre les états de charges N et $N+1$ est atteinte. On appelle ces pics, pics de Coulomb.

Notre molécule unique de fullerène peut effectivement être considérée comme un point quantique, de par sa géométrie et sa taille. En effet elle est d'une taille de l'ordre d'un nanomètre, taille comparable à la longueur d'onde de Fermi ; il est donc raisonnable de penser que les électrons sont localisés dans les trois dimensions de l'espace.

Chapitre 3

Réalisation de l'expérience

L'expérience que nous avons réalisée consiste donc à réaliser des transistors moléculaires, afin de caractériser leur comportement.

3.1 La réalisation des circuits en salle blanche (faite en amont par Mr Balestro)

La réalisation des fils d'or prend plusieurs semaines ; c'est pourquoi Frank Balestro les avait déjà réalisés en salle blanche, au CNRS, avant l'expérience. Nous avons donc commencé la journée avec 3 plaques de Al_2O_3 , avec chacune 4 groupes de 12 transistors non formés.

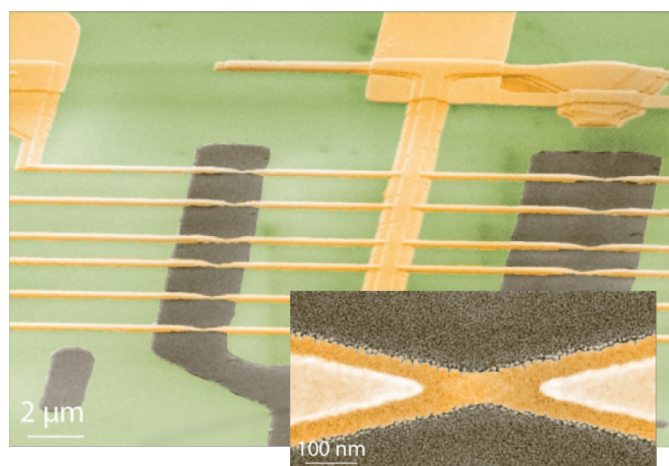


FIGURE 3.1 – Un groupe de transistors avec grille et source communes

3.2 Le dépôt de Fullerène

Nous sommes donc allés en salle propre de dépôt chimique afin de déposer sur ces plaques le Fullerène, en solution dans le Toluène. Cette solution, conservée dans un frigo, est parfaitement inerte, ce qui nous autorise à la conserver très longtemps : celle que nous avons utilisée date de 2009.

Le dépôt se fait à l'aide d'une micropipette, et sous hotte aspirante afin d'éviter toute inhalation de fullerène et toute pollution de l'échantillon. La solution est assez faible en agrégats, et ceux qui ont pu se former se trouvent essentiellement à la surface et au fond de la solution. Nous sommes donc allés récupérer la solution au milieu du bécher.

Le dépôt de fullerène n'a pas besoin d'être mesuré : 3 gouttes de solution par plaque sont suffisantes pour obtenir une probabilité acceptable qu'une molécule se glisse dans le nanogap après électromigration.

Enfin, nous avons laissé s'évaporer le Toluène naturellement.

3.3 Une expérience à 4.2K grâce à l'hélium liquide

Une fois le Fullerène déposé, nous avons fixé les plaques sur un plateau. La fixation se fait à la laque d'argent.

Dans le testeur sous pointes, l'échantillon sera dans une cavité sous vide (vide secondaire de l'ordre de 10^{-4} millibars). L'unique contact thermique avec les échantillons sera donc par ce plateau. Celui-ci doit être efficace. Sinon, les échantillons seront à haute température et nous n'aurons donc pas du tout le comportement attendu.

L'argent est un très bon conducteur thermique et la laque d'argent permet d'avoir un contact uniforme entre les échantillons et le plateau.

De plus, l'argent nous permet d'avoir une bonne mise à la masse des échantillons et donc de minimiser les risques de chocs électriques qui risqueraient de détruire les jonctions formées.

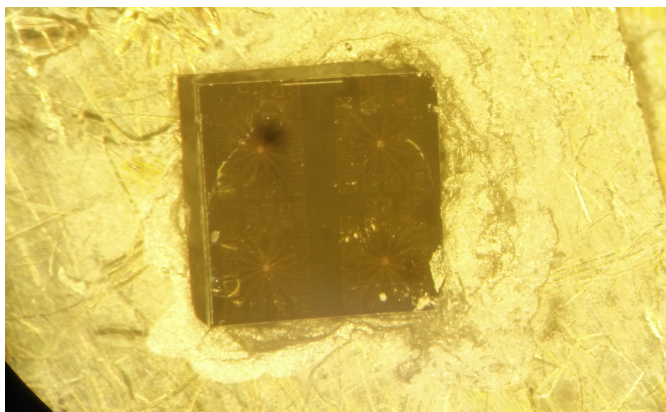


FIGURE 3.2 – Échantillon collé à l'aide de laque d'argent

Pour empêcher un maximum le réchauffement dû au rayonnement, l'échantillon est placé sous deux écrans. Le premier écran est à 10K est placé au niveau du hublot. Le deuxième écran est à 300K (température de la pièce). On peut alors efficacement refroidir à 4.2K. Au préalable, il a fallu faire le vide entre les deux écrans et l'écran intermédiaire et l'échantillon pour empêcher tout réchauffement par conduction ou convection et pour empêcher que l'air ne gèle autour de l'échantillon ce qui interdirait toute manipulation.

3.3.1 L'Hélium Liquide

Comme dit précédemment, nous pouvons effectuer cette expérience à 4.2K grâce à l'Hélium liquide. Et, heureusement, l'hélium liquide est facile d'accès à l'Institut Néel.

Il nous faut donc transporter la bouteille d'hélium liquide vide jusqu'au centre de liquéfaction, pour prendre une bouteille pleine. Il faut aussi indiquer les poids des bouteilles entrante et sortante, afin d'attribuer la consommation à tel ou tel laboratoire.

La manipulation de la bouteille d'hélium doit se faire avec précaution. En effet, le haut de la bouteille est "chaud", donc en cas de contact brusque avec l'hélium liquide, celui-ci se dilate très rapidement, ce qui transforme la bouteille d'hélium en "torpille".

3.4 Les méthodes de mesure

3.4.1 La mesure de résistivité

Afin de vérifier que nos pointes sont correctement connectées et qu'il y a bien un nanofil entre elles, on utilise un ohmmètre spécialisé délivrant des micro-ampères. En effet la largeur de transport est de



FIGURE 3.3 – Une bouteille d'Hélium Liquide et le centre de liquéfaction.

quelques atomes d'or et un ohmmètre délivrant un courant l'ordre du mA détruirait immédiatement nos échantillons. Nous polarisons nos échantillons en tension, et cherchons donc à mesurer le courant traversant les échantillons. On transforme le courant en une tension par l'intermédiaire d'un convertisseur courant-tension présentant différents facteurs, afin d'effectuer nos mesures. Lors de l'électromigration on utilise un facteur 10^3 pour mesurer des μA . Pour observer les diamants de Coulomb on mesure des faibles courant (nA), on sélectionne le facteur 10^6 sur le convertisseur.

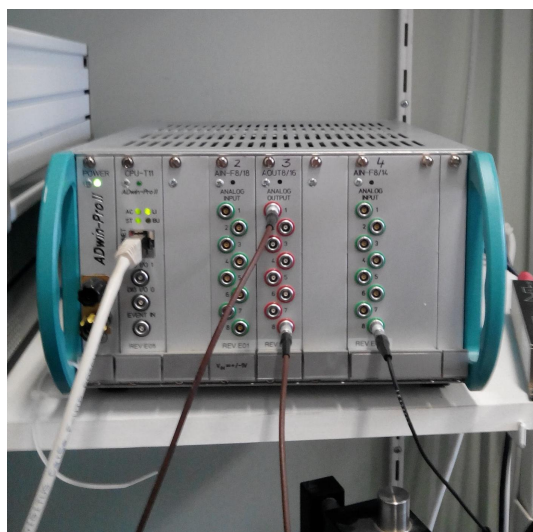


FIGURE 3.4 – Branchements de l'interface Adwin lors de l'électromigration, on peut voir sur la droite le convertisseur courant-tension

3.4.2 Les précautions à prendre

Lorsqu'on manipule de tels échantillons, il faut bien sûr prendre quelques précautions afin de ne pas les détériorer définitivement. Dans le testeur sous pointes, les échantillons sont à l'abri des perturbations extérieures : la structure de l'appareil, et particulièrement le plateau sur lequel les échantillons sont posés, sont mis à la masse. Le principal risque vient donc des pointes : Si on les fait bouger alors qu'une tension est appliquée, le risque de pics de tension est très élevé. Avant chaque mesure et déplacement des pointes, nous faisons donc attention à les mettre à la masse. Cela peut

être répétitif, mais absolument indispensable.

3.5 L'électromigration

L'électromigration consiste, comme nous l'avons expliqué précédemment, à appliquer à l'échantillon une tension suffisamment forte pour "détruire" le fil d'or et créer un nanogap. ADWin nous permet d'avoir une mesure suffisamment rapide du courant et d'arrêter l'électromigration suffisamment rapidement pour ne pas risquer d'abîmer le nanogap créé. Nous pouvions observer en temps réel les courbes de courant et de résistivité de l'échantillon. Pour un échantillon correct nous observions bien une caractéristique classique d'électromigration, dont la chute par paliers de courant. Pour un échantillon abîmé – ce fut malheureusement le cas pour beaucoup, dû à un problème en amont –, nous pouvions observer une résistivité qui croît linéairement dès l'application de la tension.

Bien que cette mesure ait été réalisée nous n'avons pas pu en tirer de résultats exploitables. En effet, seul un transistor sur 100 en moyenne le permet.

3.6 L'étude du blocage de Coulomb

Après avoir effectué l'électromigration avec succès sur un échantillon, il nous fallait vérifier la présence d'une molécule de Fullerène dans le nanogap tout juste créé. Pour cela, on mesure le courant I_d en faisant varier la tension appliquée à la grille. Si aucun courant n'est observé, alors aucune molécule de Fullerène ne s'est logée à l'intérieur du nanogap. Si l'on observe des pics de courant pour certaines valeurs discrètes de V_g , c'est que l'on est en présence d'une boîte quantique. Lorsque les conditions sont vérifiées par rapport aux équations établies dans la partie théorique, le courant peut passer ou non. On contrôle donc un courant à partir d'une tension appliquée à une électrode de grille : on vient donc de réaliser un transistor à molécule unique.

On peut aussi observer le courant pour des valeurs variables de V_g et V_{ds} . Le courant I_d mesuré est représenté en 3ème dimension ou en couleurs. Nous pouvons alors remarquer la forme caractéristique des diamants de Coulomb, dont la frontière correspond aux pics de courant évoqués précédemment.

Chapitre 4

Résultats obtenus

4.1 Électromigration

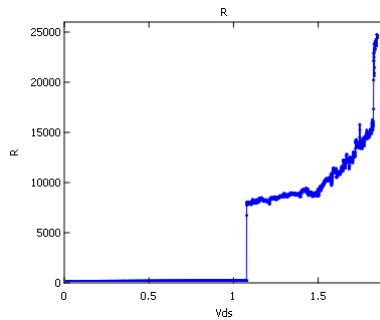


FIGURE 4.1 – La caractéristique $R = f(V_{ds})$

Pour la réalisation de l'électromigration, on applique une rampe de tension aux bornes du nanofil allant de 50mV à 2,5V avec une vitesse de 5mV/s. L'énergie est dissipée par effet Joule et induit des vibrations du réseau cristallin. Après 1,2V on commence à casser petit à petit la jonction jusqu'à créer le nanogap. Expérimentalement on observe $R_{max}=12,9k\Omega$ pour un unique canal d'or et $R_{max}=25k\Omega$ au moment de la formation du nanogap. On arrête donc l'électromigration lorsque l'on atteint $R=25k\Omega$. Grâce au système de mesure en temps réel on peut obtenir facilement la courbe $R = f(V_{ds})$. Si l'électromigration est réussie on obtient une courbe du type de celle ci dessus, il est possible cependant que le nanofil soit déjà endommagé avant électromigration (résistance déjà de l'ordre de quelques kOhms).

La mobilité des atomes est activée par la température. Localement (au niveau du nanogap) la température est de l'ordre de 400K lors de l'électromigration [11]. Cependant l'arrêt de l'électromigration en une microseconde, et les dimensions concernées très faibles empêchent une élévation globale de l'échantillon en température.

4.2 Observation du blocage de Coulomb

Pour savoir si une molécule de C_{60} est tombée dans le nanogap, On trace la caractéristique $I(V)$ pour différentes valeurs de la tension de grille V_g . L'influence de la boîte quantique produira différentes caractéristiques, au contraire les caractéristiques seront toutes confondues si le gap est vide.

Sur la courbe $V_{ds}(V_g)$ on cherche à observer les diamants de Coulomb. Les différents pics mesurés doivent être également présents lorsqu'on envoie une tension drain-source négative, on est alors certain d'avoir non pas du bruit mais bien un pic lié au blocage de Coulomb. Malheureusement nous n'avons pas pu obtenir des diamants de Coulomb exploitables. Selon Franck Balestro, un transistor sur 100 donne des résultats d'une bonne qualité.

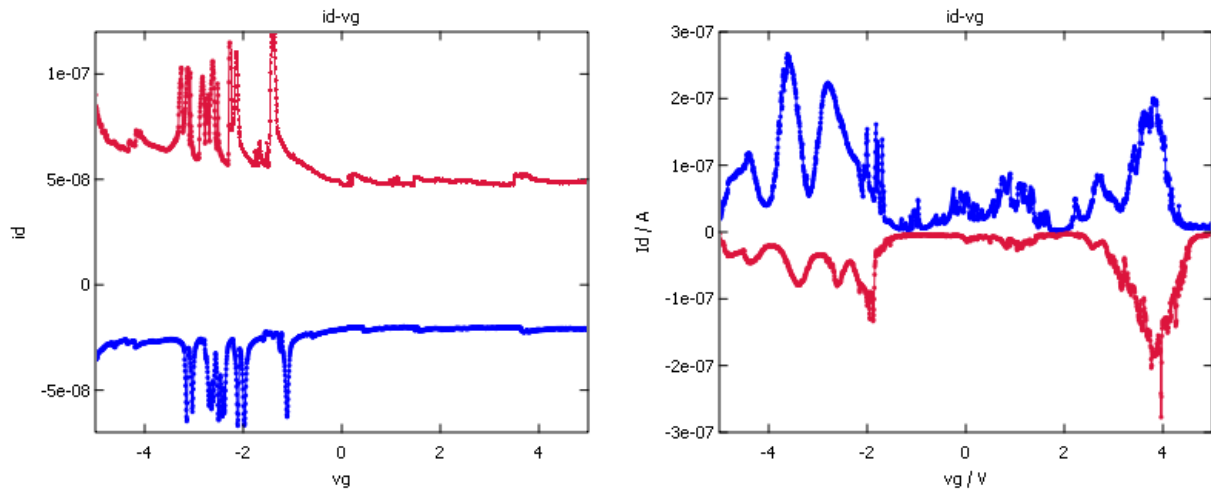
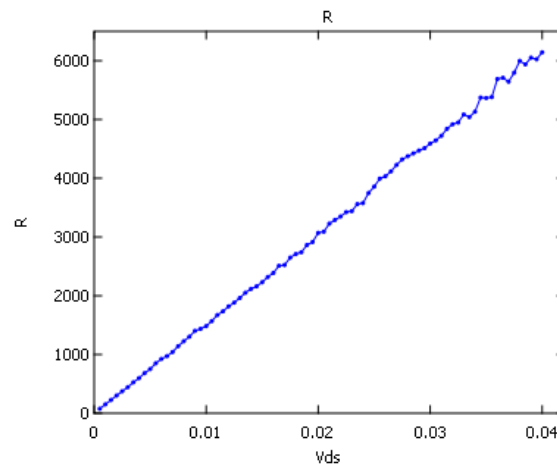


FIGURE 4.2 – $I_d=f(V_g)$, pour deux transistors différents

On observe bien des pics de Coulomb (ici il pourrait s'agir d'un unique pic), et leur symétrie.

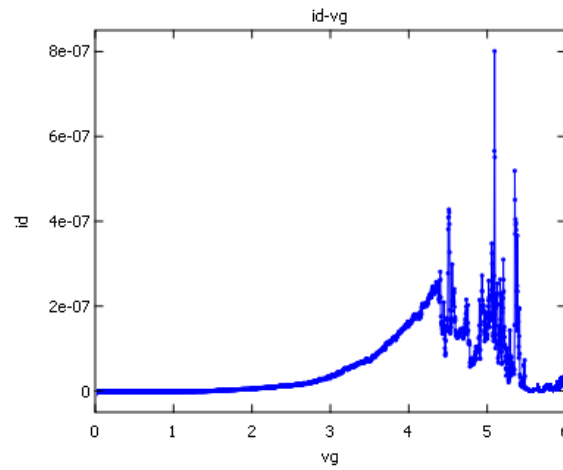
4.3 Quelques cas particuliers

Après ces considérations générales étudions quelques cas particuliers, et plus précisément des observations obtenues lorsque des problèmes ont été rencontrés au cours de l'expérience.



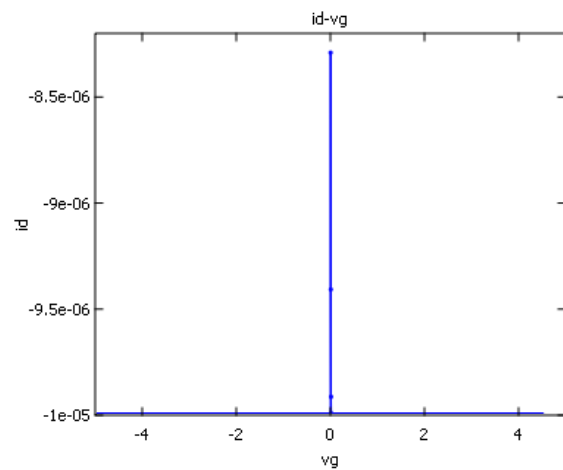
Nanofil endommagé avant électromigration

Dans ce cas, le nanofil a déjà été endommagé avec que l'on effectue l'électromigration. La résistance du fil est donc constante. Cependant, nous imposons une rampe de tension sur le nanofil avec le testeur sous pointe. On a d'après la loi d'Ohm $R=U/I$, donc si l'on impose une rampe de tension, on en aura une pour la résistance du nanofil. Ici, le transistor sera inutilisable.



Grille endommagée avant électromigration

On a toujours $I_d(V_g)$. On peut voir un fonctionnement de transistor, c'est à dire des pics de courants pour certaines valeurs de tension de grille mais on observe à partir d'une certaine valeur de V_g que le courant I_d est toujours supérieur à 0. On a donc toujours un courant qui circule à travers la molécule. De plus, on observe beaucoup de bruit pour V_g supérieur à 4V. La grille est endommagée, le transistor ne fonctionnera pas normalement.



Grille détruite (au delà de $V_g=7V$ on détruit la grille)

Quand on applique une tension trop grande à la grille, celle-ci claque. On n'a plus aucun contrôle sur le transistor à molécule unique. On a passage du courant quand $V_g=0$, sinon il n'y a pas de courant qui passe par le drain.

Chapitre 5

Aller plus loin ? Vers de nouvelles expériences...

5.1 Une expérience à 20mK

Les expériences actuelles de l'équipe NanoSpin n'utilisent ni des molécules de Fullerène, ni un testeur sous pointes et n'ont pas lieu à 4,2K. De plus le convertisseur courant-tension n'est pas un modèle commercial mais a été fabriqué au CNRS pour permettre des mesures ultra bas bruit.

En effet la molécule de Fullerène n'ayant aucune propriété particulière elle a été rapidement remplacé par des molécules aux propriétés plus intéressantes, notamment les aimants moléculaires dont nous parlions en introduction. Par exemple TbPc2 dans le cas de l'équipe de nanospintronique et transport moléculaire. Les contacts par pointes sont aussi remplacés par des micro-soudures qui possèdent plusieurs avantages sur le contact par pointes. Bien qu'une telle technique soit plus délicate et plus longue à mettre en place et ne permette de tester les transistors qu'en faible nombre, elle a comme intérêts majeurs de réduire le bruit, et permettre un contact parfait sur des durées très longues (certaines expériences sont en cours depuis plus d'un an)



FIGURE 5.1 – Photographie du réfrigérateur à dilution et de l'ensemble du banc de mesure

Pour finir, l'expérience actuelle se déroule actuellement à des températures de 30mK dans un réfrigérateurs à dilution, la température de électronique étant elle de l'ordre de 80mK [10]. Le principe du réfrigérateur à dilution est comparable à celui d'un réfrigérateur classique, des détentes de Joule-Thomson successives pour refroidir l'hélium à de très basses températures. Le réfrigérateur étant constitué de différents étages dont les températures vont en diminuant pour limiter les pertes. Il faut cependant attendre plusieurs heures pour qu'une température de 30mK soit atteinte.

5.2 Vers l'information quantique ?

L'information quantique se définit comme “la théorie de l'utilisation des spécificités de la physique quantique pour le traitement et la transmission de l'information” [18]. L'utilisation de telles propriétés permettraient d'obtenir des supports et du traitement de l'information bien plus efficaces qu'actuellement.

Bien que l'ordinateur quantique ne soit qu'un but à long (voire très long) terme, la réalisation de transistors de spin à base d'aimants moléculaires est possible. La manipulation et la lecture

de spins nucléaires uniques i.e. l'utilisation des propriétés quantiques des aimants moléculaires est permise grâce à des dispositifs comparables à ceux que nous avons utilisés. Ces aimants moléculaires utilisés comme qubits sont ainsi d'excellents candidats pour le stockage de l'information quantique, ils respectent en effet les 5 critères de Divincenzo pour le traitement de l'information quantique.[12] Les critères de Divincenzo définissant quels qubits sont exploitables et assez stables pour effectuer des calculs utiles.

Conclusion

Durant ce projet de recherche, nous avons vu comment réaliser un transistor de type SET (Single Electron Transistor) à l'aide d'une molécule de fullerène. Cette idée de créer des transistors à partir de molécules organiques est apparu dans les années 1970. Ce n'est seulement que dans les années 1990 que nous verrons l'apparition des premiers transistors à molécule unique.

La réalisation d'un tel transistor se fait évidemment en plusieurs étapes :

La première consiste à créer des nanofils d'or sur une plaque de Al_2O_3 où nous déposerons ensuite les molécules de fullerène. Ce dépôt se fait avant l'électromigration car cela augmente les chances qu'une molécule se loge dans un nanogap créée par l'électromigration.

Vient ensuite l'étape de l'électromigration. Elle consiste à appliquer un courant tel que les électrons emportent les atomes d'or qui constituent les nanofils grâce à leur énergie cinétique. En créant ces nanogaps, une molécule de fullerène peut se loger à l'intérieur et ainsi créer notre boîte quantique.

Le dépôt de fullerène et la création de nanogaps peuvent se suivre en direct grâce au testeur sous pointes et le logiciel ADWin. Par exemple, il permet de suivre en direct l'augmentation de la résistance du nanogap durant l'électromigration, de savoir s'il reste des canaux par où passent les électrons et donc de savoir si le nanogap a été formé (on trouvera une résistance $R_{\text{max}}=25\text{k}\Omega$). La caractéristique $I(V_g)$ permettra quant à elle de savoir si oui ou non une molécule de fullerène est dans le nanogap. Ces instruments permettent donc à la fois la création des SET et la mesure de leurs caractéristiques.

Cette technologie a vu le jour dans les années 90. Mais la difficulté d'utilisation de ce type de transistor, notamment parce qu'il faut se placer à de très basse température (4,2K). Les chercheurs actuels ont remplacé la molécule de fullerène par de nouvelles molécules, le TbPc_2 par exemple. Cette molécule est très utilisée car elle permet la lecture et la manipulation d'un spin nucléaire. Mais la recherche ne s'arrête pas là : effectivement, l'équipe de Franck Balestro travaille actuellement avec plusieurs équipes de chimistes à travers le monde dans le but de trouver de nouvelles molécules intéressantes pour avancer dans le domaine de la spintronique.

Avis sur le projet de recherche

Cet exercice de projet de recherche a été très enrichissant pour toute personne s'intéressant au monde de la recherche. Il nous a permis dans un premier temps de nous intéresser à un sujet très actuel sur lequel des chercheurs de Grenoble et du monde entier s'intéressent en ce moment. De plus, ce sujet était en relation direct avec le cours de Nanophysique dispensé en 2e année à Phelma en PNS. Pouvoir mettre en pratique des phénomènes jusque là seulement étudié en théories est évidemment très grisant.

L'exercice du 1er semestre nous a permis de voir comment débiter et menée une bibliographie sur un sujet que nous maîtrisons pas dans sa globalité. Il nous a fallu une certaine dose d'indépendance et de travail personnel pour comprendre les tenants et les aboutissants de ce sujet L'expérience menée au 2e semestre à durée une journée et il nous est apparu clair qu'il faut s'armer de patience si l'on veut trouver des résultats fiables et exploitables. Elle nous a aussi permis de suivre le quotidien d'un chercheur, bien que l'expérience menée n'était quant à elle pas tout à fait d'actualité.

Bibliographie

- [1] Page de l'équipe NanoSpin. <http://neel.cnrs.fr/spip.php?rubrique51>.
- [2] Interview de Franck Balestro site UJF. <https://www.ujf-grenoble.fr/node/8357>.
- [3] Romain Vincent. Spintronique moléculaire : Étude de la dynamique d'un spin nucléaire unique. https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00945672/file/pdf2star-1383124819-these_vincent_romain_archivage_2012.pdf, 2014.
- [4] Florian Elste. Quantum transport through single molecule devices : spin and vibration. http://www.diss.fu-berlin.de/diss/servlets/MCRFileNodeServlet/FUDISS_derivate_000000003863/thesisELSTE.pdf, avril 2008.
- [5] Andreas Fuhrer and Carina Fasth. Coulomb blockade in Quantum Dots. http://www.ftf.lth.se/fileadmin/ftf/Course_pages/FFF042/cb_lecture07.pdf, avril 2007.
- [6] Article Wikipédia sur le fullerène. <http://fr.wikipedia.org/wiki/Fullerène>.
- [7] C. Joachim, H. Tang, and J.K. Gimzewski. Physical principles of the single C60 transistor effect. <http://www.chem.ucla.edu/dept/Faculty/gimzewski/publications/149-1998PhysicalReviewB.pdf>, 1998.
- [8] Lise Doyen. Caractérisation électrique de l'endommagement par électromigration des interconnexions en cuivre. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00437444/document>, 2009.
- [9] Aurore Mangin. Transport électronique dans des nanocassures pour la réalisation de transistors à molécule unique. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00515127/document>, 2012.
- [10] Nicolas Roch. Transistors à molécule unique des effets kondo exotiques à la spintronique moléculaire. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00456601v2/document>, mars 2010.
- [11] Stéphanie Girod. Vers la mesure de nano-objets uniques, réalisation de nanogaps par électromigration. https://tel.archives-ouvertes.fr/file/index/docid/727574/fileName/ThA_se_GIROD_Stephanie.pdf, 2012.
- [12] Stefan Thiele. Read-out and coherent manipulation of an isolated nuclear spin using a single-molecule magnet spin-transistor. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00984973/document>, avril 2014.
- [13] Jiwoong Park. Electron transport in single molecule transistor. http://www.lassp.cornell.edu/lassp_data/mceuen/homepage/Publications/Thesis_JPark.pdf, 2003.
- [14] R. Hanson, L. P. Kouwenhoven, J. R. Petta, S. Tarucha, and L. M. K. Vandersypen. Spins in few electrons quantum dots. http://kouwenhovenlab.tudelft.nl/wp-content/uploads/2011/10/190-Spins_in_few-electron_.pdf, octobre 2007.
- [15] Laetitia Marty. Effet de champ et électronique à un électron dans des nanotubes de carbone auto-assemblés par CVD assistée d'un filament chaud. http://perso.neel.cnrs.fr/vincent.bouchiat/page_personnelle_de_Vincent_Bouchiat/Theses_files/thesis_marty.pdf, octobre 2004.
- [16] Paul Sabatier. Conception et réalisation d'un nouveau capteur de gaz passif communicant à transduction RF. http://thesesups.ups-tlse.fr/1028/1/Hallil_Hamida.pdf, Novembre 2011.
- [17] Site Lakeshore sur les testeurs sous pointes. <http://www.lakeshore.com/products/Cryogenic-Probe-Stations/Pages/Cryogenic-Probe-Stations.aspx>.

- [18] Bellac Le. Introduction à l'informatique quantique. <https://cel.archives-ouvertes.fr/cel-00092955/document>, 2006.