Transitions de phase quantiques dans les systèmes désordonnés de basse dimension

François Couëdo

▶ **To cite this version:**

François Couëdo. Transitions de phase quantiques dans les systèmes désordonnés de basse dimension. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2014. Français. NNT : 2014PA112065 . tel-00990782

HAL Id: tel-00990782
https://theses.hal.science/tel-00990782

Submitted on 14 May 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PARIS-SUD

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'Université Paris-Sud

Discipline : **Physique**

préparée au **Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière**

dans le cadre de l'École Doctorale **Physique de la Région Parisienne (ED 107)**

présentée et soutenue publiquement
par

François Couëdo

le 10 avril 2014

Sujet :

Transitions de phase quantiques dans les systèmes désordonnés de basse dimension

Directrice de thèse : **Mme. Claire Marrache-Kikuchi**

Jury composé de :

Mme. Lara Benfatto	Rapporteur
M. Vincent Bouchiat	Examinateur
M. Claude Chapelier	Rapporteur
M. Aviad Frydman	Examinateur
M. Julien Gabelli	Invité
M. Christian Glattli	Examinateur
Mme. Claire Marrache-Kikuchi	Directrice de thèse
M. Marino Marsi	Président

Résumé

La supraconductivité s'établit par une organisation collective des électrons, décrite dans le cadre de la théorie BCS par une même fonction d'onde macroscopique. En présence de fort désordre, la situation est plus complexe : le désordre induit un renforcement des interactions coulombiennes et une localisation des électrons, s'opposant à l'établissement de la supraconductivité. Pour un désordre critique, la supraconductivité est détruite et le système devient métallique ou isolant. À 2D, en l'absence de fortes interactions coulombiennes, la théorie de la localisation d'Anderson interdit l'existence d'un état métallique : le désordre induit une Transition Supraconducteur-Isolant (TSI).

Durant cette thèse, nous avons étudié les propriétés de transport à très basse température de films minces amorphes de Nb_xSi_{1-x}. Nous avons effectué des mesures de résistance à basse fréquence à travers la TSI et initié des mesures d'impédance complexe à hautes fréquences (quelques GHz), afin de sonder la dynamique du système à travers la TSI.

L'étude du transport statique s'est focalisée sur l'évolution du Nb_xSi_{1-x} avec le recuit. Ce paramètre induit une variation progressive du désordre microscopique de notre système, ce qui nous a permis d'étudier finement la TSI. Nous avons ainsi mis en évidence deux états dissipatifs, séparant les états supraconducteurs et isolants, et non-prédits par les théories actuelles.

Par ailleurs, nous avons mis au point un dispositif de mesure de réflectométrie micro-onde large bande. Nous avons en particulier développé une méthode de calibration, utilisant non pas la mesure de références externes comme il est usuel, mais un ensemble d'hypothèses sur la réponse électrodynamique des échantillons. Cette méthode permet de s'affranchir de l'environnement micro-onde de ceux-ci. Les résultats obtenus permettent une première validation de cette démarche et constituent donc un premier pas vers la détermination de la réponse dynamique absolue du système à travers la TSI.

Abstract

Superconductivity is established by the collective organization of electrons, then described within the BCS theory through a single macroscopic wave function. In the presence of strong disorder, the situation becomes more complex : disorder enhances Coulomb interactions and induces the localization of electrons. These two phenomena act against superconductivity. For a critical disorder, the superconducting state is destroyed and the system becomes either metallic or insulating. In 2D, in the absence of strong Coulomb interactions, the theory of Anderson localization prevents the existence of a metallic state. Disorder thus induces a Superconductor-Insulator Transition (SIT).

We have studied the transport properties of amorphous Nb_xSi_{1-x} thin films at very low temperature. We have performed resistance measurements at low frequencies through the SIT and initiated measurements of the complex impedance at higher frequencies (a few GHz) in order to probe the dynamics of the system through this quantum phase transition. The study of the static properties of Nb_xSi_{1-x} films have focused on the effect of annealing. This parameter induces a gradual variation of the microscopic disorder of this system, which allowed us a very fine tuning of the SIT. We have thus evidenced two dissipative states, non-predicted by the current theories of the SIT, which separate the superconducting and insulating ground states.

In parallel, we have set up a broadband microwave reflectometry experiment. In particular, we have developed a calibration procedure based on hypotheses on the electrodynamic response of the samples and not on the measure of external references as it is usual. This method allows us to measure the sample's response independently from the experimental setup. The results we have obtained provide a first validation of this approach and therefore constitute a first step towards the determination of the absolute dynamical response of the system through the SIT.

Table des matières

Introduction **1**

I État de l'art **3**

1 Désordre, interactions et supraconductivité **5**
1.1 Localisation par le désordre 6
1.1.1 Localisation faible 6
1.1.2 Localisation forte 8
1.1.2.1 Minimum de conductivité de Mott 8
1.1.2.2 Théorie d'échelle de la localisation 10
1.1.2.3 Transport par conduction thermiquement activée 12
1.2 Désordre et interactions électron-électron 13
1.2.1 Effet des interactions électron-électron du coté métallique 13
1.2.1.1 Correction à la densité d'états 13
1.2.1.2 Correction à la conductivité 15
1.2.2 Effet des interactions électron-électron du coté isolant 15
1.3 Désordre et supraconductivité 17
1.3.1 Supraconductivité à 2D : Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless 17
1.3.2 Systèmes homogènes et granulaires 20
1.3.3 Théories de la transition supraconducteur-isolant 22
1.3.3.1 La TSI : une transition de phase quantique 23
1.3.3.2 Modèles Bosoniques 23
1.3.3.3 Modèles Fermioniques 27
1.3.4 Supraconductivité inhomogène 30
1.3.4.1 Localisation et supraconductivité 30
1.3.4.2 Interactions et supraconductivité 32
1.3.4.3 Faits expérimentaux 34
1.4 Questions ouvertes et situation de notre travail 36
1.4.1 Quel diagramme de phases ? 36
1.4.1.1 Point de vue théorique 36
1.4.1.2 Point de vue expérimental 37
1.4.1.3 Effet de la dimensionnalité : Cas 2D 39
1.4.2 Situation de notre travail 39

II Transport statique **41**

2 Dispositifs expérimentaux **43**
2.1 Synthèse et contrôle des films de Nb_xSi_{1-x} 44

2.1.1 Fabrication des échantillons 44
2.1.2 Géométrie des films 45
2.1.3 Caractérisation par RBS 46
2.1.4 Recuit des échantillons 46
2.2 Morphologie des films 47
2.2.1 Morphologie des films non-recuits 47
2.2.1.1 Caractérisation par microscopie à force atomique 47
2.2.1.2 Caractérisation par microscopie à transmission électronique . 47
2.2.2 Évolution en recuit 49
2.3 Mesures de transport à très basse température 50
2.3.1 Cryogénie 50
2.3.1.1 Principe général 50
2.3.1.2 Thermométrie 50
2.3.1.3 Puissances parasites 51
2.3.2 Mesure de résistances basse impédance à basses fréquences 53

3 Caractéristiques électroniques générales du a-Nb_xSi_{1-x} 55
3.1 Transport électronique et morphologie des films 56
3.2 Effets de la composition 57
3.2.1 Évolution de la conductivité avec x 58
3.2.2 Évolution de $T_{c,bulk}$ avec x 58
3.2.3 Interprétation des effets de composition 59
3.3 Effets du recuit 60
3.3.1 Évolution de la conductivité avec le recuit 60
3.3.2 Évolution de la T_c avec le recuit 62
3.3.3 Interprétation de l'effet du recuit 63
3.4 Effets de l'épaisseur 64
3.4.1 Évolution de la résistivité avec l'épaisseur 64
3.4.2 Évolution de la T_c avec l'épaisseur 65
3.5 Comparaison des effets de composition, d'épaisseur et de recuit 66
3.5.1 Comparaison des effets de recuit et de composition 67
3.5.2 Comparaison des effets de recuit et d'épaisseur 67

4 Résultats expérimentaux 69
4.1 Présentation générale des résultats 70
4.1.1 Évolution en épaisseur 70
4.1.2 Évolution en recuit 71
4.1.3 Possibles effets parasites 74
4.2 Analyse des résultats 76
4.2.1 Dimensionnalité des échantillons 76
4.2.1.1 Supraconductivité 77
4.2.1.2 Localisation 78
4.2.1.3 Interactions coulombiennes 78
4.2.2 Quantification du désordre 79
4.2.3 Transition Supraconducteur - Métal 1 80
4.2.4 Transition Métal 1 - Métal 2 80
4.2.4.1 Évolution en recuit : deux régimes dissipatifs 82
4.2.4.2 Évolution en l'épaisseur 86
4.2.5 Transition Métal 2 - Isolant 88
4.2.5.1 Propriétés du régime Métal 2 88

4.2.5.2 Propriétés du régime Isolant . . . 93
4.3 Diagramme de phase et interprétation . . . 97
4.3.1 Diagramme de phase . . . 97
4.3.2 Effet de l'épaisseur . . . 100
4.3.3 Tentative d'interprétation . . . 100
4.3.4 Questions ouvertes . . . 102

III Transport dynamique 104

5 Contexte : Électrodynamique des supraconducteurs désordonnés 106
5.1 La fréquence comme sonde des transitions de phase quantiques . . . 107
5.2 Électrodynamique dans le cadre BCS . . . 108
5.2.1 Modèle à deux fluides . . . 108
5.2.2 Théorie de Mattis-Bardeen . . . 110
5.2.2.1 Expression théorique . . . 110
5.2.3 Faits expérimentaux . . . 112
5.3 Fluctuations supraconductrices dans les films minces . . . 113
5.3.1 Fluctuations thermiques supraconductrices . . . 113
5.3.2 Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless . . . 116
5.4 Transition supraconducteur-isolant . . . 117
5.4.1 Effets des fluctuations mésoscopiques . . . 117
5.4.2 Effets des interactions coulombiennes . . . 118
5.4.3 Persistance de paires de Cooper dans l'état isolant . . . 119
5.4.4 État métallique intermédiaire . . . 119
5.5 Situation de notre travail . . . 119

6 Dispositifs expérimentaux 122
6.1 Fabrication des échantillons pour les mesures micro-ondes . . . 123
6.1.1 Contraintes sur le design et la synthèse des échantillons . . . 123
6.1.1.1 Caractéristiques de la ligne de transmission . . . 123
6.1.1.2 Design de l'échantillon . . . 124
6.1.2 Fabrication des échantillons . . . 127
6.1.2.1 Techniques de structuration par lithographie optique . . . 127
6.1.2.2 Étapes de fabrication pour la géométrie microstrip . . . 127
6.2 Réflectométrie micro-ondes à très basse température . . . 129
6.2.1 Réflexion vs. Transmission . . . 129
6.2.1.1 Principes de mesure . . . 129
6.2.1.2 Sensibilité . . . 130
6.2.2 Dispositifs de mesure micro-ondes à basse température . . . 131
6.2.2.1 Contraintes expérimentales . . . 131
6.2.2.2 Cryogénie . . . 134
6.2.2.3 Installation et caractérisation du montage . . . 136

7 Calibration du dispositif de mesure 142
7.1 Caractéristiques générales des échantillons . . . 143
7.1.1 Caractéristiques de transport à basse fréquence des films de Nb_xSi_{1-x} 143
7.1.2 Effet de proximité à l'interface Pt/NbSi . . . 144
7.1.3 Modélisation électro-cinétique des échantillons . . . 146
7.2 Principe de la calibration . . . 150

7.2.1 Idée générale . . . 150
7.2.2 Modélisation du dispositif de réflectométrie . . . 150
7.3 Calibration à température ambiante . . . 152
7.4 Calibration à basse température . . . 154
7.4.1 Évolution de la réponse du dispositif de mesure avec la température . 154
7.4.2 Procédure de calibration « standard » . . . 154
7.4.3 Procédure de calibration utilisant l'échantillon comme référence(s) . . 155
7.4.3.1 Principe général . . . 157
7.4.3.2 Définition des plans de calibration . . . 158
7.5 Résultats de la calibration . . . 160
7.5.1 Résultats pour l'échantillon STRF 35 . . . 160
7.5.1.1 Évolution de l'impédance $Z(T, \omega)$ . . . 160
7.5.1.2 Évolution de la conductance $G(T, \omega)$ . . . 162
7.5.2 Autres échantillons . . . 167
7.6 Conclusions et perspectives . . . 170
7.6.1 Conclusions . . . 170
7.6.2 Perspectives . . . 171

A Fabrications des échantillons micro-ondes **175**

B Calcul du Fabry-Pérot de l'échantillon **177**

C Modélisation du dispositif de réflectométrie et calibration **181**

D Calibration prenant en compte les interférences (Fabry-Pérot) **183**

E Calibration : choix de la température de référence T_2 **187**

Bibliographie **191**

Introduction

Dans le cadre de la théorie BCS, la supraconductivité s'établit par une organisation collective des électrons, décrits par une même fonction d'onde macroscopique. En présence de fort désordre, la situation devient plus complexe. Le désordre induit en particulier une localisation des états électroniques, d'autant plus forte que la dimensionnalité du système est réduite. La coexistence de tels états localisés avec un ordre supraconducteur est une problématique particulièrement intéressante puisque les deux phénomènes semblent directement opposés : alors que la localisation induit une limitation de l'extension spatiale des états électroniques, la supraconductivité tend à établir une cohérence de phase macroscopique. À cela s'ajoute le renforcement des interactions coulombiennes par le désordre, entrant en compétition avec l'interaction attractive responsable de l'appariement supraconducteur.

À 3D, les états électroniques peuvent être localisés ou délocalisés selon le degré de désordre du système. La destruction de la supraconductivité par le désordre peut alors induire une transition vers un état métallique ou isolant selon le système considéré. La problématique qui nous intéresse dans cette thèse est l'évolution de ces effets dans la limite 2D, où la théorie de la localisation d'Anderson interdit l'existence d'un état métallique en l'absence d'interactions électron-électron. Une Transition Supraconducteur-Isolant (TSI) est alors prédite.

Nous allons nous focaliser sur le cas de films minces amorphes de Nb_xSi_{1-x}, dans la limite 2D pour l'existence de la supraconductivité. Ce matériau est un système modèle pour l'étude des effets du désordre sur la supraconductivité : par une variation de la composition de cet alliage, de son épaisseur ou par un recuit, nous pouvons en effet modifier le niveau de désordre de ce système, et en modifier l'état fondamental. La comparaison de ces différents paramètres nous permet d'aborder la question des mécanismes à l'origine de la modification du désordre et de leur description.

Après une première partie consacrée à l'introduction des différents concepts à l'origine de la TSI, nous présenterons l'étude des propriétés de transport à basse fréquence ($f \lesssim 100$ Hz) des films de a-Nb_xSi_{1-x}, que nous avons menée à très basse température ($T < 10$ mK), afin de sonder le comportement critique du système à travers la TSI. Nous nous focaliserons plus particulièrement sur l'utilisation du recuit comme moyen de varier le désordre microscopique d'un seul et même film, permettant ainsi une étude très fine de la destruction de la supraconductivité.

Parallèlement à ces mesures de transport à basse fréquence, nous avons initié une étude de la réponse dynamique du Nb_xSi_{1-x} à très basse température. Nous avons mis au point un dispositif de mesure d'impédance par réflectométrie, associant une large bande spectrale (quelques GHz) dans la gamme des micro-ondes aux très basses températures ($T < 100$ mK). Nous préciserons le développement expérimental réalisé lors de cette thèse, et en particulier le mise au point d'une procédure originale de calibration du dispositif de mesure,

visant à extraire la réponse fréquentielle absolue des films de Nb_xSi_{1-x}. Nous détaillerons ensuite l'application de cette méthode de calibration aux premières mesures de films minces supraconducteurs de Nb_xSi_{1-x} et l'analyse des résultats ainsi obtenus.

Première partie

État de l'art

Chapitre 1

Désordre, interactions et supraconductivité

Sommaire

1.1 Localisation par le désordre 6
1.1.1 Localisation faible 6
1.1.2 Localisation forte 8
1.2 Désordre et interactions électron-électron 13
1.2.1 Effet des interactions électron-électron du coté métallique 13
1.2.2 Effet des interactions électron-électron du coté isolant 15
1.3 Désordre et supraconductivité 17
1.3.1 Supraconductivité à 2D : Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless 17
1.3.2 Systèmes homogènes et granulaires 20
1.3.3 Théories de la transition supraconducteur-isolant 22
1.3.4 Supraconductivité inhomogène 30
1.4 Questions ouvertes et situation de notre travail 36
1.4.1 Quel diagramme de phases ? 36
1.4.2 Situation de notre travail 39

Introduction

La transition de phase quantique supraconducteur-isolant dans les films minces désordonnés relève d'une **compétition entre la supraconductivité et les phénomènes de localisation et de renforcement des corrélations électroniques**, tous deux induits par le désordre. Nous allons décrire dans ce chapitre les principaux mécanismes mis en jeu dans cette compétition.

1.1 Localisation par le désordre

1.1.1 Localisation faible

En l'absence de désordre, la périodicité du potentiel atomique d'un matériau définit les états propres électroniques sous forme d'ondes de Bloch, spatialement étendues à l'échelle de tout le système.

La limite de faible désordre est traditionnellement décrite par la diffusion de ces ondes de Bloch par les impuretés du système, sur une longueur de l'ordre du libre parcours moyen l. Pour un métal, cela conduit à une description du transport électronique par les **équations de Boltzmann**, où la résistivité est décrite à basse température par :

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^n \tag{1.1}$$

où ρ_0 est la résistivité résiduelle due aux impuretés, A une constante et n une puissance caractéristique des processus de diffusion inélastique mis en jeu.

Lorsque le désordre augmente, la description des propriétés électroniques en ces termes quasi-classiques n'est plus valide, comme peut en témoigner par exemple la violation de la loi de Mathiessen, décrivant les processus de diffusion de manière additive.

Pour aller au-delà de cette limite de faible désordre, il faut prendre en compte la nature quantique des électrons et considérer la modification de la phase de leur fonction d'onde lors des processus de diffusion.

Pour calculer la probabilité de diffusion d'un électron entre deux points A et B, la mécanique quantique impose de sommer les amplitudes de probabilité associées à tous les chemins possibles entre ces deux points :

$$P_{AB} = \mid \sum_i A_i \mid^2 = \sum_i \mid A_i \mid^2 + \sum_{i \neq j} A_i A_j^\star \tag{1.2}$$

Le premier terme de cette somme décrit la probabilité classique, le second - un terme d'interférence - est lié à la nature ondulatoire des électrons. Lorsque A et B sont séparés spatialement, il n'y a pas de relation de phase particulière entre les chemins et le second terme disparaît. La théorie semi-classique de Boltzmann est alors valide. En revanche, dans le cas où A et B coïncident, il existe des paires de chemins cohérents, le terme d'interférence ne se moyenne pas à zéro et doit donc être pris en compte dans le calcul de la probabilité P_{AB}.

Par exemple, si on considère les chemins représentés sur la figure (1.1), on voit que les chemins « retraçants », obtenus par renversement du sens de temps, sont cohérents au niveau de la boucle, sur une distance L telle que $L < L_\phi$ où L_ϕ est la longueur de cohérence, et de

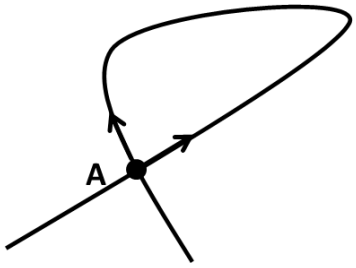

Figure 1.1 – Boucle de retour à l'origine.

même probabilité A. Ces chemins vont donc interférer et la probabilité de retour à l'origine est alors donnée par $P_{AA} = 4A^2$ supérieure à la probabilité classique $P_{AA} = 2A^2$. Le renforcement de la probabilité de retour à l'origine, dû à la nature ondulatoire des électrons, a alors tendance à « localiser » une partie des électrons dans des trajectoires fermées, réduisant ainsi la conductivité.

Le régime de **localisation faible** décrit le régime où ces effets d'**interférences quantiques** introduisent des corrections au transport classique. Notons que les processus brisant l'invariance par renversement du sens du temps (champ magnétique, impureté magnétique, etc.) et les processus de diffusion inélastique, réduisant la longueur de cohérence de phase L_ϕ, vont respectivement briser ou réduire la taille des boucles cohérentes et donc limiter leurs effets.

La **dimensionnalité** d_{im} du système va jouer un rôle particulièrement important dans ce régime de localisation, puisque les corrections quantiques liées aux trajectoires « bouclées » vont être d'autant plus importantes que d_{im} sera faible. Précisément, en fonction de d_{im}, la dépendance en température de la correction $\delta\sigma$ à la conductivité classique est donnée par :

$$\delta\sigma(T) \propto -T^{-p/2} \qquad (d_{im}{=}1) \tag{1.3}$$

$$\delta\sigma(T) \propto ln(T) \qquad (d_{im}{=}2) \tag{1.4}$$

$$\delta\sigma(T) \propto T^{p/2} \qquad (d_{im}{=}3) \tag{1.5}$$

L'exposant p dépend des processus de diffusion inélastique mis en jeu : $p = 3$ pour des interactions électrons-phonons et $p = d_{im}/2$ pour des diffusions électrons-électrons, que nous introduirons au paragraphe (1.2).

Dans le cas 3D, on voit que la localisation faible n'apporte que des corrections au transport électronique. En revanche, à 1D et 2D, on remarque que la conductivité diverge du fait de cet effet de désordre. Le système est alors caractérisé par un changement de son état fondamental qui évolue de métallique à isolant, dès lors que les effets de localisation se font sentir.

À température finie, la **longueur de Thouless** L_{th} est la longueur caractéristique qui détermine la dimensionnalité du système par rapport à la localisation, donnée par :

$$L_{th} = \sqrt{D\tau_{in}} \tag{1.6}$$

où τ_{in} est le temps de collision inélastique, D est la constante de diffusion, donnée par $D = \frac{v_F l}{d_{im}}$ avec l le libre parcours moyen, v_F la vitesse de Fermi.

Lorsque la température augmente, les chocs inélastiques augmentent, τ_{in} et donc L_{th} diminuent. Lorsque $L_{th} \sim d$, où d est l'épaisseur du système, on peut définir un crossover entre un régime de localisation 2D ($L_{th} > d$) et un régime de localisation 3D ($L_{th} < d$). Berggren a montré que ce crossover dimensionnel se manifestait par un crossover résistif en température. L'évolution en température de la résistance passe d'un régime logarithmique à une loi de puissance lorsque la température augmente [Berggren, 1982].

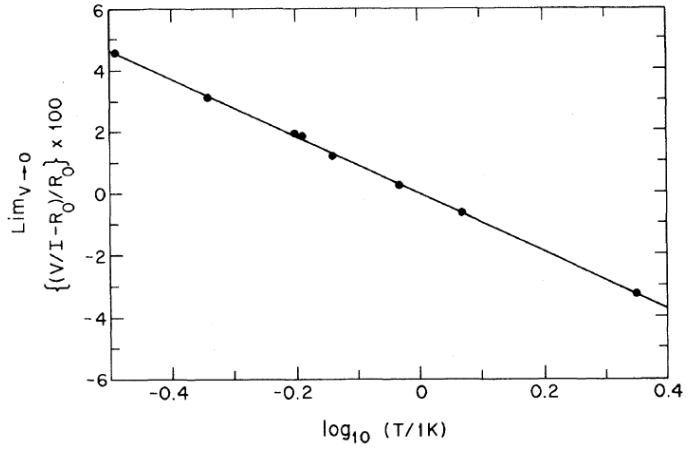

Figure 1.2 – Évolution de la résistance en fonction de la température pour un film mince de Pd_xAu_{1-x} (d=3 nm). La résistance R_0 est la résistance mesurée à T = 1 K [Dolan and Osheroff, 1979].

La figure (1.2) illustre un exemple de ces corrections pour le cas 2D, mises en évidence pour un film mince de Pd_xAu_{1-x}, d'épaisseur $d = 3$ nm [Dolan and Osheroff, 1979]. On observe une dépendance logarithmique de la résistance avec la température, comme prédite théoriquement.

1.1.2 Localisation forte

Dans une limite de fort désordre, Anderson a montré que la diffusion des électrons par un potentiel aléatoire pouvait conduire à une profonde modification de la nature des états électroniques [Anderson, 1958]. Il a effectivement montré qu'un état électronique étendu soumis à un fort potentiel de désordre devient spatialement localisé. L'amplitude de la fonction d'onde décroît alors exponentiellement, sur une distance caractéristique ξ_{loc}, appelée **la longueur de localisation** (fig. 1.3).

Dans une limite de fort désordre, la localisation des états électroniques au niveau de Fermi entraîne un transport thermiquement activé. À $T = 0$, il n'y a donc plus de diffusion possible et l'état fondamental du système est isolant. Une augmentation du désordre induit donc une **Transition Métal-Isolant** (TMI), dite d'Anderson.

1.1.2.1 Minimum de conductivité de Mott

La phase métallique est définie par l'existence d'une conductivité à température nulle σ_0 finie, la phase isolante par $\sigma_0 = 0$. En ce sens, σ_0 peut être vue comme un paramètre d'ordre de la transition métal-isolant. L'annulation de σ_0 au point critique peut être continue ou

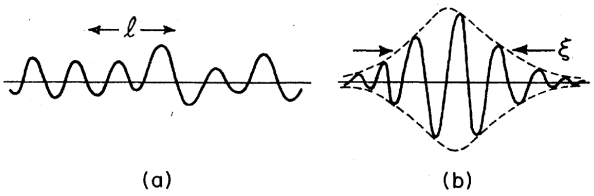

Figure 1.3 – Représentation schématique (a) d'une fonction d'onde étendue, caractérisant un mouvement diffusif sur le libre parcours moyen élastique l et (b) d'une fonction d'onde localisée, sur la longueur de localisation ξ_{loc} [Ma and Lee, 1985].

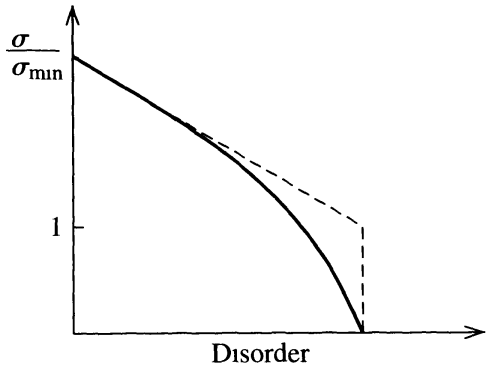

Figure 1.4 – Évolution de la conductivité en fonction du désordre à l'approche d'une TMI. La courbe pleine décrit le cas d'une TMI continue alors que la courbe en pointillés décrit une transition discontinue, avec l'existence d'un minimum de conductivité σ_{min} [Phillips, 2002].

discontinue selon la nature de la transition (fig. (1.4)), i.e. du premier ou du second ordre à la Landau [Héritier, 2002]. Dans le cas d'une transition du premier ordre, un **minimum de conductivité** σ_{min} est attendu du coté métallique de la transition, comme initialement prédit par Mott [Mott, 1972].

Pour établir ce minimum de conductivité, Mott s'est basé sur le **critère de Ioffe-Regel** [Ioffe and Regel, 1960], postulant l'existence d'un libre parcours moyen l minimum - pour un métal - de l'ordre de la largeur de la fonction d'onde des électrons, définie par l'inverse du vecteur de Fermi k_F^{-1}.

À 3D, pour un système sans interaction, $k_F l \sim 1$ définit donc une limite entre un régime diffusif, caractérisé par l'existence d'états étendus au niveau de Fermi et un régime de localisation forte, où ces états deviennent localisés. Par extension, le **paramètre de Ioffe-Regel** $k_F l$ est considéré comme une mesure du désordre : la limite $k_F l \gg 1$ définissant un faible désordre et $k_F l \sim 1$ un fort désordre. Nous reviendrons ultérieurement sur ce paramètre dans la partie consacrée à l'analyse de nos résultats.

À partir de ce critère de Ioffe-Regel et de la théorie de Boltzmann, Mott exprime la conductivité σ à 3D par :

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} = \frac{e^2}{\hbar}\frac{1}{3\pi^2}\frac{(k_F l)^2}{l} \tag{1.7}$$

Ainsi pour $k_F l \sim 1$, Mott obtient un minimum de conductivité σ_{min}, donné par :

$$\sigma_{min} = \frac{1}{3\pi^2}\frac{e^2}{\hbar}\frac{1}{a} \tag{1.8}$$

où a est une échelle microscopique du système, de l'ordre de la distance inter-atomique.

Comme nous allons le voir par la suite, la théorie d'échelle de la localisation développée par Anderson et al. est incompatible avec cette notion de minimum de conductivité à la TMI [Abrahams et al., 1979], par ailleurs remise en cause expérimentalement [Thomas et al., 1983].

1.1.2.2 Théorie d'échelle de la localisation

Les travaux de Thouless dans les années 70 ont permis de relier les propriétés de conduction macroscopique d'un système à l'échelle à laquelle elles sont déterminées [Thouless, 1974]. Cette idée a ensuite été reprise pour formaliser une théorie générale de la transition métal-isolant d'Anderson par « la bande des quatre » [Abrahams et al., 1979].

Pour un système de taille $L^{d_{im}}$, de conductance G, Thouless introduit la conductance adimensionnée $g(L) = \hbar/e^2 G(L)$, ne dépendant que de L. Il montre que cette conductance $g(L)$ est proportionnelle au ratio E_T/δ, où E_T est l'énergie de Thouless, et δ l'espacement moyen entre les niveaux d'énergie du système, donnée par $\delta = (\nu L_{im}^d)^{-1}$ avec ν la densité d'états par unité de volume.

L'énergie de Thouless E_T est l'énergie caractéristique reliée à la diffusion d'un électron jusqu'au bord du système, à la distance L, et correspond donc à l'élargissement énergétique de l'état électronique, dû à son temps de vie fini τ_T. E_T est donné par l'équation suivante :

$$E_T = \frac{\hbar}{\tau_T} = \frac{\hbar D}{L^2} \tag{1.9}$$

- Pour $g > 1$, l'énergie de Thouless E_T est supérieure à l'espacement δ entre les niveaux électroniques. On a donc un recouvrement entre ces états, ce qui correspond à un régime délocalisé.
- Pour $g < 1$, l'espacement entre les niveaux d'énergie δ est supérieur à leur largeur E_T, les états ne se recouvrent pas et restent donc localisés.

En 1979, Abrahams et al. ont étendu l'approche de Thouless et ont élaboré une **théorie d'échelle de la localisation** en se basant sur l'évolution de la conductance g avec la taille du système L [Abrahams et al., 1979]. Ils considèrent pour cela l'évolution de la fonction d'échelle β définie par l'équation (1.10), en fonction de la conductance g.

$$\beta = \frac{dln(g)}{dlnL} \tag{1.10}$$

En suivant l'idée de Thouless, la conductance g peut être considérée comme une mesure du désordre effectif du système : $g \gg 1$ correspond à un faible désordre et $g \ll 1$ un fort désordre.

La fonction d'échelle β ne dépend que de la conductance $g(L)$. Selon son signe, deux comportements sont à distinguer :

- Si $\beta > 0$, la conductance augmente avec la taille du système, les états électroniques sont donc étendus et le système métallique.
- Si $\beta < 0$, la conductance diminue à mesure que la taille du système augmente : le système évolue vers un régime de localisation forte, et donc un état isolant.

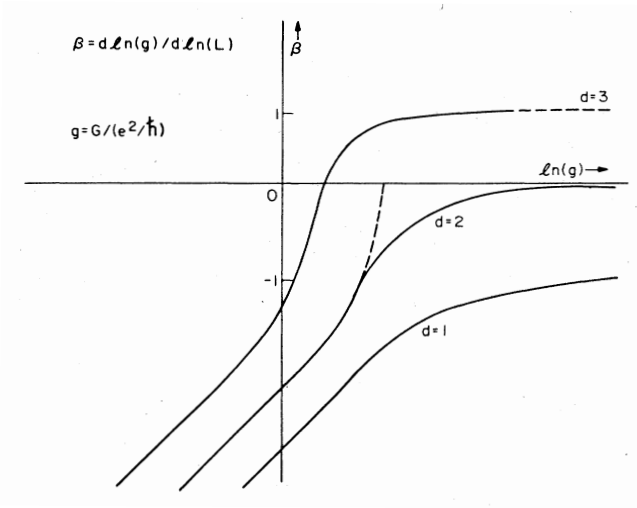

Figure 1.5 – Évolution de la fonction d'échelle β en fonction de la conductance g, pour différentes dimensionnalités d du système [Abrahams et al., 1979].

La figure (1.5) montre l'évolution de $\beta(g)$ en fonction de la dimensionnalité d du système. À trois dimensions, nous voyons que la fonction d'échelle β s'annule pour une conductance critique g_c, séparant ainsi un régime métallique, défini pour une conductance microscopique $g_0 > \mathrm{g}_c$ ($\beta > 0$), d'un régime isolant pour $g_0 < \mathrm{g}_c$ ($\beta < 0$). La conductance g_c définit le point critique de la transition métal-isolant (TMI) d'Anderson à 3D.

Pour $d_{im} \leq 2$, quelle que soit la conductance microscopique g_0 et donc le désordre initial du système, la fonction β est toujours négative : pour un échantillon de taille infini, tous les états électroniques sont donc localisés à T=0. **Un système électronique 1D ou 2D, sans interaction, ne peut donc être métallique, et ce quel que soit son niveau de désordre.**

Revenons au cas 3D, où une transition métal-isolant est prédite. Au voisinage de la conductance critique g_c, l'évolution de la fonction β change continument de signe, traduisant la nature continue de cette transition (fig. (1.5)).

Il a fallu des expériences à très basse température sondant précisément le régime critique de la TMI pour mettre en évidence expérimentalement ce caractère continu de la transition et donc l'absence du minimum de conductivité prédit par Mott. La figure (1.6) montre l'évolution de la conductivité de Si : P, mesurée à très basse température, ainsi que la conductivité résiduelle σ_0 extrapolée à température nulle[1], en fonction de la concentration de dopants,

[1] La conductivité est extrapolée via une loi $\sigma(T) = \sigma_0(1 + \sqrt{T/T_0})$, typique d'un métal désordonné à 3D.

normalisée par la concentration critique [Thomas et al., 1983]. Nous n'observons pas de minimum de conductivité au point critique.

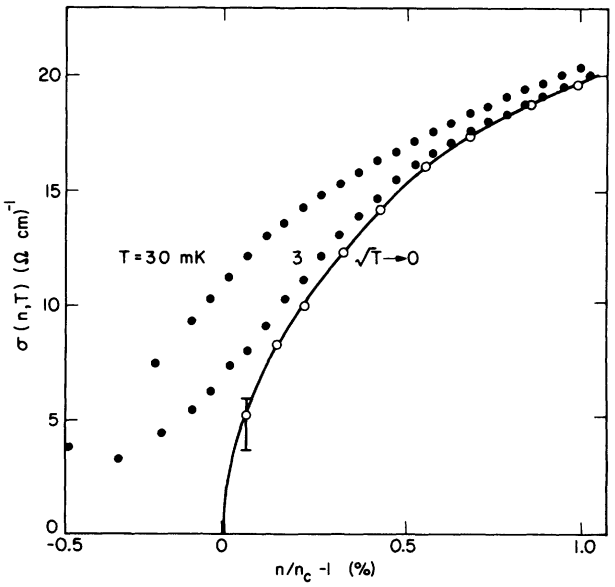

Figure 1.6 – Évolution de la conductivité σ de Si : P à très basse température en fonction de la concentration de dopants normalisée par la concentration critique. Les points noirs correspondent à la conductivité σ mesurée à T= 30 mK (courbe supérieure) et à 3 mK (courbe intermédiaire), les points blancs à la conductivité résiduelle σ_0 extrapolée à température nulle [Thomas et al., 1983].

1.1.2.3 Transport par conduction thermiquement activée

La distinction entre un isolant d'Anderson et un métal est liée à la nature - localisée ou étendue - des états électroniques au niveau de Fermi. À $T = 0$, seule la présence d'états étendus permet l'existence d'une conductivité finie (à fréquence nulle), caractéristique d'un état métallique. À température finie, des processus de conduction thermiquement activés - que nous allons décrire - induisent une conductivité finie pour un isolant d'Anderson.

Dans le régime localisé, Mott a montré l'existence d'une conduction par des processus de sauts à portée variable (« **Variable Range Hopping** » (VRH)), thermiquement activés, entre états localisés [Mott, 1968].

La probabilité de saut par effet tunnel dépend exponentiellement de la distance entre états localisés, mais elle varie également en fonction de la différence énergétique entre ceux-ci. Dans le régime de localisation forte que nous considérons ici, l'enveloppe des fonctions d'onde décroît exponentiellement avec la distance, ce qui limite le recouvrement entre états voisins. Cependant, la probabilité de trouver un état final d'énergie proche de celle de l'état initial augmente avec la distance. Mott a considéré la compétition entre la minimisation de la distance de saut et l'écart énergétique entre états localisés afin de déterminer la probabilité de saut par effet tunnel, directement reliée à la conductivité électrique.

En faisant l'hypothèse d'une densité d'états constante au niveau de Fermi, Mott obtient l'expression suivante pour la conductivité σ d'un système de d dimensions :

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp\left(\frac{-T_0}{T}\right)^{1/(d_{im}+1)} \tag{1.11}$$

Nous verrons dans la suite que la prise en compte des interactions coulombiennes dans ce régime de localisation forte conduit à de profonds changements de la densité d'états au niveau de Fermi, modifiant ainsi les processus de conduction thermiquement activés dans l'état isolant.

1.2 Désordre et interactions électron-électron

Nous avons discuté jusqu'à présent l'influence du désordre sur les propriétés électroniques, tout en négligeant les interactions coulombiennes entre électrons. Nous allons voir dans cette section que **le désordre est à l'origine d'un renforcement de ces interactions** et que celles-ci conduisent à de profondes modifications des propriétés physiques, de part et d'autre de la transition métal-isolant.

1.2.1 Effet des interactions électron-électron du coté métallique

1.2.1.1 Correction à la densité d'états

Altshuler et Aronov ont montré que la prise en compte des interactions coulombiennes, pour un système d'électrons dans une limite de faible désordre ($k_F l \gg 1$), conduit à l'apparition d'une **singularité de la densité d'états au niveau de Fermi** [Altshuler and Aronov, 1979].

L'apparition de ce **pseudogap de corrélation** se comprend par la diminution de l'écrantage dynamique des interactions de Coulomb, due au mouvement diffusif des électrons lorsque le désordre augmente. En effet, une charge dans un métal désordonné sera moins bien écrantée que dans un métal « propre », étant donnée la plus faible mobilité des électrons. Les corrélations électroniques s'en trouvent donc renforcées.

Précisément, la théorie d'Altshuler et Aronov prédit l'apparition d'une anomalie de la densité d'états à un électron au niveau de Fermi [Altshuler and Aronov, 1979], donnée à 3D par la formule (1.12). À 2D, cette anomalie de la densité d'états électronique $N(E)$ varie logarithmiquement avec l'énergie E.

$$N(E) = N(0)(1 + \sqrt{E/\Delta}) \tag{1.12}$$

Notons que cette singularité - liée à l'écrantage dynamique - apparaît dans la densité d'états instantanée, telle que mesurée par effet tunnel, et n'est pas visible par exemple par des mesures de chaleur spécifique ou de conductivité thermique, sondant la densité d'états thermodynamique du système.

La figure (1.7) montre l'évolution de la densité d'états électroniques $N(E)$ mesurée par effet tunnel, pour des films épais de a-Nb_xSi_{1-x}, de différentes compositions x [Hertel et al., 1983]. Dans cette étude, la composition de l'alliage est le paramètre qui permet d'induire la transition métal-isolant. À mesure que la composition en niobium x diminue, et donc que le système s'approche de la TMI, une déplétion de la densité d'états au niveau de Fermi $N(0)$ est observée, d'autant plus importante que x diminue.

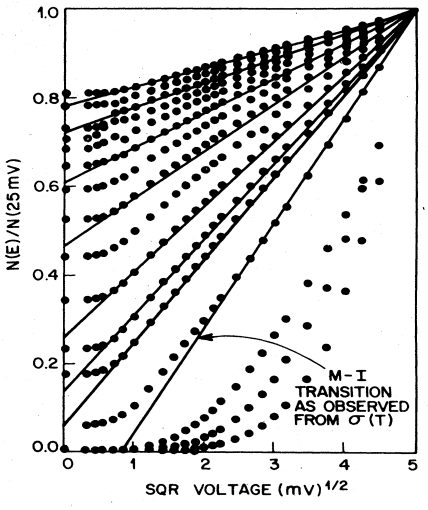

Figure 1.7 – Évolution de la densité d'états électroniques $N(E)$ en fonction de la composition x de l'alliage Nb_xSi_{1-x}. Les faibles densités d'états $N(E)$ correspondent aux faibles compositions x. Les droites correspondent à une dépendance en $V^{1/2}$ (cas 3D) [Hertel et al., 1983].

Du côté métallique de la TMI, la dépendance de cette densité d'états en énergie $N(E) \sim \sqrt{E}$ est bien décrite par l'équation (1.12) issue de la théorie d'Altshuler et Aronov pour le cas 3D.

L'existence de ce pseudogap de corrélation a également été mise en évidence pour d'autres systèmes très désordonnés à l'approche de la TMI. On peut citer par exemple les travaux portant sur l'étude de l'aluminium granulaire [Dynes and Garno, 1981] ou encore de l'alliage Au_xGe_{1-x} [McMillan and Mochel, 1981].

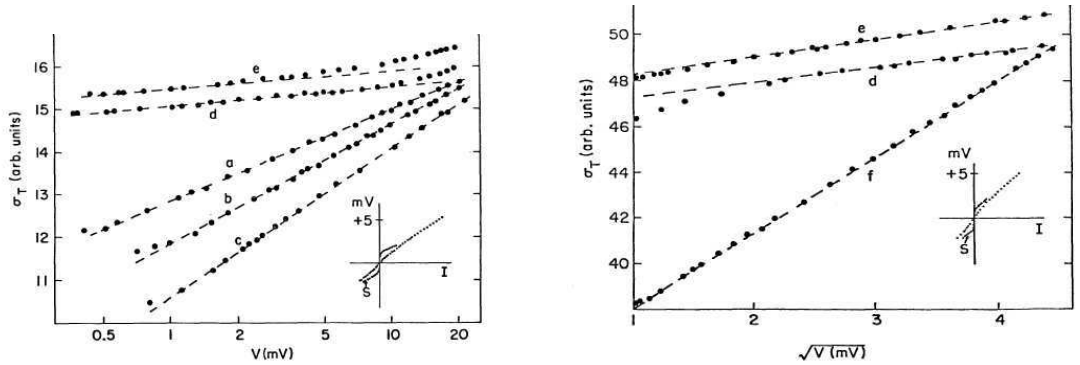

Figure 1.8 – Conductance tunnel en fonction de la tension appliquée (T= 1.2 K) pour des films d'InO_x 2D (a,b,c) et 3D (f). Les films d'épaisseur intermédiaire (d et e) présentent un crossover dimensionnel entre un comportement $G(V) \propto ln(V)$ caractéristique d'un système 2D et une évolution $G(V) \propto \sqrt{V}$ signant la tridimensionnalité du système du point de vue des interactions coulombiennes [Imry and Ovadyahu, 1982].

L'influence de la dimensionnalité du système sur ces corrections de densité d'états a

été étudiée par Imry et Ovadyahu, par des mesures d'effet tunnel sur des films d'InO_x de différentes épaisseurs, comprises entre 16 et 260 nm [Imry and Ovadyahu, 1982]. Ces résultats sont présentés sur la figure (1.8). Le film le plus épais ($d = 260$ nm) suit une loi 3D, où la conductance G est donnée par $G(V) \propto \sqrt{V}$. Les films minces ($d \lesssim 20$ nm) sont décrits par une loi $G(V) \propto ln(V)$ caractéristique d'un système 2D. Les films d'épaisseurs intermédiaires présentent un crossover dimensionnel entre ces régimes 2D et 3D. Ce crossover dimensionnel dans la densité d'états $N(E)$ est déterminé par la comparaison entre l'épaisseur du film et la longueur $l_E = \sqrt{\hbar D/E}$. De même, il existe un crossover dimensionnel induit par la température et déterminé par la longueur thermique $L_T = \sqrt{\hbar D/(k_B T)}$.

1.2.1.2 Correction à la conductivité

Les corrections de la densité d'états que nous venons de décrire sont elles-mêmes à l'origine de corrections des propriétés de transport. En particulier, les corrections de la conductivité $\delta\sigma$, sont données - selon la dimensionnalité d_{im} du système - par :

$$\delta\sigma(T) = -\frac{1}{A}\frac{e^2}{2\pi\hbar}(4 - 3/2\tilde{F}_\sigma)(D/2T)^{1/2} \qquad (d_{im}=1) \tag{1.13}$$

$$\delta\sigma(T) = \frac{e^2}{4\pi^2\hbar}(2 - 3/2\tilde{F}_\sigma)\ln(T\tau) \qquad (d_{im}=2) \tag{1.14}$$

$$\delta\sigma(T) = \frac{e^2}{4\pi^2\hbar}\frac{3}{\sqrt{(2)}}(4/3 - 3/2\tilde{F}_\sigma)\sqrt{T/D} \qquad (d_{im}=3) \tag{1.15}$$

où $\tilde{F}_\sigma$ est une fonction définie dans la référence [Lee and Ramakrishnan, 1985], traduisant l'effet des interactions coulombiennes.

Pour $d_{im} = 2$, nous observons une dépendance logarithmique en température de $\delta\sigma$, comme pour la correction de localisation faible (éq. (1.5)). Il faut bien noter que si ces prédictions sont similaires, les mécanismes physiques associés à ces corrections quantiques sont différents. Dans le cas de la localisation faible, les interférences quantiques conduisent à une réduction de la mobilité, alors que pour les interactions coulombiennes, c'est la modification de la densité d'états au niveau de Fermi qui est à l'origine d'une modification des propriétés de transport.

Pour les films tri-dimensionnels de a-Nb_xSi_{1-x} que nous avons introduits sur la figure (1.7), la conductivité résiduelle σ_0 obtenue en ajustant la dépendance en température de la conductivité σ selon une loi de puissance $\sigma = \sigma_0 + \alpha\sqrt{T}$, telle qu'attendue pour un système métallique désordonné à 3D, en présence d'interactions, et la densité d'états au niveau de Fermi N(0) sont représentées en fonction de la composition x de l'alliage sur la figure (1.9). Nous voyons que σ_0 et $N(0)$ s'annulent simultanément, pour une composition de l'alliage $x \sim 11.5\%$, définissant la composition critique de la TMI pour ce système.

1.2.2 Effet des interactions électron-électron du coté isolant

Du côté métallique de la TMI, nous avons montré que la prise en compte des interactions coulombiennes conduit à l'apparition d'une singularité de la densité d'états à un électron au niveau de Fermi. À mesure que le désordre augmente, ce pseudogap s'agrandit pour former un gap du côté isolant de la TMI (fig. (1.7)).

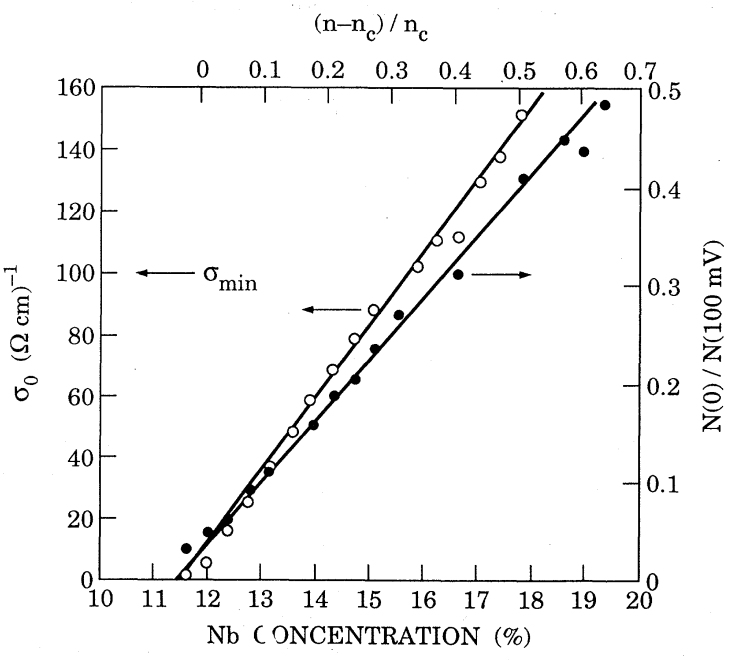

Figure 1.9 – Évolution de la conductivité à T=0 et de la densité d'états N(0) au niveau de Fermi, en fonction de la composition x de l'alliage Nb_xSi_{1-x} [Hertel et al., 1983].

L'existence de ce **gap de Coulomb** dans l'état isolant conduit à une modification des propriétés de transport et, en particulier, à des déviations par rapport au VRH de Mott, qui postule une densité d'états constante en énergie.

Ainsi, Efros et Shklovskii ont montré que dans le régime de localisation forte, la conductivité est donnée par l'expression suivante, et ce, quel que soit la dimensionnalité du système [Efros and Shklovskii, 1975, Shklovskii and Efros, 1984] :

$$\sigma(T) \propto \exp\left(\frac{-T_{ES}}{T}\right)^{1/2} \tag{1.16}$$

où $T_{ES} = \dfrac{4e^2}{\epsilon \xi_{loc}}$ avec ϵ la constante diélectrique et ξ_{loc} la longueur de localisation.

En considérant l'effet de la température sur ce gap de Coulomb Δ, Davies et al. ont montré que ces effets dus aux corrélations électroniques ne sont visibles qu'à très basse température, dans la limite $\Delta > k_B T$ [Davies et al., 1982]. Au-delà, on s'attend à retrouver les processus de conduction, tels que décrits par la loi de Mott.

1.3 Désordre et supraconductivité

Jusqu'à présent nous avons considéré les effets du désordre sur les propriétés électroniques d'un métal. Que se passe-t-il lorsque le métal considéré est supraconducteur à basse température ?

Dans une limite de faible désordre et en l'absence d'interactions coulombiennes, **le théorème d'Anderson** établit que l'introduction d'un désordre non-magnétique, ou plus généralement de tout désordre ne brisant pas l'invariance par renversement du temps, n'affecte pas les propriétés supraconductrices thermodynamiques, comme la température critique ou le gap supraconducteur [Anderson, 1959].

Ma et Lee [Ma and Lee, 1985] d'une part, et Kapitulnik et al. [Kapitulnik et al., 1985] d'autre part ont étendu ce résultat dans une limite de fort désordre, où la transition métal-isolant d'Anderson apparaît. Ils ont alors montré que, lorsque le gap supraconducteur est supérieur à l'écart énergétique entre les états localisés, un appariement entre ces états localisés est possible, et donc que **l'existence d'états électroniques étendus n'est pas une condition nécessaire à la formation d'un état macroscopiquement cohérent**.

Dans cette limite de fort désordre, la compréhension des mécanismes à l'origine de la compétition entre le désordre et la supraconductivité est toutefois particulièrement complexe. Outre le renforcement des interactions coulombiennes que nous avons précédemment décrit, le désordre est également susceptible de modifier le spectre de phonons et donc le couplage électron-phonon à l'origine de l'appariement électronique en paires de Cooper. Selon les matériaux considérés, des comportements très différents du point de vue de la supraconductivité sont observés et le désordre n'est pas toujours défavorable à la supraconductivité. Par exemple, lorsque l'on réduit le libre parcours moyen d'un métal pur à 3D, comme le gallium, en le faisant passer d'une phase cristalline à une phase amorphe, la température de transition supraconductrice augmente fortement de 1.08 K à 8.4 K [Bergmann, 1976]. En revanche pour la plupart des systèmes, on observe un affaiblissement des propriétés de supraconductivité, lorsque le désordre augmente.

La problématique de la transition supraconducteur-isolant s'intéresse principalement à la destruction de la supraconductivité dans les films minces dans la limite bidimensionnelle. À 2D, les mécanismes à l'origine de la formation d'un état supraconducteur sont d'un autre type que ceux décrivant la supraconductivité à 3D. Avant de considérer les effets du désordre sur la supraconductivité des films minces, nous allons brièvement décrire ces mécanismes.

1.3.1 Supraconductivité à 2D : Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless

Pour un système bidimensionnel de symétrie continue, Berezinskii [Berezinskii, 1972], Kosterlitz et Thouless [Kosterlitz and Thouless, 1973] ont montré l'existence de vortex thermiquement activés. Lorsque la température est inférieure à la température de transition T_{BKT}, ces défauts topologiques s'apparient en paires vortex-antivortex et le système évolue alors d'un état résistif à un état non-dissipatif.

Les premières études considérant la **Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (BKT)** du point de vue expérimental se sont concentrées sur les films d'hélium superfluide [Bishop and Reppy, 1978] ; l'application de la transition BKT aux films minces supraconducteurs ayant été longtemps questionnée [Minnhagen, 1987]. En effet, pour un supraconducteur,

l'interaction entre vortex est logarithmique à courte distance et décroît en $1/r$ à longue distance, à cause de l'écrantage du champ électromagnétique par les supercourants [Pearl, 1964]. La limite entre ces deux régimes est fixée par la longueur de pénétration magnétique λ, petite dans le cas générale. Pour un film supraconducteur, la longueur de pénétration est renormalisée par l'épaisseur du film d : $\lambda_{eff} = \lambda^2/d$. En pratique, les effets associés à la transition BKT ne sont donc visibles que pour des films minces (d petit) et désordonnés (λ grand), où l'écrantage est faible.

En considérant les conditions d'application de la théorie BKT aux films minces supraconducteurs, Beasley et al. ont montré que le ratio T_{BKT}/T_{c0}, où T_{BKT} et T_{c0} sont respectivement les températures de transition de BKT et de champ moyen[2], diminuait lorsque la résistance par carré $R_\square$ (éq. (1.17)) du film augmente [Beasley et al., 1979].

$$R_\square = \frac{\rho}{d} \tag{1.17}$$

où ρ est la résistivité du film, d son épaisseur.

Expérimentalement, la mise en évidence de la transition BKT est difficile, en particulier du fait de la nécessité de disposer de films désordonnés morphologiquement homogènes[3] et de pouvoir écranter efficacement le champ magnétique environnant, pouvant briser la symétrie vortex-antivortex requise par la transition BKT.

Non linéarité de transport

Traditionnellement, la transition BKT est identifiée par la mise en évidence de non-linéarités dans les caractéristiques courant-tension $I(V)$ à la température T_{BKT} où les paires vortex-antivortex se forment [Hebard and Fiory, 1980]. En effet, l'application d'un courant électrique induit une force de Lorentz sur les quanta de flux que sont ces vortex, de direction opposée pour les vortex et les antivortex, conduisant à une dissociation des paires.

La figure (1.11) montre l'évolution des caractéristiques $V(I)$, à différentes températures, dans la transition supraconductrice, pour un film de Hg-Xe [Kadin et al., 1983], dont le $R(T)$ est représenté sur la figure (1.10). La linéarité de ces courbes permet l'extraction du coefficient $a(T)$, défini par l'équation (1.18). Théoriquement, la température de transition T_{BKT} est définie par le passage discontinu de $a = 1$ à $a = 3$, correspondant au saut universel de la densité superfluide à la température T_{BKT} [Kadin et al., 1983].

$$V \sim I^{a(T)} \tag{1.18}$$

L'évolution du coefficient a en fonction de la température, pour trois films de $R_\square$ différents, représentée sur la figure (1.12), permet à la fois l'extraction de T_{c0} et de T_{BKT}[4]. L'écart entre ces deux températures définit une largeur de transition $\tau_c = 1 - T_{BKT}/T_{c0}$, dont l'évolution avec la résistance normale R_n est représentée sur la figure (1.13). Nous observons une augmentation de la largeur de la transition avec la résistance normale. En d'autres termes, plus le désordre - décrit par R_n - est important, plus le régime de fluctuations thermiques

[2] Cette température de champ moyen est équivalente à la température de transition définie dans le cadre de la théorie BCS.

[3] Les inhomogénéités peuvent effectivement induire des élargissements de transition, qualitativement similaires à ce qui est attendu pour une transition de type BKT.

[4] La température T_{c0} est définie par l'extrapolation à 1 de l'ajustement linéaire par la théorie BCS visible sur la figure (1.12).

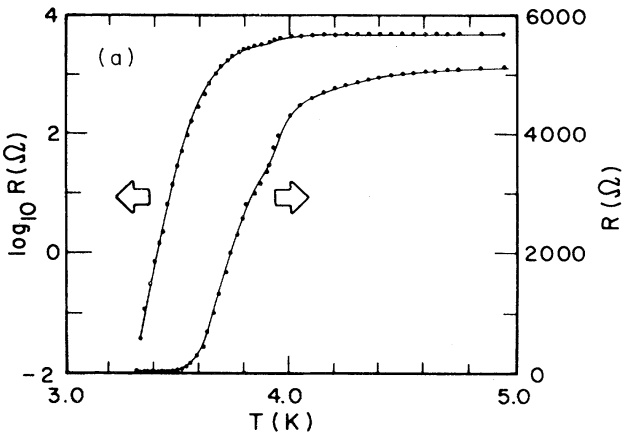

Figure 1.10 – Évolution de la résistance avec la température pour un film mince de Hg-Xe, en échelles logarithmique (gauche) et linéaire (droite) [Kadin et al., 1983].

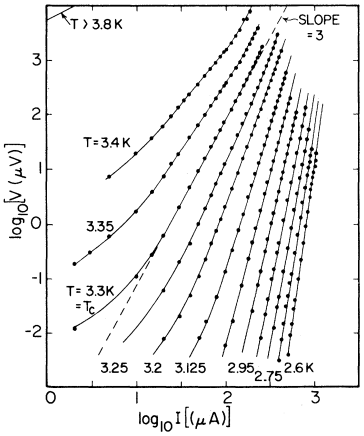

Figure 1.11 – Caractéristiques courant-tension de l'échantillon représenté sur la figure 1.10, à différentes températures. La droite en pointillés correspond à $a = 3$. Le passage de $a < 3$ à $a > 3$ permet de définir la température de transition de BKT [Kadin et al., 1983].

associées aux excitations de vortex est important, ce qui se traduit par un abaissement de T_{BKT} par rapport à T_{c0} d'autant plus important.

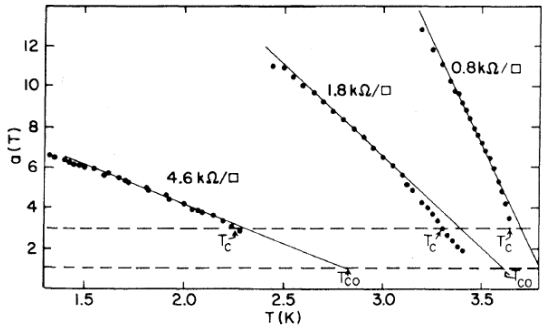

Figure 1.12 – Évolution de l'exposant $a(T)$ (éq. 1.18) pour différents films de Hg-Xe [Kadin et al., 1983].

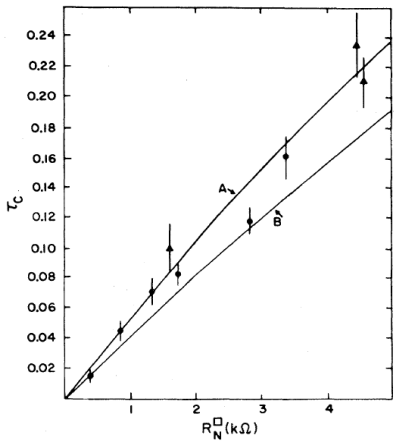

Figure 1.13 – Évolution de la largeur de transition $\tau_c = 1 - \dfrac{T_{BKT}}{T_{c0}}$ en fonction de la résistance par carré à l'état normal R_n [Kadin et al., 1983].

Autres mises en évidence expérimentales

Plus récemment, différents régimes de fluctuations mis en évidence dans les films minces désordonnés ont été interprétés en lien avec cette transition BKT [Mondal et al., 2011b], [Liu et al., 2011], [Yong et al., 2013]. Nous reviendrons plus en détails sur les mesures dy-

namiques des films désordonnés dans la partie consacrée aux mesures dans la gamme des micro-ondes.

Mentionnons ici les résultats issus de mesures de bruit sur des films minces de NbN [Koushik et al., 2013], et la distinction des températures de transition T_{BKT} et T_{c0} par ces mesures de corrélation. En particulier, l'apparition de fluctuations non-gaussiennes de la résistance, dépendantes de l'épaisseur des films, est interprétée en termes d'excitations de vortex thermiquement activés, et permet une définition de T_{BKT}.

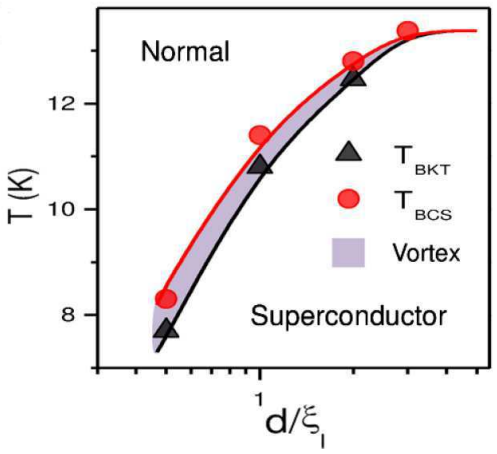

Figure 1.14 – Évolution des températures caractéristiques T_{c0} et T_{BKT} en fonction du ratio d/ξ. La région grisée correspond à l'apparition de vortex thermiquement activés, non appariés [Koushik et al., 2013].

Ces résultats sont synthétisés sur la figure (1.14), où sont représentées les deux températures de transition T_{BKT} et T_{c0} en fonction de l'épaisseur normalisée par la longueur de cohérence supraconductrice ξ. Les films les plus épais sont caractérisés par la seule température de champ moyen T_{c0}. Les films les plus minces présentent deux échelles d'énergie distinctes T_{c0} et T_{BKT}. Cette évolution est interprétée par l'existence d'un crossover BCS-BKT, lorsque l'épaisseur des films est réduite. **La transition BKT et donc la limite 2D pour l'existence de la supraconductivité est alors définie par d $\lesssim \xi$.**

1.3.2 Systèmes homogènes et granulaires

Avant d'entrer plus en détails dans la description de la compétition entre la supraconductivité et les effets du désordre, notons que la nature du désordre est particulièrement importante dans ce problème.

Il existe en effet plusieurs types de potentiel aléatoire pouvant décrire le désordre d'un système. Deux cas limites sont habituellement distingués, selon l'échelle à laquelle le désordre est défini : les systèmes où le désordre fluctue à l'échelle atomique, dits « **homogènes** », et les systèmes caractérisés par l'existence de grains de taille « mésoscopique »[5], séparés par une matrice métallique ou isolante, plus importante que cette limite atomique, dits **granulaires**

[5]Dans le cas de films minces granulaires, la taille des grains est typiquement de l'ordre de l'épaisseur du film.

[Gantmakher and Dolgopolov, 2010].

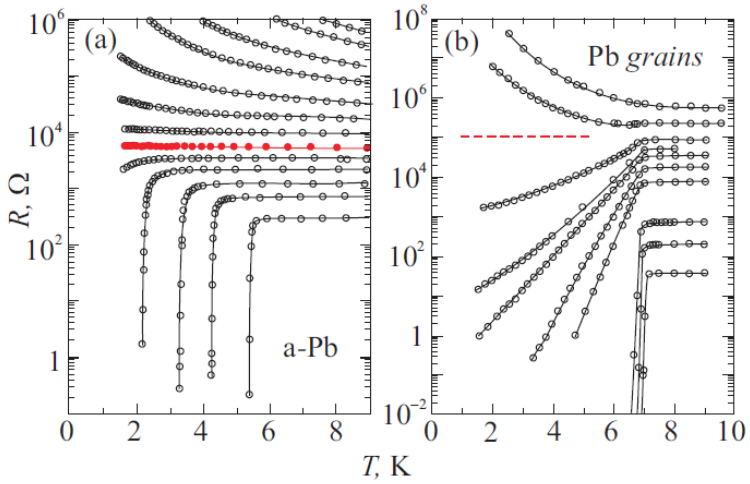

Figure 1.15 – (a) Évolution en température de la résistance par carré $R_{\square}(T)$ pour différents films amorphes de Pb sur substrat de Ge [Frydman, 2003] et (b) pour des films granulaires de Pb déposés sans sous-couche amorphe [Hsu and Valles, 1993].

Expérimentalement, ces deux cas limites se distinguent par une phénoménologie différente, notamment du point de vue de la supraconductivité.

La figure (1.15) montre les abaissements de la température critique T_c induits par une réduction de l'épaisseur, pour des films de Pb homogènes[6] (a) et granulaires (b). Les films de Pb homogènes présentent une diminution progressive de la température critique, lorsque l'épaisseur diminue, caractéristique d'un désordre défini à une échelle atomique, et la transition supraconductrice reste abrupte. En revanche, pour les films granulaires, nous n'observons pas d'abaissement de l'onset de la température critique lorsque l'épaisseur est réduite, mais un élargissement de la transition supraconductrice, correspondant à une difficulté accrue pour établir la cohérence macroscopique entre grains lorsque l'épaisseur des films est réduite.

La supraconductivité dans les systèmes morphologiquement granulaires s'établit d'abord localement au sein des grains, à la température critique $T_{c,bulk}$ du matériau bulk, puis macroscopiquement par couplage Josephson entre ces grains. L'évolution en épaisseur peut être décrite comme une compétition entre ce couplage Josephson entre grains et l'énergie de charge, due aux interactions coulombiennes entre les électrons au sein des grains. Lorsque l'épaisseur des films est réduite, la température critique au sein des grains est essentiellement inchangée, ce qui se traduit par une diminution de la résistance à la température constante $T_{c,bulk}$. L'affaiblissement du couplage entre ces grains permet d'expliquer l'élargissement en température de la transition supraconductrice observé. Dans certains systèmes, des réentrances de la résistance en fonction de la température sont observées (fig. (1.16)).

Nous allons nous concentrer principalement dans cette étude sur la destruction de la supraconductivité dans les systèmes morphologiquement homogènes. Nous préciserons dans

[6] Le dépôt d'une sous-couche amorphe sur le substrat permet la synthèse de films amorphes non-granulaires.

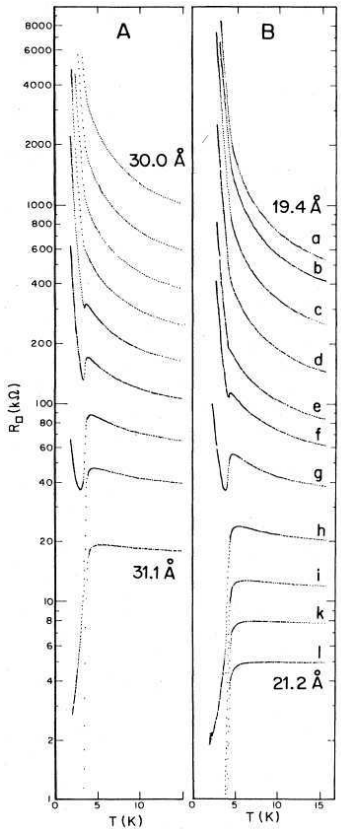

Figure 1.16 – Évolution des $R_\square(T)$ pour deux séries de films d'étain. La variation d'épaisseur typique entre deux courbes est de l'ordre de 0.1 Å [Orr et al., 1985].

le chapitre (2) les caractérisations morphologiques que nous avons effectuées sur les films de a-Nb_xSi_{1-x}, justifiant leur caractère non-granulaire.

Nous allons désormais introduire les effets du désordre en considérant deux types de modèles théoriques. Les modèles dits **fermioniques**, négligeant les fluctuations de la phase supraconductrice et considérant l'abaissement de la température de champ moyen T_{c0}, à l'opposé des modèles dits **bosoniques** qui considèrent les fluctuations de phase et négligent les fluctuations de l'amplitude d'appariement.

1.3.3 Théories de la transition supraconducteur-isolant

À 2D, d'après la théorie d'échelle de la localisation, seuls les états supraconducteur et isolant sont possibles. Pour les films minces désordonnés, nous nous attendons donc à ce qu'un état isolant résulte de la destruction de la supraconductivité. Il a été montré que la Transition Supraconducteur-Isolant (TSI), décrivant ce changement d'état fondamental, relève de la problématique des transitions de phase quantiques [Sondhi et al., 1997]. Après un rappel sur ce type de transitions de phase, nous décrirons les principaux modèles théoriques décrivant la TSI.

1.3.3.1 La TSI : une transition de phase quantique

Une transition de phase quantique a lieu à température nulle, lorsqu'une variation d'un paramètre de l'hamiltonien décrivant le système induit une modification de l'état fondamental. Contrairement aux transitions thermodynamiques, dites classiques, où des fluctuations thermiques gouvernent la transition, ce sont ici des fluctuations d'origine quantique qui contrôlent la transition [Sachdev, 1999]. À température finie, ces fluctuations quantiques correspondent aux fluctuations ayant une fréquence caractéristique $\omega^\star$ telle que $\hbar\omega^\star \gg k_B T$.

Comme pour une transition classique continue, le comportement critique du système à l'approche d'une transition de phase quantique continue est caractérisé par des **lois d'échelles**, issues de la divergence des longueurs de corrélation spatiale ξ et temporelle ξ_τ au point critique. Ces longueurs dépendent uniquement du paramètre $\delta = \dfrac{\mid K - K_c \mid}{K_c}$, contrôlant la distance au point critique de la transition. K est le paramètre induisant la transition[7] et K_c la valeur de ce paramètre au point critique.

$$\xi = \mid \delta \mid^{-\nu}, \text{ et } \xi_\tau = \mid \delta \mid^{z} \tag{1.19}$$

où ν et z sont respectivement l'exposant critique associé à la longueur de corrélation et l'exposant critique dynamique.

Les lois d'échelle permettent une description des propriétés universelles du système dans le régime critique, où les fluctuations quantiques prédominent. Les exposants ν et z sont caractéristiques de la **classe d'universalité** de la transition.

Dans le cadre général de ces transitions de phase quantiques, différents scénarii décrivent la destruction de la supraconductivité et donc le changement de l'état fondamental associé. On distingue en particulier les modèles dits **fermioniques**, où la destruction de l'état supraconducteur est associée à la destruction des paires de Cooper, par opposition aux modèles dits **bosoniques**, où un appariement persiste localement après la destruction de l'état macroscopiquement cohérent.

1.3.3.2 Modèles Bosoniques

Dirty Boson Model

En 1990, Fisher proposa un modèle de transition de phase quantique décrivant la TSI à 2D, où l'état supraconducteur est détruit par le désordre ou par l'application d'un champ magnétique. Le diagramme de phase proposé par Fisher est représenté sur la figure (1.17).

En s'appuyant sur une **relation de dualité entre les bosons et les vortex**, Fisher décrit la transition à $T = 0$ d'une phase supraconductrice, où les paires de Cooper sont condensées et les vortex localisés, à une phase isolante, où ce sont les paires de Cooper qui sont localisées et les vortex condensés.

Ce modèle considère les **fluctuations de la phase supraconductrice** comme étant à l'origine des propriétés universelles à la TSI. Ainsi, une amplitude finie d'appariement en paires de Cooper persiste dans l'isolant. Fisher se base sur l'existence de la transition de

[7] Pour la transition supraconducteur-isolant qui nous intéresse, ce paramètre peut être, par exemple, le champ magnétique, le dopage, le désordre, etc.

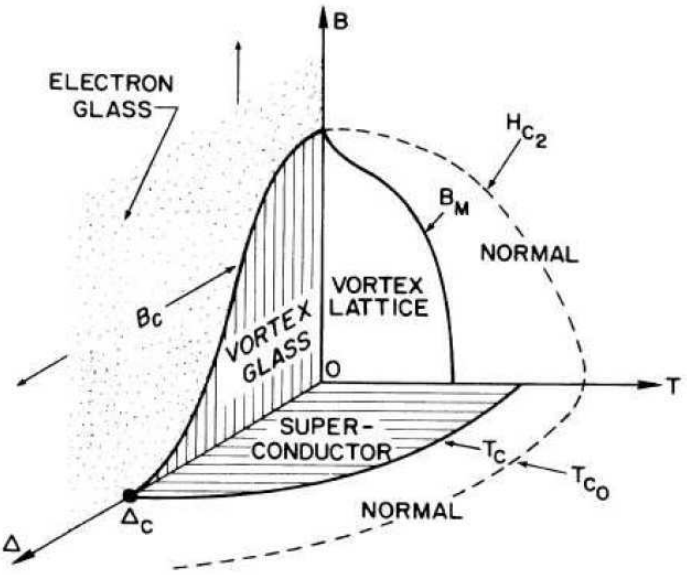

Figure 1.17 – Diagramme de phase des films supraconducteurs en fonction du désordre Δ, du champ magnétique B et de la température T [Fisher, 1990].

Berezinskii-Kosterlitz-Thouless dans les films minces à 2D, qui permet, comme nous l'avons vu, de définir deux échelles d'énergie : la température critique T_{BKT}, associée à la dissociation des paires vortex-antivortex, et la température critique T_{c0} au-delà de laquelle le système est dominé par les fluctuations d'amplitude. Le régime défini entre ces deux températures $T_{BKT} < \mathrm{T} < T_{c0}$ est caractérisé par une amplitude finie du paramètre d'ordre et correspond à un régime de fluctuations de phase importantes dues à la dissociation des paires vortex-antivortex. Fisher considère l'augmentation de ces fluctuations de phase par le désordre, conduisant à l'annulation de T_{BKT}. Les paires de Cooper survivent à la destruction de leur cohérence de phase macroscopique, devenant localisées dans l'état isolant.

Précisément, Fisher s'intéresse aux propriétés universelles du système, à l'approche du point critique quantique de la TSI. En particulier, la loi d'échelle attendue pour la résistance R est donnée par :

$$R = R_c F(\delta/T^{1/(\nu z)}, \delta/E^{1/(\nu(z+1))}) \tag{1.20}$$

où R_c la résistance critique à la transition et F une fonction d'échelle.

Notons que la description des propriétés de la TSI en termes de lois d'échelles requiert une transition continue et directe entre les phases supraconductrice et isolante.

La première étude expérimentale ayant considéré cette approche en termes de lois d'échelle pour décrire les propriétés critiques de la TSI a été réalisée par Hebard et Paalanen, pour des films minces d'InO_x, et une transition induite par l'application d'un champ magnétique perpendiculaire aux films [Hebard and Paalanen, 1990]. La transition induite par le désordre a été notamment étudiée par le groupe de Goldman, en considérant les effets d'épaisseur sur les films de métaux purs ultra-minces [Haviland et al., 1989]. Dans la suite de ce paragraphe, nous allons illustrer la détermination des paramètres intervenant dans la loi d'échelle définie

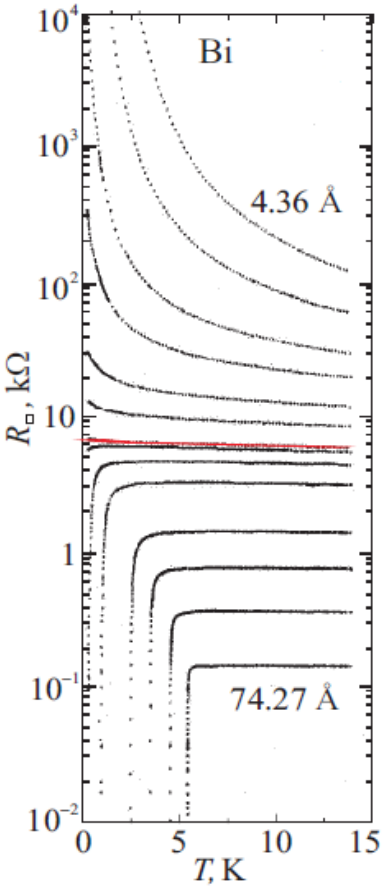

Figure 1.18 – Évolution de la résistance par carré avec la température pour des films de a-Bi de différentes épaisseurs [Haviland et al., 1989].

par l'équation (1.20) sur un exemple spécifique de TSI induite par une réduction de l'épaisseur des films. Cependant, une analyse analogue est valable pour tout autre paramètre K, induisant cette transition, comme le champ magnétique [Markovic et al., 1998] ou encore le champ électrique [Parendo et al., 2005].

La figure (1.18) montre l'évolution en température de la résistance par carré $R_\square(T)$ de films ultra-minces de bismuth amorphe, de différentes épaisseurs [Haviland et al., 1989]. Ces films sont déposés sous ultra-vide, sur un substrat recouvert d'une sous-couche a-Ge maintenu à 4 K. Ces conditions de dépôt favorisent l'obtention d'un film amorphe et continu, jusqu'aux plus faibles épaisseurs (quelques angströms).

Lorsque l'épaisseur est réduite, nous observons un abaissement progressif de la température critique supraconductrice T_c. La transition supraconductrice reste abrupte, caractéristique des films non-granulaires. Pour une épaisseur de l'ordre de quelques angströms, la supraconductivité disparaît et le système devient isolant. Pour ces films de a-Bi, la résistance critique R_c associée au changement d'état est égale au quantum de résistance d'une paire de Cooper $h/4e^2$, comme prédit par Fisher.

Les deux phases supraconductrice et isolante sont séparées par une séparatrice correspondant à une résistance indépendante de la température, définie par l'annulation du « **Temperature Coefficient of Resistance** » TCR= $\dfrac{dR}{dT}$. La phase supraconductrice est carac-

térisée par un TCR positif et la phase isolante par un TCR négatif. L'existence de cette séparatrice, interprétée dans le cadre du **Dirty Boson Model** comme traduisant la dualité boson-vortex, permet la procédure de renormalisation associée à la loi d'échelle du modèle de Fisher (éq. (1.20)).

L'analyse des données en termes de lois d'échelle nécessite tout d'abord la détermination de l'épaisseur critique d_c, séparant les deux phases. d_c peut être obtenue par exemple en traçant la résistance en fonction de l'épaisseur à différentes températures. Le point de croisement définit alors l'épaisseur critique, comme nous pouvons le voir dans l'insert de la figure (1.19) pour des films de a-Bi [Markovic et al., 1998]. En réécrivant l'équation (1.20) comme $R(t,\delta) = R_c F(\delta t)$ où $t = T^{-1/\nu z}$, on peut obtenir une renormalisation satisfaisante des $R(T)$ aux différentes épaisseurs, en optimisant ce paramètre t. On détermine ainsi le produit d'exposants critiques νz associé à la transition.

Pour les films de a-Bi dont les $R(T)$ sont présentés sur la figure (1.19), les résultats de cette procédure de renormalisation sont visibles sur la figure (1.20). On peut y voir deux courbes universelles, caractérisant chacune des phases supraconductrice et isolante. Le produit $\nu z = 1.2 \pm 0.2$ ainsi déterminé est cohérent avec les prédictions théoriques donnant $z = 1$ pour un système bosonique avec des interactions de Coulomb à longue portée et $\nu \geq 2/d = 1$ à 2D.

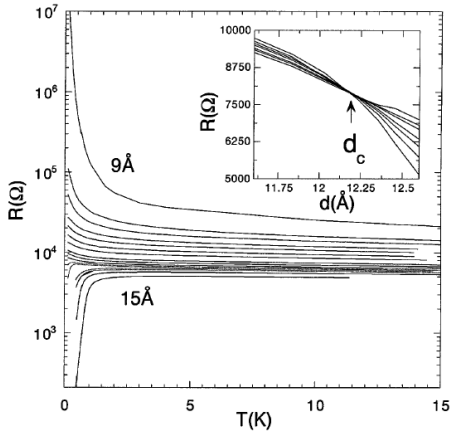

Figure 1.19 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ en fonction de la température pour des films de a-Bi de différentes épaisseurs, comprises entre 9 Å et 15 Å [Markovic et al., 1998].

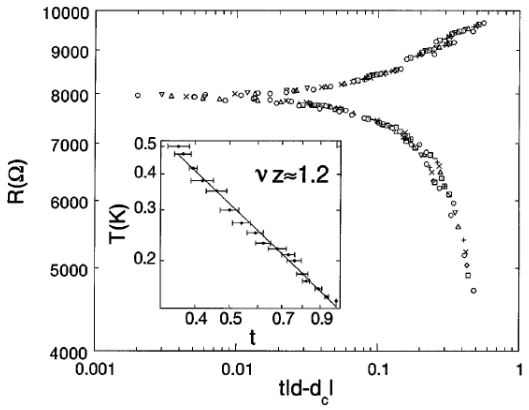

Figure 1.20 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ en fonction de la variable d'échelle $T^{-1/(\nu z)} \mid d - d_c \mid$, pour différentes températures entre 140 mK et 500 mK. Les différents symboles représentent ces différentes températures [Markovic et al., 1998].

Des travaux ultérieurs ont montré les limites du Dirty Boson Model developpé par Fisher. En particulier, une forte distribution du produit d'exposant νz et de la résistance critique R_c est obtenue selon le matériau considéré, en opposition avec l'universalité attendue [Bielejec and Wu, 2002, Marrache-Kikuchi et al., 2008]. Par ailleurs, certaines expériences montrent l'apparition de **saturations de la résistance à très basse température**, interprétées comme la possible manifestation d'un état métallique intermédiaire, séparant les phases supraconductrice et isolante [Mason and Kapitulnik, 1999, Marrache-Kikuchi, 2006].

L'existence d'une telle phase dissipative n'est pas prédite par le modèle de Fisher, qui ne considère la dissipation qu'au point critique.

Si la notion d'état métallique à 2D est toujours sujette à débat, différents modèles théoriques considèrent un état dissipatif issu de la perte de cohérence des paires de Cooper. Nous allons brièvement rappeler les propriétés associées à ces théories, dites du « Métal de Bose ».

Métal de Bose

Modèle de Das et Doniach Das et Doniach ont proposé un modèle décrivant la transition supraconducteur-isolant comme résultant de deux transitions distinctes, décrivant successivement la perte de l'ordre de phase liée à la disparition de l'état non-dissipatif, puis à la disparition de l'ordre de charge associé à la formation des paires de Cooper, conduisant à un état isolant fermionique [Das and Doniach, 1999]. Le modèle de Fisher peut être alors vu comme un cas particulier de ce modèle, où la destruction de ces ordres de phase et de charge a lieu simultanément.

Modèle de Phillips et Dalidovich Phillips et Dalidovitch ont proposé l'existence d'une phase métallique stable à température nulle [Dalidovich and Phillips, 2001]. En l'absence de dissipation, ils montrent en effet que la phase désordonnée est métallique, de type verre de phase et non isolante. Dans ce modèle, la conductivité finie à T = 0 résulte de la réduction exponentielle de la densité de bosons et leur temps de diffusion, induite par le désordre, et est alors donnée par :

$$\sigma = \frac{2}{\pi}\frac{4e^2}{h} \tag{1.21}$$

1.3.3.3 Modèles Fermioniques

La prise en compte des effets des interactions coulombiennes sur la supraconductivité a conduit à un certain nombre de développements théoriques que nous allons préciser dans ce paragraphe. Ces différents travaux théoriques, négligeant les fluctuations de phase, constituent le cadre des modèles fermioniques de la TSI, par opposition aux modèles bosoniques précédemment décrits.

Effets des interactions sur la température critique T_c

Nous avons vu précédemment que le mouvement diffusif des électrons renforcent les corrélations électroniques. Du point de vue de la supraconductivité, cette augmentation des interactions coulombiennes induit une correction négative au paramètre d'interaction attractive λ, responsable de l'appariement des électrons en paires de Cooper [Feigel'man et al., 2010] :

$$\lambda(\epsilon) = \lambda_0 - \frac{1}{12\pi g}\ln\frac{1}{\epsilon\tau^\star} \tag{1.22}$$

où $g = h/(2e^2)R_\square$ est la conductance, ϵ est le transfert d'énergie entre les électrons appareillés, λ_0 le paramètre d'interaction attractive dans le cas sans interactions, $\tau^\star$=max$(\tau, \tau(d/l)^2)$ avec τ le temps de diffusion élastique, d l'épaisseur du film et l le libre parcours moyen.

Par une approche perturbative, valable dans une limite de faible désordre ($k_F l \gg 1$), Maekawa et Fukuyama [Maekawa and Fukuyama, 1982] ont calculé l'effet de cette renormalisation de λ_0 sur la température critique T_c. Ils prédisent un abaissement de T_c avec le désordre, évalué par la résistance par carré $R_\square$, où $\mathrm{R}_\square \propto (k_F l)^{-1}$ dans la limite 2D.

$T_c(R_\square)$ est alors donnée par l'équation suivante [Finkel'stein, 1987] :

$$\ln \frac{T_c}{T_{c0}} \simeq -\frac{1}{3}\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} g_1 R_\square \left(\ln \frac{1}{T_c \tau}\right)^3 \tag{1.23}$$

où g_1 traduit l'interaction répulsive entre électrons et T_{c0} est la température de transition de champ moyen, que nous avons introduite précédemment dans le cas non-désordonné (section (1.3.1)).

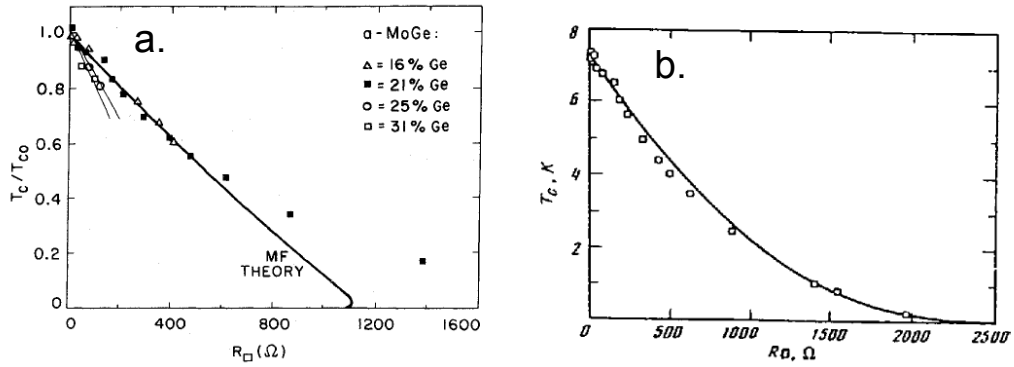

Figure 1.21 – Comparaison des théories de Maekawa et Fukuyama (a) et de Finkel'stein (b) dans la description des abaissements de la Température critique T_c avec le désordre pour des films minces de $\mathrm{Mo}_x\mathrm{Ge}_{1-x}$ [Graybeal and Beasley, 1984, Finkel'stein, 1994].

La figure (1.21 (a)) montre la comparaison de ces prédictions théoriques avec l'abaissement de la température critique observée pour des films minces de $\mathrm{Mo}_x\mathrm{Ge}_{1-x}$ [Graybeal and Beasley, 1984]. Dans cette étude, le désordre est varié par une réduction de l'épaisseur des films. Pour $\mathrm{R}_\square \lesssim 500\ \Omega/\square$, l'évolution de $\mathrm{T}_c(\mathrm{R}_\square)$ est bien décrite par l'équation (1.23). Au delà de cette valeur de $\mathrm{R}_\square$, à plus fort désordre, un écart à la linéarité est observé, d'autant plus important que le désordre augmente.

L'extension de ce calcul perturbatif à une limite de plus fort désordre a été obtenue par Finkel'stein, en utilisant la méthode du groupe de renormalisation [Finkel'stein, 1987, Finkel'stein, 1994]. L'abaissement de la température critique T_c par le désordre, jusqu'à son annulation, est alors donné par :

$$\frac{T_c}{\tau^\star \hbar} = \left[\frac{\sqrt{8\pi g - \ln\left(\hbar/T_{c0}\tau^\star\right)}}{\sqrt{8\pi g + \ln\left(\hbar/T_{c0}\tau^\star\right)}}\right]^{\sqrt{2\pi g}} \tag{1.24}$$

Cette équation définit une conductance critique $g_{cF} = \left(\ln\left(\hbar/T_{c0}\tau^\star\right)\right)^2/8\pi$ pour laquelle la température critique T_c s'annule.

La figure (1.21 (b)) montre la comparaison de ce résultat théorique avec l'abaissement de T_c en fonction de $\mathrm{R}_\square$ pour les films de $\mathrm{Mo}_x\mathrm{Ge}_{1-x}$ [Graybeal and Beasley, 1984]. Jusqu'à

l'annulation de T_c, nous voyons un très bon accord entre l'équation (1.24) et l'évolution de $T_c(R_\square)$ expérimentalement mesurée.

La théorie de Finkel'stein postule un paramètre d'ordre spatialement homogène. Nous verrons qu'à l'approche de la TSI, un certain nombre de travaux - théoriques et expérimentaux - indiquent l'existence de fortes inhomogénéités du paramètre d'ordre dans l'état supraconducteur. Nous préciserons en particulier les travaux de Skvortsov et Feigel'man visant à inclure les fluctuations mésoscopiques du désordre à la théorie de Finkel'stein [Skvortsov and Feigel'man, 2005].

Nous allons voir maintenant que le renforcement des interactions coulombiennes par le désordre a également pour effet de réduire l'amplitude Δ du paramètre d'ordre supraconducteur. Par opposition au cas bosonique, nous verrons qu'une annulation de Δ est prédite à la TSI.

Effets des interactions sur l'amplitude du paramètre d'ordre Δ

En prenant en compte les fluctuations du paramètre d'ordre et le renforcement des interactions coulombiennes, Smith et al. ont calculé les corrections à l'amplitude du paramètre d'ordre Δ [Smith et al., 1995]. Ils montrent que $\Delta(R_\square)$ suit la même évolution que celle de $T_c(R_\square)$, prédite par Finkel'stein. Ils concluent ainsi sur un ratio Δ/k_BT_c constant en fonction du désordre, jusqu'à l'annulation simultanée de T_c et Δ à la TSI.

Ce résultat est à relier aux études expérimentales visant à déterminer l'évolution du gap supraconducteur dans les films minces à l'approche de la TSI. Les mesures d'effet tunnel effectuées sur des jonctions macroscopiques de a-Bi [Valles et al., 1992] tendent à confirmer ces prédictions théoriques, avec l'observation d'une réduction progressive du gap avec le désordre, jusqu'à son annulation à la TSI. Notons que ces résultats s'opposent aux observations réalisées sur des films minces granulaires, comme Pb et Sn [White et al., 1986], où le gap Δ évolue peu avec $R_\square$.

Récemment, des mesures d'effet tunnel sur des films d'InO_x, de part et d'autre de la TSI, ont montré la persistance du gap supraconducteur du coté isolant de la TSI, pour ce système considéré comme homogène morphologiquement (fig. (1.22) et (1.23)) [Sherman et al., 2012]. Le passage à l'état isolant est associé à une perte des pics de cohérence en bordure de gap, traditionnellement associés à la cohérence de phase à longue portée. Nous reviendrons sur cette notion de pics de cohérence et sur leur évolution à l'approche de la TSI dans la section suivante.

Ces résultats semblent conforter l'existence d'une phase de type « isolant de Bose » pour les films d'InO_x, avec une supraconductivité persistant localement du coté isolant de la TSI, comme initialement prédite par Fisher [Fisher, 1990]. Cette mise en évidence de l'isolant de Bose est à relier aux résultats obtenus sur ce même système par d'autres techniques expérimentales. On peut mentionner notamment les mesures de magnétorésistance [Sambandamurthy et al., 2004], les mesures de type « oscillations de Litte-Parks » [Kopnov et al., 2012] et les mesures dynamiques dans la gamme des micro-ondes [Crane et al., 2007b]. Nous reviendrons sur ces dernières mesures dans la partie dédiée aux mesures à fréquence finie.

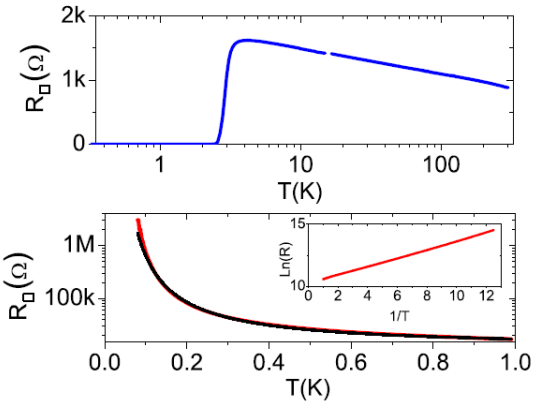

Figure 1.22 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ pour deux films de InO_x, du côté supraconducteur (haut) et isolant (bas) de la TSI [Sherman et al., 2012].

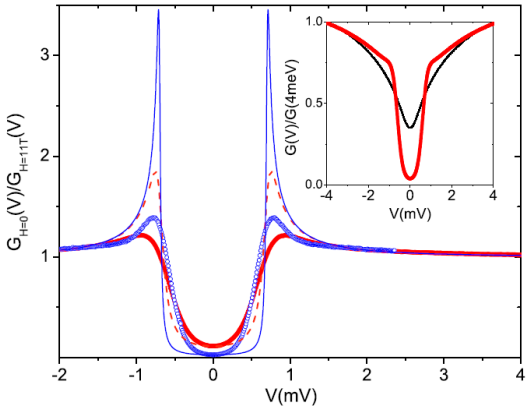

Figure 1.23 – Densité d'états tunnel pour les échantillons supraconducteur (bleu) et isolant (rouge), dont les $R_\square(T)$ sont représentées sur la figure (1.22). Les lignes correspondent à un ajustement par la théorie BCS. [Sherman et al., 2012].

1.3.4 Supraconductivité inhomogène

Nous avons introduit le rôle du désordre sur la supraconductivité par une distinction entre les systèmes granulaires et ceux morphologiquement homogènes, correspondant à des mécanismes physiques a priori différents. À l'approche de la TSI, cette dichotomie est remise en cause depuis peu par différentes études théoriques et expérimentales montrant l'existence d'une **granularité électronique induite par le désordre**, pour des systèmes **morphologiquement homogènes**.

Un fort désordre [Ghosal et al., 1998, Ghosal et al., 2001], comme de fortes interactions coulombiennes en présence de fluctuations mésoscopiques [Skvortsov and Feigel'man, 2005] semblent en effet pouvoir justifier l'apparition d'une telle phase **supraconductrice inhomogène**. Nous allons préciser ces résultats dans ce paragraphe.

1.3.4.1 Localisation et supraconductivité

« Attractive Hubbard model with on-site disorder » : simulations numériques

Dans le cadre de la théorie BCS, la supraconductivité est décrite par un paramètre d'ordre complexe $\Delta = \mid \Delta \mid e^{i\phi}$. À température nulle, l'amplitude d'appariement $\mid \Delta \mid = \Delta_0$ est spatialement uniforme et identifiée au gap énergétique E_g dans la densité d'états électroniques ($E_g = \Delta_0$).

Par une approche de type champ moyen, négligeant les fluctuations de phase, Ghosal et al. ont montré que dans une limite de faible désordre, le paramètre d'ordre supraconducteur Δ_0 coïncide avec le gap spectral E_g dans la densité d'états (fig. (1.24)), comme dans le cas décrit par la théorie BCS [Ghosal et al., 2001]. Lorsque le désordre augmente, ces deux échelles d'énergies se dissocient et dans une limite de fort désordre, le paramètre d'ordre Δ_0 s'annule, alors que **le gap E_g reste fini à la transition**, persistant donc du coté isolant de la TSI.

Ceci peut se comprendre en associant le paramètre d'ordre supraconducteur à une propriété macroscopique du système, traduisant un ordre collectif à longue distance, par opposition au gap spectral E_g qui est une propriété locale décrivant l'absence d'excitations individuelles en-deçà de l'énergie E_g. Ce scénario est consistant avec les modèles bosoniques précédemment décrits, où le gap survit à la destruction de l'état non-dissipatif.

Ces résultats sont obtenus par une approche numérique, en considérant un modèle de Hubbard attractif à 2D, où les interactions répulsives entre électrons sont négligées, défini par l'hamiltonien suivant :

$$H = -t \sum_{<ij>,\sigma} c^{\dagger}_{i\sigma} c_{j\sigma} + \sum_{i,\sigma} (W_i - \mu) n_{i\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \tag{1.25}$$

t est la probabilité de saut d'un électron entre sites adjacents. $c^{\dagger}_{i\sigma}$ et $c_{i\sigma}$ sont respectivement les opérateurs de création et d'annihilation d'un électron de spin σ au site i. L'énergie d'un électron ϵ_i au site i est donnée par $\epsilon_i = W_i - \mu$, où W_i traduit le potentiel aléatoire et μ le potentiel chimique. L'interaction $U < 0$ décrit l'appariement entre les électrons. Dans la limite $U = 0$, on retrouve l'hamiltonien traitant le problème de la localisation d'Anderson [Anderson, 1958]. Pour $W = 0$, on retrouve l'hamiltonien à l'origine de la théorie BCS de la supraconductivité.

La figure (1.25) montre l'évolution de la densité d'états avec le désordre. À mesure que le désordre augmente, l'amplitude des pics de cohérence diminue pour finalement s'annuler à la transition. La disparition de ces pics donne lieu à un régime de pseudogap, caractérisé par l'absence d'ordre supraconducteur à longue distance, mais par la persistance de corrélations supraconductrices à courte portée.

Théorie de la supraconductivité fractale

Nous avons introduit précédemment le critère de Ma et Lee, montrant que la supraconductivité peut persister dans l'isolant d'Anderson, tant que le gap supraconducteur est supérieur à l'espacement entre les états localisés [Ma and Lee, 1985]. Ce critère considère des fonctions d'onde électroniques, dont l'amplitude décroît exponentiellement avec la distance. Des études plus récentes ont montré que les fonctions d'onde électroniques pouvaient avoir un caractère fractal à l'approche de la transition d'Anderson [Kravtsov and Muttalib, 1997, Mirlin and Fyodorov, 1997].

Feigel'man et al. ont considéré la compétition entre la localisation d'Anderson et la supraconductivité afin d'étendre - par un traitement analytique - le critère de Ma et Lee, en considérant cette **nature fractale des fonctions d'ondes localisées** [Feigel'man et al., 2007]. Ils montrent que la fractalité des états électroniques localisés permet un meilleur recouvrement des fonctions d'onde, ce qui est favorable à l'appariement supraconducteur. Le désordre critique pour la destruction de la supraconductivité est alors plus important que celui initialement obtenu par Ma et Lee.

Ils distinguent trois régimes successifs, fonction du désordre du système. Une supraconductivité, dite fractale est d'abord identifiée, caractérisée par de **fortes inhomogénéités du paramètre d'ordre supraconducteur** dues à la nature fractale des états électroniques sous-jacents. Cette phase persiste jusqu'au désordre critique de la transition d'Anderson, où le système évolue dans **une phase supraconductrice, dite de pseudogap**. Ce régime

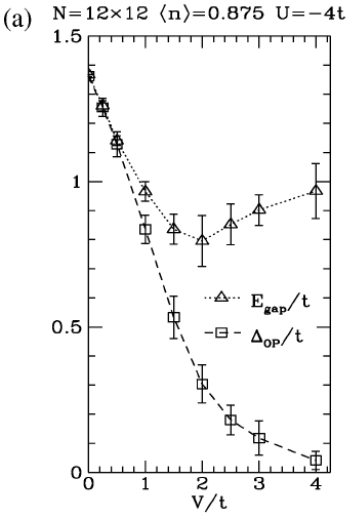

Figure 1.24 – Évolutions du gap spectral E_{gap} et du paramètre d'ordre Δ_{op} en fonction du potentiel de désordre V [Ghosal et al., 2001].

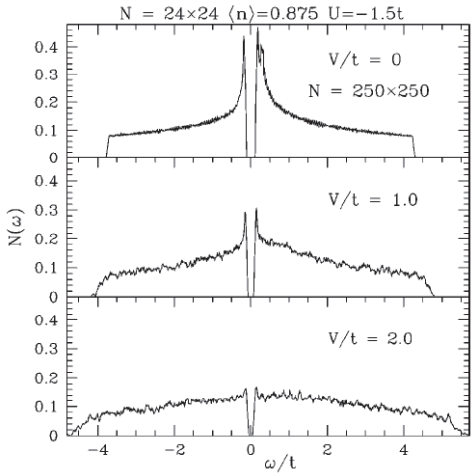

Figure 1.25 – Densités d'états globales $N(\omega)$ pour différents degrés de désordre [Ghosal et al., 2001]. L'amplitude des pics de cohérence diminue lorsque le désordre augmente, pour finalement disparaître, donnant naissance au régime de pseudogap.

de pseudogap est caractérisé par une modification des propriétés spectrales, traduite notamment par la perte des pics de cohérence dans la densité d'états à une particule, similaire aux résultats établis par Ghosal et al.. Enfin, dans une limite de plus fort désordre, la perte de la cohérence macroscopique conduit à un état isolant. Cet état isolant est caractérisé par la persistance éventuelle de corrélations supraconductrices à courte portée.

1.3.4.2 Interactions et supraconductivité

Les modèles théoriques à l'origine d'inhomogénéités du paramètre d'ordre supraconducteur que nous avons discutés jusqu'à présent prennent en compte la compétition entre les effets de localisation et la supraconductivité, en négligeant l'effet des interactions répulsives entre électrons.

Nous avons vu précédemment que le modèle fermionique de Finkel'stein décrit la diminution de la constante de couplage λ, responsable de l'appariement en paires de Cooper, par le renforcement des interactions coulombiennes dû au désordre. Ce résultat a été établi en faisant l'hypothèse d'une homogénéité du paramètre d'ordre à longue distance.

Skvortsov et Feigel'man ont montré que l'inclusion de **fluctuations mésoscopiques** de $\lambda(r)$ à ce modèle permettait de décrire un état supraconducteur fortement inhomogène, et ce, même en l'absence de granularité morphologique [Skvortsov and Feigel'man, 2005]. Précisément, ils montrent que la prise en compte des fluctuations mésoscopiques de la conductance g conduit à des fluctuations spatiales de l'interaction attractive λ. Ces fluctuations induisent une distribution spatiale de la température critique supraconductrice T_c, causant un élargissement de la transition thermodynamique. L'élargissement relatif $\delta_d = \delta T_c/T_c$ est donné par la formule suivante :

$$\delta_d \sim \frac{a_d}{g(g - g_{cF})} \tag{1.26}$$

où $a_d \simeq 0.4$ et g_{cF} est la conductance critique définie dans la théorie de Finkel'stein [Finkel'stein, 1994].

Dans cette situation, la supraconductivité est caractérisée par la **formation d'îlots supraconducteurs**, de taille typique $L_T = \sqrt{D/2\pi T_c}$, où D est le coefficient de diffusion, entourés par le métal normal. Lorsque la température est réduite, la densité de ces îlots augmente, ainsi que leur couplage par effet de proximité. L'ordre supraconducteur s'établit macroscopiquement par un mécanisme de type percolation. Loin du désordre critique et à suffisamment basse température ($T \ll T_c$), l'état supraconducteur est toutefois relativement uniforme avec peu de variations spatiales de l'amplitude du paramètre d'ordre.

Très proche du point critique quantique, définissant la destruction de la supraconductivité ($g - g_{cF} \lesssim 1/g_{cF}$), les fluctuations locales de la température critique deviennent très importantes ($\delta T_c \sim T_c$) et les inhomogénéités spatiales persistent même dans la limite des faibles températures ($T \ll T_c$). Dans cette limite, à la fois les fluctuations thermodynamiques et quantiques de la phase du paramètre d'ordre supraconducteur sont importantes entre les différents îlots. En ce sens, les mécanismes de destruction de la supraconductivité, décrits précédemment dans le cadre des modèles bosoniques deviennent pertinents, proche de la conductance critique.

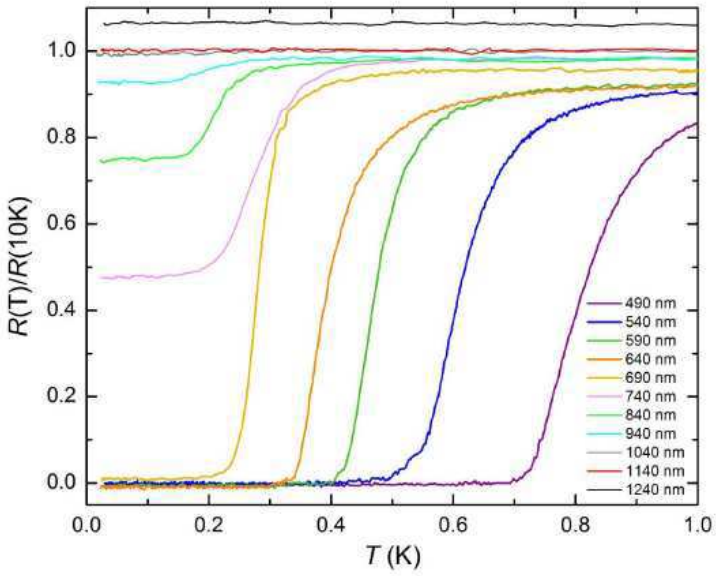

Figure 1.26 – Évolution de la résistance - normalisée par la résistance à 10 K - en fonction de la température pour un réseau de jonctions SNS, dont l'espacement entre les îlots supraconducteur varie entre 490 et 1240 nm [Eley et al., 2012].

Ces résultats sont à relier aux études théoriques menées par Spivak et al., considérant une supraconductivité inhomogène, décrite en termes de grains supraconducteurs dans une matrice métallique [Spivak et al., 2001, Spivak et al., 2008]. Ils montrent en particulier l'existence d'une Transition Supraconducteur-Métal (TSM) en fonction de l'espacement entre

les grains. Expérimentalement, des travaux effectués sur des films nanostructurés, ont permis d'illustrer cette TSM, comme le montre par exemple la figure (1.26) [Eley et al., 2012, Han et al., 2014].

1.3.4.3 Faits expérimentaux

Les principaux résultats indiquant un caractère inhomogène de la supraconductivité à l'approche de la TSI sont issus de mesures par spectroscopie locale à effet tunnel sur des films d'InO_x [Sacépé et al., 2011], de TiN [Sacépé et al., 2008] et de NbN [Kamlapure et al., 2013]. Ces mesures donnent accès à la densité d'états électroniques locale et permettent donc d'imager les fluctuations spatiales des propriétés spectrales du système.

La figure (1.27) montre de fortes inhomogénéités spatiales du gap Δ dans la densité d'états électroniques, de taille mésoscopique - de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres - pour un film de TiN [Sacépé et al., 2008].

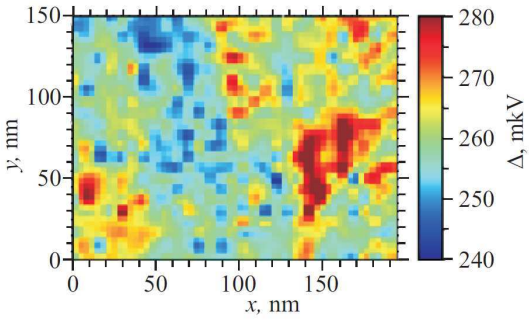

Figure 1.27 – Inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur dans un film de TiN [Sacépé et al., 2008].

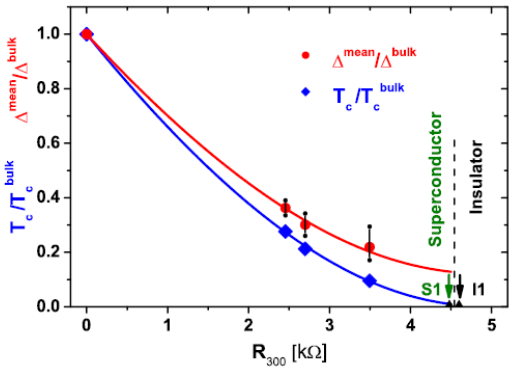

Figure 1.28 – Évolution de T_c et $\tilde{\Delta}$ normalisés par la valeur bulk en fonction de la résistance par carré à température ambiante R_{300K}. La courbe bleue correspond à un ajustement par le modèle de Finkel'stein [Finkel'stein, 1994], la courbe rouge est un guide pour les yeux. [Sacépé et al., 2008].

Ces mesures montrent également une valeur du ratio Δ/T_c, plus élevée que celle prédite par BCS, cohérente avec l'idée d'une supraconductivité inhomogène d'après la théorie de la supraconductivité fractale précédemment décrite [Feigel'man et al., 2007], ainsi qu'une augmentation de ce ratio avec le désordre. La figure (1.28) montre en effet l'évolution de la température critique T_c et du gap spectral moyen $\tilde{\Delta}$ en fonction du désordre. Dans cette étude, le désordre est évalué via la mesure de la résistance par carré à température ambiante. Sur cette même figure, le désordre critique de la TSI est indiqué par la résistance du dernier échantillon supraconducteur (S_1) et celle du premier isolant (I_1). Alors que la T_c s'annule à la transition, le gap supraconducteur semble rester fini, cohérent avec un scénario où les paires de Cooper - localisées - persistent dans l'état isolant.

Dans la continuité de cette étude, une étude focalisée sur les propriétés des pics de cohérence a été réalisée à partir de mesures de films d'InO_x [Sacépé et al., 2011]. La figure (1.29) montre l'évolution en température des spectres typiques associés à la densité d'états locale, pour deux échantillons de désordre différent.

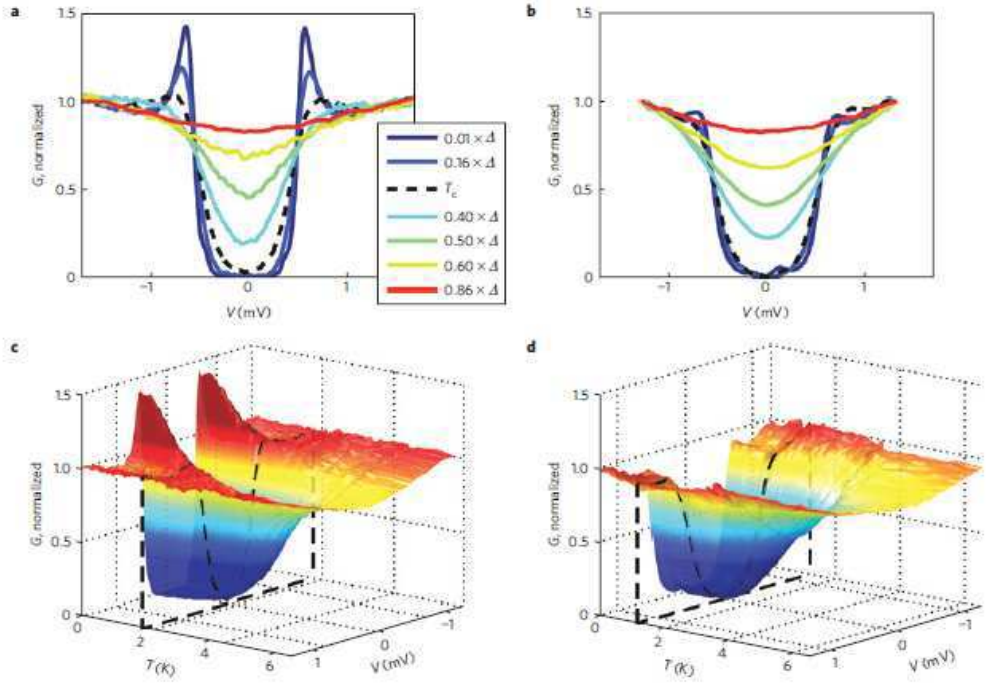

Figure 1.29 – Évolution en température de la conductance tunnel G, pour un échantillon faiblement désordonné (a et c), présentant des pics de cohérence en bordure de gap, et pour un échantillon fortement désordonné (b et d), où ces pics de cohérence ne sont plus visibles. Les lignes pointillées en noir correspondent aux spectres mesurés à la température critique supraconductrice T_c [Sacépé et al., 2011].

Pour $T < T_c$, les spectres de la figure (1.29) (a) et (c) sont caractérisés par l'apparition de pics de cohérence en bordure de gap, comme prédit par la théorie BCS et associés à la cohérence macroscopique du système. L'amplitude de ces pics augmente à mesure que la température diminue. Pour $T > T_c$, les deux types de spectres présentent des caractéristiques similaires, avec une réduction de la densité d'états au niveau de Fermi et l'absence de pics de cohérence, associée à la cohérence de phase macroscopique.

Pour les spectres des figures (1.29 (b) et (d)), ces pics de cohérence ne sont plus visibles pour $T < T_c$, signe de l'existence de paires préformées ne participant pas à l'état cohérent à l'origine de l'état non-dissipatif.

Une analyse quantitative de la distribution statistique de ces pics pour deux échantillons de désordre différent montre une prolifération de ces paires préformées, qui traduit un affaiblissement de la cohérence globale, en accord avec la prédiction d'un état de pseudogap à la transition.

1.4 Questions ouvertes et situation de notre travail

1.4.1 Quel diagramme de phases ?

La question des mécanismes à l'origine de la destruction de la supraconductivité est directement reliée à celle de l'état issu de la perte des propriétés de cohérence macroscopique. À 3D, nous avons vu que la théorie de la localisation d'Anderson prédit une transition métal-isolant induite par le désordre. Dans cette limite, la destruction de la supraconductivité par le désordre entre nécessairement en compétition avec cette TMI dans la détermination des différentes phases en présence.

Gantmakher considère trois diagrammes de phases possibles, représentés sur la figure (1.30) [Gantmakher and Dolgopolov, 2008].

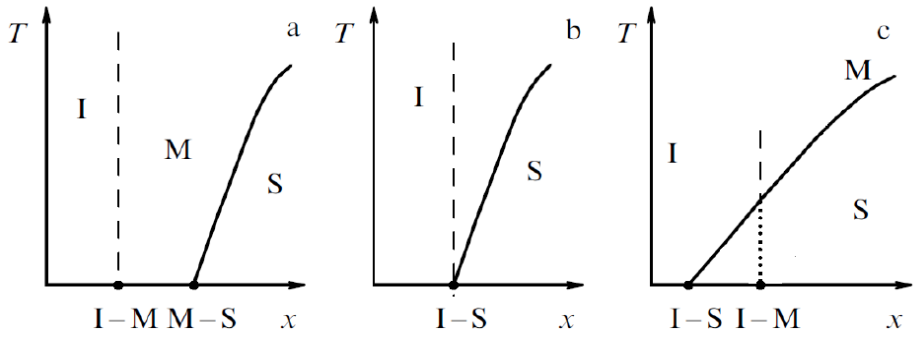

Figure 1.30 – Diagrammes de phases possibles à 3D pour décrire l'évolution entre les trois états fondamentaux isolant (I), métallique (M), et supraconducteur (S), en fonction du désordre. Les transitions de phase quantiques entre ces états, définies à T=0, sont représentées par des points sur l'axe horizontal. La courbe pleine représente la transition thermodynamique conduisant à l'état supraconducteur. L'état isolant n'étant défini rigoureusement qu'à température nulle, l'extension de cet état à température finie est virtuelle, représentée par des tirets [Gantmakher and Dolgopolov, 2008].

La supraconductivité peut être détruite dans la phase métallique de la TMI (fig. (1.30) (a)), persister dans la phase isolante de la TMI (fig. (1.30) (c)), ou être détruite précisément au désordre critique séparant ces deux phases (fig. (1.30) (b)).

1.4.1.1 Point de vue théorique

L'existence de ces différents scénarii est directement reliée aux théories précédemment introduites, et plus particulièrement à la dichotomie entre les modèles fermioniques et bosoniques.

En effet, dans le premier cas (fig. (1.30) (a)), la destruction de la supraconductivité dans une limite de relativement faible désordre est gouvernée principalement par des fluctuations de l'amplitude du paramètre d'ordre Δ. L'annulation de Δ conduit à un état métallique, de nature fermionique [Finkel'stein, 1994]. À plus fort désordre, cet état métallique évolue vers un état isolant. La TSI se décompose alors en deux Transitions Supraconducteur-Métal (TSM) et Métal-Isolant (TMI), successives et donc distinctes.

Les diagrammes correspondant aux figures (1.30) (b) et (c) sont à considérer en lien avec les modèles bosoniques. Le premier décrit deux transitions TSM et TMI simultanées, où l'état métallique ne constitue pas rigoureusement une phase, mais plutôt une singularité dans le diagramme de phase, comme théoriquement prédit par le Dirty Boson Model de Fisher [Fisher, 1990]. Dans le cas du second scénario, la phase supraconductrice persiste du coté isolant de la TMI, comme prédit par le modèle de la supraconductivité fractale de Feigelman et al. [Feigel'man et al., 2010].

Du scénario à l'origine de la transition dépend la nature microscopique des phases, et en particulier la nature des excitations dans chacune d'elles. Le cadre bosonique est directement lié à la problématique fondamentale des **conditions minimales pour l'existence d'un ordre supraconducteur**, et la question de savoir dans quelles limites peut persister un ordre supraconducteur, dans un état macroscopiquement incohérent de type métal de Bose [Das and Doniach, 1999, Dalidovich and Phillips, 2001] ou isolant de Bose [Steiner et al., 2008, Ovadia et al., 2013].

1.4.1.2 Point de vue expérimental

Expérimentalement, un grand nombre de matériaux ont été étudiés pour cette étude de la compétition entre désordre et supraconductivité. Selon les matériaux étudiés, différents types de diagrammes de phases ont pu être identifiés.

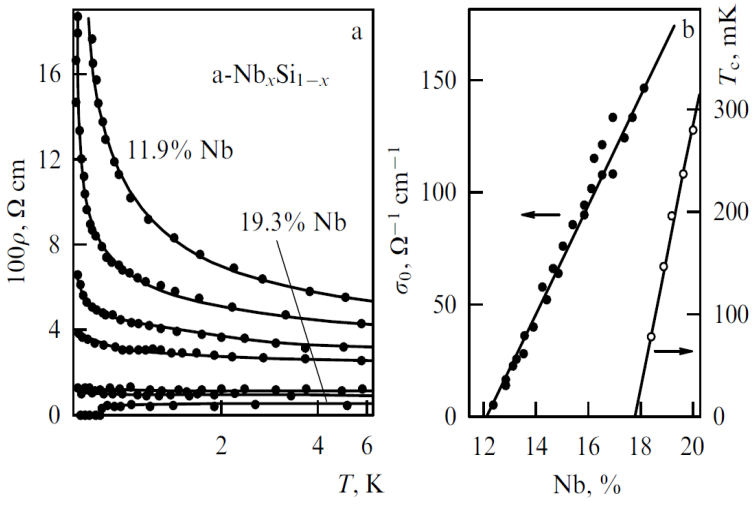

Figure 1.31 – Évolution de la résistivité en fonction de la température pour des films épais ($d \geq 100$ nm) de a-Nb$_x$Si$_{1-x}$ de différentes compositions (a) et évolution de la conductivité résiduelle et de la T$_c$ en fonction de la composition (b) [Bishop et al., 1985].

Le scénario décrit sur la figure (1.30 (a)) est obtenu notamment dans le cas des alliages semiconducteur-métal, par exemple pour Au$_x$Si$_{1-x}$ [Nishida et al., 1985], Mo$_x$Ge$_{1-x}$ [Yoshizumi et al., 1985], Al$_x$Ge$_{1-x}$ [Lesueur et al., 1988], et pour notre système d'étude : le Nb$_x$Si$_{1-x}$ [Hertel et al., 1983, Bishop et al., 1985], pour des films 3D.

Ces alliages présentent **deux transitions TSM et TMI successives** en fonction de leur composition x, comme représenté sur la figure (1.31) pour le Nb$_x$Si$_{1-x}$. Nous décrirons dans un chapitre dédié les propriétés électroniques de cet alliage, notamment en fonction de

sa composition x (chap. (3)).

Le diagramme de phase décrit sur la figure (1.30 (b)) présente le cas de **deux transitions supraconducteur-métal et métal-isolant simultanées**, comme observé pour des films de NbN épitaxiés, dont le désordre est varié par l'inclusion de lacunes de niobium dans la matrice cristalline du matériau [Mondal et al., 2011a]. Mondal et al. montrent en effet l'existence d'un même désordre critique pour la destruction de la supraconductivité et la localisation des états électroniques, conduisant à la TMI[8]. Dans cette étude, le désordre est quantifié par le paramètre de Ioffe-Regel $k_F l$ que nous avons précédemment introduit, déterminé par des mesures d'effet Hall et de résistivité à T = 285 K. Précisément, la figure (1.33) montre l'annulation simultanée de la température critique T_c et la conductivité résiduelle σ_0 pour un désordre critique, quantifié par $k_F l = 1$ [Mondal et al., 2011a].

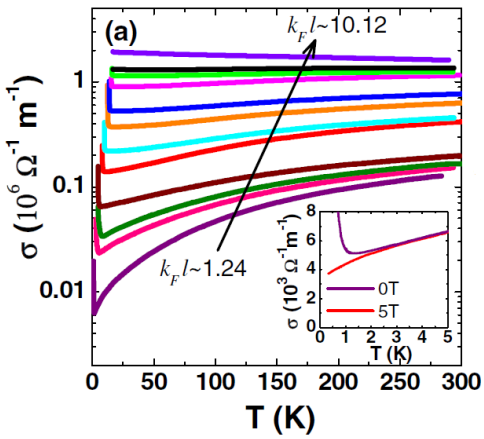

Figure 1.32 – Évolution de la conductivité en fonction de la température pour différents films épais de NbN ($d \geq 50$ nm) [Mondal et al., 2011a].

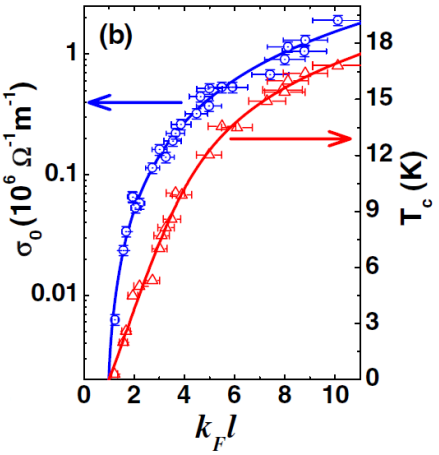

Figure 1.33 – Évolution de la conductivité résiduelle σ_0 et de la température critique supraconductrice T_c en fonction de $k_F l$, pour des films de NbN épais ($d \geq 50$ nm) [Mondal et al., 2011a].

Le troisième et dernier cas décrit la persistance de la supraconductivité dans la phase isolante de la TMI (fig. (1.30 (c))). Shahar et Ovadyahu ont mis en évidence un tel scénario pour des films d'InO_x, dont le désordre est varié par un recuit[9] [Shahar and Ovadyahu, 1992].

La figure (1.34 (a)) montre deux comportements distincts : un régime supraconducteur, caractérisé par une température critique T_c, et un régime isolant, décrit par une température d'activation T_0. L'évolution de ces deux températures en fonction du désordre, décrit par le paramètre $k_F l$[10], est représentée sur la figure (1.34 (b)). Pour $k_F l \simeq 0.3$, un croisement entre ces deux températures définit une **transition supraconducteur-isolant directe**.

[8] Notons qu'une même description a été faite pour des films de diamant, également épitaxiés, dopés en bore. Pour ce système, le paramètre à l'origine de ces deux transitions successives est la concentration en bore [Klein et al., 2007], le lien éventuel entre la phénoménologie de ces deux matériaux restant toutefois à éclaircir.

[9] Pour ce matériau, le recuit a pour effet d'appauvrir le système en oxygène et de le contracter spatialement [Ovadyahu and Imry, 1983], [Gantmakher, 1998]. Ces changemements morphologiques sont différents de l'effet du recuit que nous allons préciser par la suite pour le a-Nb_xSi_{1-x}.

[10] Ce paramètre est évalué à 300 K par des mesures de résistivité et d'effet Hall.

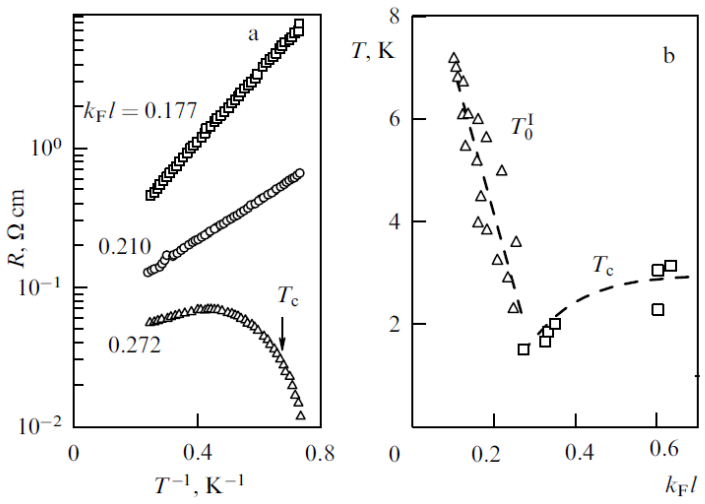

Figure 1.34 – Évolution de la résistivité en fonction de la température dans une représentation d'Arrhenius, pour différents échantillons d'InO_x (a). Évolution de la température critique supraconductrice T_c et de la température d'activation T_0 en fonction du paramètre $k_F l$ (b) [Shahar and Ovadyahu, 1992].

La disparition de la supraconductivité n'est donc plus définie à la TMI comme dans le cas précédent, qui correspondrait à l'extrapolation $T_0 \to 0$, mais pour un désordre critique où la température d'activation est finie, i.e. du coté isolant de la TMI.

1.4.1.3 Effet de la dimensionnalité : Cas 2D

Dans la limite 2D qui va nous intéresser par la suite, l'existence d'un état métallique n'est pas permise par la théorie d'échelle de la localisation. **Une transition directe entre les états supraconducteur et isolant est donc attendue**, lorsque la supraconductivité est détruite.

La mise en évidence d'un état métallique dans les gaz d'électrons 2D, confinés dans les hétérostructures semiconductrices ont cependant remis en question ce dogme de la théorie d'Anderson [Kravchenko et al., 1994, Kravchenko and Sarachik, 2004]. Cet état métallique a été interprété par l'existence de fortes interactions coulombiennes, non prises en compte dans la théorie d'échelle de la localisation.

Pour les films minces désordonnés, si l'observation de saturations de la résistance à très basse température est parfois interprétée comme traduisant un caractère intrinsèque du système, la question d'un éventuel état métallique apparaissant à la destruction de la supraconductivité est toujours sujette à débat, en particulier du fait de la limite quasi-bidimensionnelle de ces systèmes.

1.4.2 Situation de notre travail

Dans le prolongement des études déjà menées au sein du groupe lors des dernières années, nous avons étudié les propriétés de transport à très basse température des films minces de a-Nb_xSi_{1-x}, afin de comprendre notamment les mécanismes intervenant dans la modifications du désordre de ce système. En particulier, nous avons mené une étude de ces propriétés en

fonction du recuit, qui, comme nous allons le voir, permet un changement très progressif du désordre microscopique du système et permet donc de suivre la transition supraconducteur-isolant de manière très fine. Nous avons étudié le comportement des différentes phases en fonction de ce paramètre variant le désordre et de la dimensionnalité du système. La description de ces différentes phases constituera la seconde partie de ce manuscrit.

Parallèlement à ces mesures de transport à basse fréquence, nous avons développé un dispositif de mesure à haute fréquence, dans la gamme des micro-ondes, afin de sonder la dynamique du système à l'approche du point critique quantique, ainsi que la nature bosonique et/ou fermionique des excitations du système à l'approche de la TSI. Cette expérience et son contexte seront spécifiquement détaillés dans une troisième partie.

Deuxième partie

Transport statique

Chapitre 2

Dispositifs expérimentaux

Sommaire

2.1 Synthèse et contrôle des films de Nb_xSi_{1-x} 44
2.1.1 Fabrication des échantillons 44
2.1.2 Géométrie des films 45
2.1.3 Caractérisation par RBS 46
2.1.4 Recuit des échantillons 46
2.2 Morphologie des films 47
2.2.1 Morphologie des films non-recuits 47
2.2.2 Évolution en recuit 49
2.3 Mesures de transport à très basse température 50
2.3.1 Cryogénie 50
2.3.2 Mesure de résistances basse impédance à basses fréquences 53

Introduction

L'objet de ce chapitre est la présentation des différentes techniques expérimentales qui ont été utilisées dans le cadre de cette thèse, pour la synthèse, la caractérisation et l'étude - par des mesures de transport à basse fréquence et à très basse température - de films minces de a-Nb_xSi_{1-x}.

2.1 Synthèse et contrôle des films de Nb_xSi_{1-x}

Nous décrivons dans cette section la fabrication des échantillons dédiés aux mesures de transport à basse fréquence. Les échantillons étudiés par des mesures hyperfréquences, de géométrie différente, seront détaillés ultérieurement. L'étape de dépôt du Nb_xSi_{1-x} est néanmoins commune à ces deux types d'échantillons.

2.1.1 Fabrication des échantillons

Les films de Nb_xSi_{1-x} ont été synthétisés au CSNSM par co-évaporation sous ultra-vide. Nous détaillons ci-dessous le protocole de fabrication de ces échantillons.

Le processus de fabrication fait intervenir successivement deux évaporateurs, l'un dédié à l'évaporation des contacts ohmiques et l'autre au dépôt des films de Nb_xSi_{1-x}. Au sein de ces deux évaporateurs, un dispositif de changeur de masques mécaniques permet la sélection - in situ - des différents motifs à évaporer. Les films métalliques sont évaporés par canon à électrons, le SiO par effet Joule.

Évaporations des contacts

La première étape de fabrication consiste à déposer une sous-couche de SiO amorphe (d = 12.5 nm) sur un substrat de saphir[1], afin d'en atténuer la rugosité résiduelle. Nous évaporons ensuite sur ce substrat des pré-contacts Cr/Au (d = 2 nm / d = 200 nm), permettant de connecter électriquement les échantillons au porte-échantillon par micro-soudure de fils d'or, puis des électrodes de niobium (d = 50 nm) pour les mesures de résistance. Une sur-couche d'iridium ($d \sim 2.5$ nm) permet la protection de ces électrodes contre l'oxydation.

Évaporation des films de Nb_xSi_{1-x}

Les plaquettes ainsi préparées sont ensuite placées dans le second évaporateur pour le dépôt des films de Nb_xSi_{1-x}. Ces films sont synthétisés par co-évaporation de niobium et de silicium par canons à électrons[2].

Les films de Nb_xSi_{1-x} sont ensuite recouverts in situ par une sur-couche de protection de SiO amorphe, d'épaisseur typique d = 12.5 nm. Cette étape permet la protection du NbSi contre l'oxydation lors de la remise à l'air. L'auto-protection par le film de SiO_2 qui se formerait à la remise à l'air peut s'avérer suffisante pour des films épais. La protection

[1] Substrat poli optique, de dimensions latérales 20 × 30 mm^2 et d'épaisseur 1.2 mm.

[2] Une inhomogénéité de composition est inhérente à cette technique de dépôt. Cependant, le gradient de composition dû à l'écart entre les creusets est faible, estimé à $\frac{\delta x}{x} \sim 0.02\%$ entre les deux extrémités d'un film de 1 mm de long.

in situ permet un contrôle rigoureux de l'épaisseur effective du NbSi pour les couches minces.

Un dispositif de quartz piézoélectriques permet un contrôle in situ de l'épaisseur et de la composition du film déposé. Précisément, chaque creuset de Nb et de Si est associé à une paire de quartz piézoélectriques, placés de telle manière à ce que le flux médian entre ces deux quartz corresponde au flux incident sur le substrat (fig. (2.1)). Un asservissement de la puissance des canons à électrons sur la moyenne de chaque paire de quartz permet une régulation de la composition relative de Nb et Si pendant l'évaporation. Nous verrons par la suite que l'épaisseur et la composition sont systématiquement contrôlées ex situ par une caractérisation RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy), dont nous préciserons le principe. Le taux d'évaporation typique est de 1 Å/s. Le vide typique en début d'évaporation est de quelques 10^{-8} mbar et remonte à quelques 10^{-7} mbar au cours de l'évaporation.

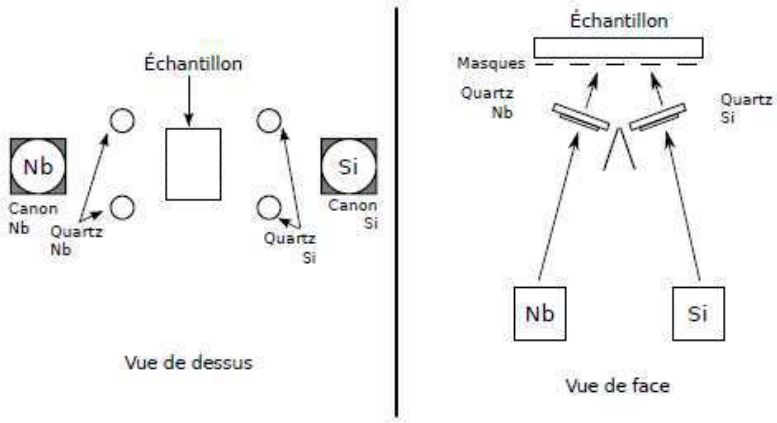

Figure 2.1 – Projections en vues de dessus et de face du montage dédié à la co-évaporation du NbSi.

Lors d'une même évaporation, un sélecteur de masques mécaniques permet la synthèse de films d'épaisseurs et/ou de compositions différentes. Nous pouvons ainsi synthétiser entre 4 et 8 films différents lors d'un même cycle d'évaporations, ce qui permet une bonne homogénéité des résistivités, soit au sein d'une série de films de même composition, soit pour une série de films de même épaisseur.

2.1.2 Géométrie des films

La géométrie des échantillons étudiés au cours de cette thèse est représentée sur la figure (2.2). Ces échantillons sont connectés par deux arrivées de courant et quatre prises de potentiels, permettant une mesure de résistance à quatre points des parties gauche et droite de chaque film.

Un motif de dents permet de rendre les bords isolants en utilisant les effets d'ombrage liés à la co-évaporation (fig. (2.1)). Nous pouvons ainsi nous affranchir d'une conduction parasite par les bords de l'échantillon, particulièrement problématique lors de la mesure de films supraconducteurs.

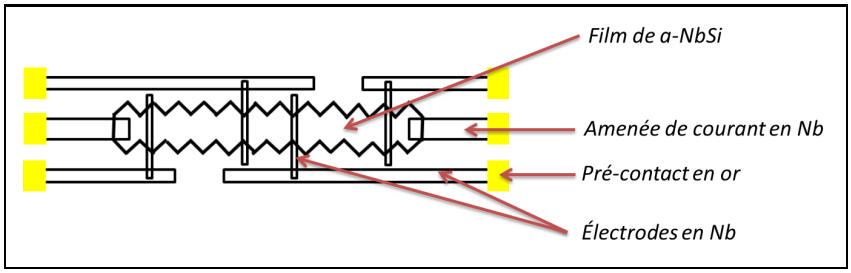

Figure 2.2 – Schéma de la géométrie des échantillons pour les mesures de transport basse fréquence.

2.1.3 Caractérisation par RBS

Après chaque dépôt, la composition et l'épaisseur des films sont contrôlées par une mesure de rétrodiffusion Rutherford (« Rutherford Backscattering Spectroscopy » (RBS)), effectuée sur l'accélérateur ARAMIS du CSNSM, sur des échantillons témoins.

Le principe de cette technique est le suivant : un faisceau d'ions légers, des ions He^+ d'énergie 1.2 MeV dans notre cas, est envoyé sur l'échantillon à caractériser et l'énergie des ions rétro-diffusés par celui-ci est mesurée. Cette énergie étant reliée au numéro atomique Z des atomes cibles, nous pouvons ainsi déterminer la composition du matériau. La perte d'énergie de ces ions dépend également de la profondeur sondée, ce qui rend possible la détermination de l'épaisseur de l'échantillon.

Les échantillons utilisés pour cette caractérisation RBS sont distincts de ceux mesurés en transport, mais synthétisés lors de la même évaporation, à proximité immédiate de ces derniers. Ces échantillons témoins ne sont pas protégés après l'évaporation de Nb_xSi_{1-x} par une couche de SiO afin de ne pas entacher la caractérisation. Contrairement aux échantillons de transport, ils sont déposés sur un substrat de Si recouvert de 200 nm de LiF, permettant une séparation énergétique entre les ions rétro-diffusés par les atomes de silicium du substrat et ceux provenant du film de Nb_xSi_{1-x}. Nous pouvons ainsi clairement identifier les pics correspondant aux atomes de Nb et Si du film déposé (fig. 2.3). Le ratio entre l'aire de chacun de ces pics permet de déterminer la composition de l'alliage. La largeur des pics permet d'obtenir l'épaisseur du film, via une calibration par une référence connue.

2.1.4 Recuit des échantillons

Comme nous allons le voir par la suite, le recuit d'un film de Nb_xSi_{1-x} permet la modification de ses propriétés physiques. Le protocole de recuit, réalisé grâce à une étuve, est le suivant : après un temps de montée d'une heure jusqu'à la température de consigne θ_{rec}, les échantillons sont stabilisés à θ_{rec} pendant une heure sous un balayage constant d'azote, afin de minimiser le risque d'oxydation des films. Nous laissons ensuite redescendre lentement la température du four, typiquement pendant une à trois heures, afin d'éviter tout choc thermique lorsque les échantillons sont sortis de l'étuve. Les températures de recuit considérées dans cette étude sont comprises entre 90°C et 250°C.

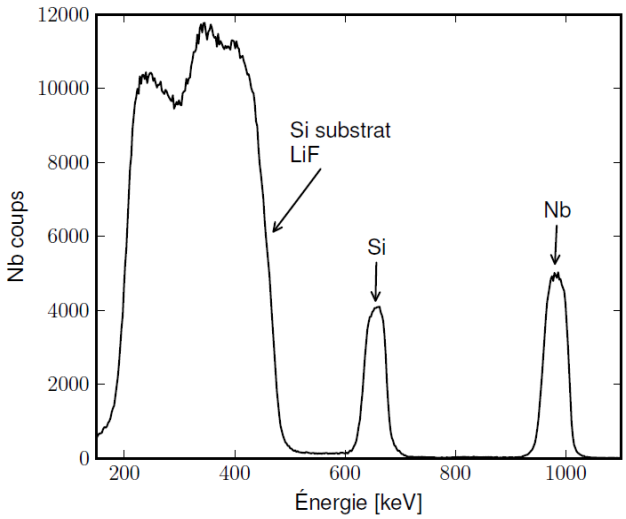

Figure 2.3 – Spectre de RBS typique d'un film de Nb_xSi_{1-x}, déposé sur un substrat de Si recouvert de LiF.

2.2 Morphologie des films

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, la qualification de la morphologie est particulièrement importante pour l'étude des effets du désordre sur la supraconductivité des films minces. En particulier, des études microscopiques menées antérieurement par le groupe [Crauste, 2010], ont montré que les films de Nb_xSi_{1-x} étaient amorphes et morphologiquement homogènes, par opposition aux matériaux granulaires, et ce jusqu'aux plus faibles épaisseurs étudiées, typiquement de l'ordre de quelques nanomètres. Nous allons brièvement rappeler ces résultats dans cette section.

2.2.1 Morphologie des films non-recuits

2.2.1.1 Caractérisation par microscopie à force atomique

Des mesures topographiques par microscopie à force atomique (AFM) ont été menées sur des films minces de Nb_xSi_{1-x}[3].

Ces mesures ont montré la continuité des films, même dans la limite des très faibles épaisseurs (d= 2.5 nm) (fig. (2.4)). De plus, la faible rugosité moyenne mesurée, de l'ordre de 1 Å, limitée par la résolution du microscope, révèle l'homogénéité des films en épaisseur, ce qui plaide en faveur d'une non-granularité morphologique du système.

2.2.1.2 Caractérisation par microscopie à transmission électronique

Afin de compléter cette caractérisation par AFM, et pour vérifier notamment l'homogénéité des films en composition et en épaisseur, une étude des films par Microscopie à Transmission Électronique (TEM) a été effectuée.

[3]Ces films ont été déposés sur un substrat de silicium, sans sous-couche amorphe et non recouverts de SiO, afin de caractériser au mieux la rugosité de surface de ces films.

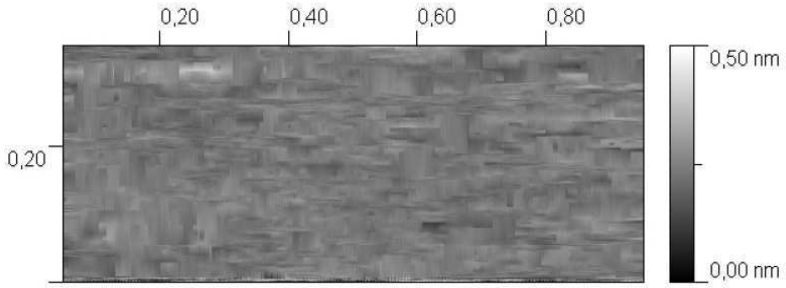

Figure 2.4 – Mesures par AFM d'un film de $Nb_{18}Si_{82}$ de 2.5 nm d'épaisseur. La zone mesurée est de dimensions 0.5×1 μm^2. [Crauste, 2010]

Le principe de cette technique réside dans la collecte des électrons transmis à travers un échantillon. La modulation de la transmission par les électrons de l'échantillon permet l'imagerie des fluctuations spatiales de densité électronique, que l'on peut alors relier à d'éventuelles fluctuations de composition ou d'épaisseur de l'échantillon.

Pour cette étude, les films de Nb_xSi_{1-x} ont été déposés sur une membrane de SiO_2 de 25 nm d'épaisseur, sans protection de SiO, afin de maximiser la transmission électronique à travers l'échantillon. La figure (2.5) montre les mesures ainsi obtenues, pour la membrane seule (a) et pour des films de Nb_xSi_{1-x}, déposés sur cette membrane, d'épaisseur 2.5 nm (b) et 10 nm (c). L'aspect granulaire visible sur l'image de la membrane seule, comme sur celles des films de Nb_xSi_{1-x} a été interprétée comme résultant de contraintes mécaniques au niveau de la membrane et ne correspond pas à une structuration morphologique des films. Ces mesures ont permis de conclure à l'absence de structures de taille supérieure à 2 nm pour des films de Nb_xSi_{1-x} d'épaisseur $d \geq 2.5$ nm. Ces résultats confirment le caractère non-granulaire des films, déjà mis en évidence par AFM.

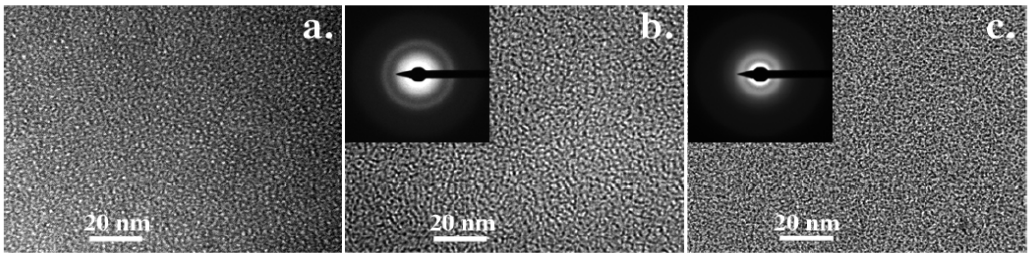

Figure 2.5 – Mesures par TEM obtenues pour la membrane de SiO_2 servant de substrat (a), et pour les films de $Nb_{18}Si_{82}$, d'épaisseur $d = 2.5$ nm (b) et $d = 10$ nm (c). Les figures de diffraction associées à ces échantillons sont présentées en insert [Crauste, 2010].

Simultanément à l'imagerie TEM, des clichés de diffraction ont été obtenus afin de caractériser l'ordre de ces films (insert des figures (2.5 (b) et (c))). Nous pouvons y voir la présence d'anneaux diffus, caractéristiques de l'absence d'ordre atomique, définissant l'état amorphe.

Par ailleurs, un filtrage de la transmission électronique en énergie (EFTEM : Energy

Filtered Tranmission Electronic Microscopy), respectivement sur la raie M (34 eV) du Nb (fig. (2.6 (b))) et la raie L (99 eV) du Si (fig. (2.6 (c))), permet une visualisation de la distribution spatiale de ces deux atomes. L'absence de structures visibles sur ces images assure l'homogénéité des films de Nb_xSi_{1-x}, à la fois en épaisseur et en composition ($\pm$ 0.1% en composition).

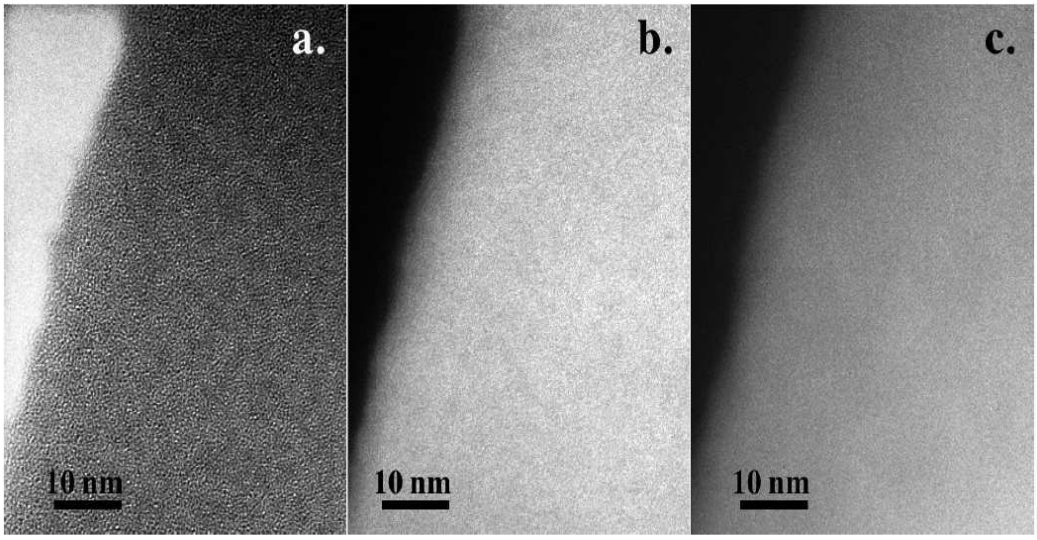

Figure 2.6 – Mesures par EFTEM d'un film de $Nb_{18}Si_{82}$, d'épaisseur $d = 2.5$ nm. L'image (a) correspond à une image TEM de l'échantillon (partie foncée). En haut à gauche de l'image (partie plus claire) se trouve le bord de la membrane, grâce auquel la mise au point a été réalisée. Les images (b) et (c) représentent respectivement le filtrage sur les raies du M du Nb et L du Si [Crauste, 2010].

2.2.2 Évolution en recuit

Une grande partie des résultats de cette thèse s'appuie sur l'évolution des propriétés du a-Nb_xSi_{1-x} avec le recuit. Il est donc particulièrement important de vérifier que ces traitements thermiques, dans la gamme de recuit étudiée, n'affectent pas la nature morphologique du matériau.

L'équipe a mené une étude microscopique, par TEM, de l'influence du recuit sur la morphologie du a-Nb_xSi_{1-x} [Crauste, 2010]. Celle-ci montre que pour un recuit modéré, les films minces de a-Nb_xSi_{1-x} restent amorphes et homogènes, au moins jusqu'à une température de recuit $\theta_{rec} = 250°C$.

Des mesures de TEM ont été effectuées sur un échantillon de $Nb_{18}Si_{82}$ (d= 2.5 nm), déposé sur une membrane et recouvert d'une sur-couche de SiO (d= 10 nm), afin de reproduire au mieux la situation des échantillons mesurés en transport. Cet échantillon a été recuit graduellement pendant 15 minutes dans l'enceinte à vide du microscope, de 70°C à 700°C [4].

[4] Les principaux effets de la relaxation du système due au recuit se faisant sentir dès les premières minutes [Lesueur, 1985], nous estimons qu'un recuit de cette durée est comparable au recuit des échantillons mesurés en transport.

Les résultats de ces mesures sont représentés sur la figure (2.7). Aucun changement morphologique n'est visible jusqu'à $\theta_{rec} = 500°C$. A partir de cette température, nous observons la formation de régions plus sombres, de taille typique comprise entre 5 et 10 nm, correspondant à une augmentation locale de la densité électronique (fig. (2.7 (e))). La densité de ces zones augmente avec la température de recuit.

Dans le même temps, nous observons l'apparition d'anneaux définis sur la figure de diffraction (fig. (2.7 (f))). Ces observations sont cohérentes avec la formation locale de cristallites, induite par le recuit pour ces hautes températures de recuit. Pour l'étude que nous allons exposer dans les prochains chapitres, il est important de noter que ces observations nous permettent d'exclure la formation de critallites de taille supérieure à 2 nm pour un recuit modéré de l'échantillon ($\theta_{rec} \leq 500°C$).

2.3 Mesures de transport à très basse température

2.3.1 Cryogénie

Les mesures de transport à basse fréquence (f < 100 Hz) ont été réalisées dans un cryostat à dilution au CSNSM (fig 2.8), dont la température minimale est de T $\simeq$ 7 mK, construit par Laurent Bouvot au Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay [Bouvot, 1996].

2.3.1.1 Principe général

Le principe de fonctionnement d'un tel cryostat repose sur la dilution d'un mélange ^{3}He/^{4}He. Lorsque ce mélange est refroidi en dessous de T$\sim$800 mK, une démixtion de ces deux isotopes conduit à la formation de deux phases, l'une concentrée en ^{3}He, l'autre diluée. Le pompage de la phase diluée génère du froid en forçant les atomes d'^{3}He à migrer de la phase concentrée à la phase diluée. L'^{3}He pompé, circulant en circuit fermé, est comprimé à température ambiante, pré-refroidi au niveau du pot à ^{4}He et des échangeurs à contre-courant puis réinjecté dans la chambre à mélange.

2.3.1.2 Thermométrie

Nous nous intéressons à la transition de phase quantique supraconducteur-isolant, dont le régime critique est défini à très basse température. Les mesures de transport que nous effectuons à très basse température dans le but de caractériser ce régime critique requièrent donc une très bonne précision et confiance dans la mesure de la température.

La thermométrie au niveau de la chambre à mélange, à proximité des échantillons (fig. 2.9), est réalisée par deux thermomètres secondaires blindés (Carbon Glass (CG) de type Matsushita et RuO_2) permettant de couvrir l'ensemble de la gamme de température d'intérêt :

- 7 mK < T < 400 mK : thermomètre Carbon Glass
- 100 mK < T < 10 K : thermomètre RuO_2

L'étalonnage du thermomètre RuO_2 a été effectué à partir de thermomètres calibrés, celui de la Carbon Glass a été complété par des mesures d'orientation nucléaire, donnant une mesure de la température absolue [Marrache-Kikuchi, 2006]. À très basse température (T $\leq$ 50 mK), nous n'observons pas d'écart supérieur à 1 mK entre ces deux thermomètres.

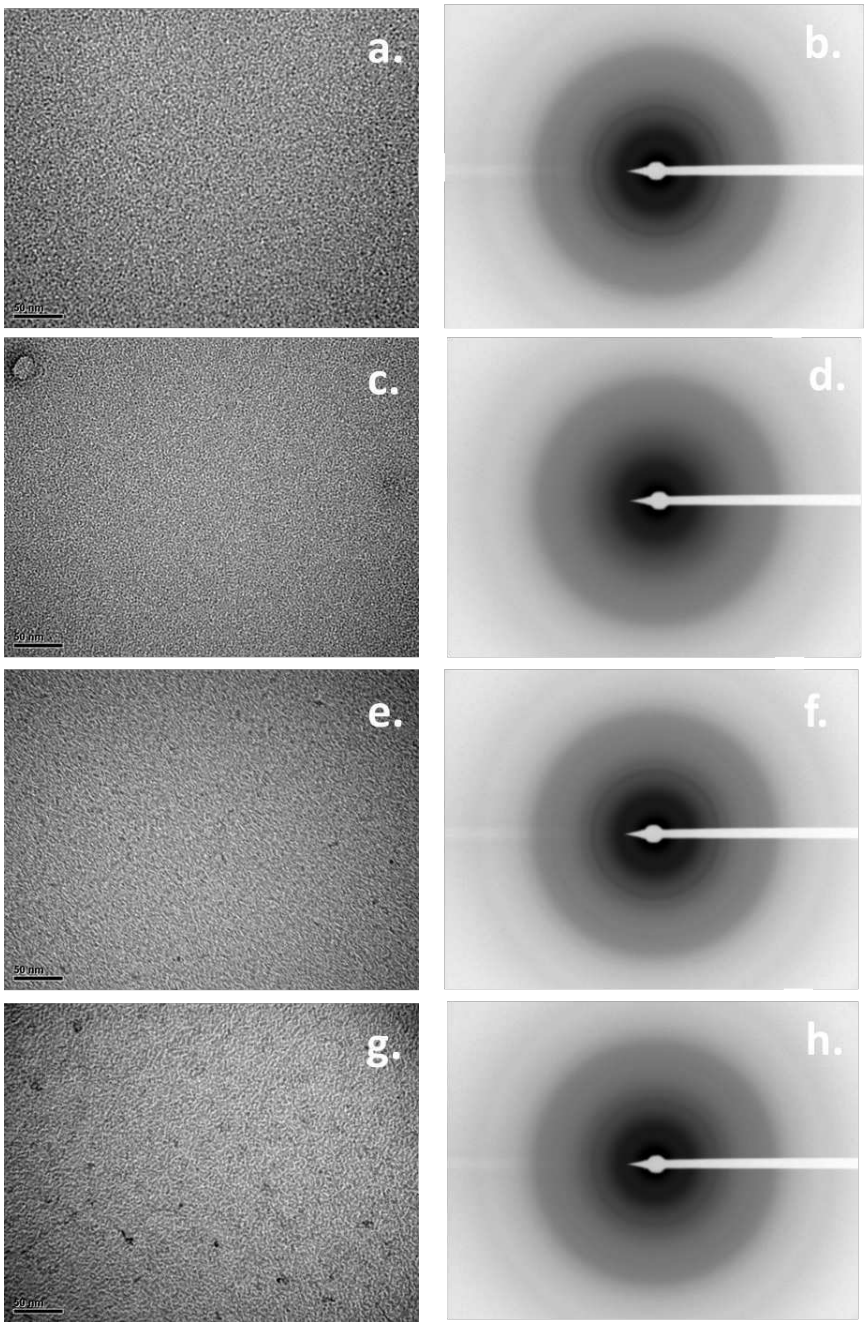

Figure 2.7 – Évolution des images TEM en fonction de la température de recuit θ_{rec}, pour un film de $Nb_{18}Si_{82}$ (d= 2.5 nm), avec les figures de diffraction associées. (a)/(b) correspondent au film non-recuit, (c)/(d) à $\theta_{rec} = 200°C$, (e)/(f) à $\theta_{rec} = 500°C$ et (g)/(h) à $\theta_{rec} = 700°C$ [Crauste, 2010].

2.3.1.3 Puissances parasites

Les mesures à très basse température sont particulièrement sensibles à toute forme de puissance parasite.

En se basant sur les mesures, nous discuterons dans le chapitre (4) les arguments per-

Figure 2.8 – Photographie du cryostat à dilution utilisé pour les mesures de transport à basse fréquence.

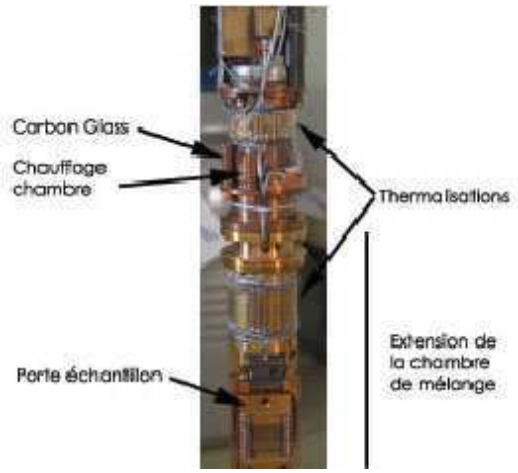

Figure 2.9 – Photographie de la chambre à mélange du cryostat.

mettant de nous assurer de l'absence de puissances parasites au niveau du porte-échantillon. Nous allons résumer dans ce paragraphe les précautions techniques prises pour empêcher la

présence de telles puissances [Marrache-Kikuchi, 2006].

Thermalisation des câbles de mesure Ce cryostat dispose de deux voies de mesures, chacune câblée par 25 câbles, soit coaxiaux soit bifilaires blindés en inox, permettant la mesure de deux plaquettes de quatre échantillons lors d'un même refroidissement. Afin de limiter l'apport de chaleur par conduction thermique sur la chambre à mélange, ces câbles sont thermalisés à différents étages du cryostat : à T = 4.2 K, T = 800 mK puis trois fois au niveau de la chambre à mélange avant l'échantillon.

Thermalisation des échantillons Les échantillons sont montés sur un porte-échantillon en cuivre doré, solidement fixé à proximité de la chambre de mélange (fig. (2.9)). Les plaquettes de saphir sont collées par de la graisse à vide sur le porte-échantillon afin de limiter les contraintes mécaniques et d'augmenter la surface de contact, et mécaniquement fixées par un systèmes de vis et ressorts. Les films de Nb_xSi_{1-x} sont thermalisés d'une part par les phonons du saphir, bon conducteur thermique, et d'autre part par la connection électrique via les fils d'or micro-soudés.

Rayonnement Un filtrage des photons radio-fréquence est effectué en tête de cryostat, par des filtres passe-bas de type Murata. Par ailleurs, un soin particulier a été pris afin de limiter autant que possible la transmission du rayonnement entre les différents étages du cryostat. Ces précautions sont détaillées dans la thèse de Claire Marrache-Kikuchi [Marrache-Kikuchi, 2006].

Vibrations mécaniques Le cryostat est monté sur une plaque à ressorts, permettant un découplage mécanique du cryostat de son environnement. Des soufflets souples permettent également d'amortir les vibrations provenant des tuyaux de pompage.

2.3.2 Mesure de résistances basse impédance à basses fréquences

Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes concentrés sur l'étude de films de a-Nb_xSi_{1-x} de basse impédance, typiquement de l'ordre de quelques $k\Omega$.

Les mesures de résistances basses impédances de ces films ont été effectuées par l'intermédiaire d'un pont de mesure bas bruit $TRMC_2$, développé à l'institut Néel, pouvant mesurer des impédances jusqu'à quelques $M\Omega$. Les échantillons sont ainsi mesurés par une méthode de détection synchrone, permettant la mesure de petits signaux, via une polarisation alternative en courant, de fréquence 25 Hz. Nous pouvons imposer un courant entre 10 pA et 80 μA et mesurer une tension entre 10 μV et 1.6 mV avec une précision d'échantillonnage de 16 bits.

Par ailleurs, la linéarité des caractéristiques courant-tension, assurant le régime ohmique des mesures, a été vérifiée par un montage différent, utilisant deux Lock-in, permettant la lecture de l'excitation traversant le film et la tension à ses bornes. Ce montage est représenté schématiquement sur la figure 2.10.

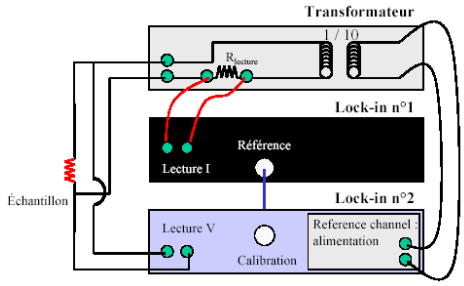

Figure 2.10 – Montage d'utilisation des Lock-In.

Chapitre 3

Caractéristiques électroniques générales du a-Nb_xSi_{1-x}

Sommaire

3.1 Transport électronique et morphologie des films 56
3.2 Effets de la composition 57
3.2.1 Évolution de la conductivité avec x 58
3.2.2 Évolution de $T_{c,bulk}$ avec x 58
3.2.3 Interprétation des effets de composition 59
3.3 Effets du recuit 60
3.3.1 Évolution de la conductivité avec le recuit 60
3.3.2 Évolution de la T_c avec le recuit 62
3.3.3 Interprétation de l'effet du recuit 63
3.4 Effets de l'épaisseur 64
3.4.1 Évolution de la résistivité avec l'épaisseur 64
3.4.2 Évolution de la T_c avec l'épaisseur 65
3.5 Comparaison des effets de composition, d'épaisseur et de recuit 66
3.5.1 Comparaison des effets de recuit et de composition 67
3.5.2 Comparaison des effets de recuit et d'épaisseur 67

Introduction

Le Nb_xSi_{1-x} est un alliage métal-semiconducteur, dont l'état fondamental électronique peut être modifié par une variation de sa composition x, de son épaisseur d ou par un recuit à la température θ_{rec}. Dans les conditions de synthèse que nous avons précédemment décrites et pour les compositions étudiées, nous avons montré le caractère amorphe de ce système. Nous allons consacrer ce chapitre à la présentation générale des propriétés de transport du a-Nb_xSi_{1-x} en fonction de ces différents paramètres, telles qu'établies jusqu'à présent par le groupe. Nous discuterons également l'effet de ces différents paramètres sur la modification du désordre.

Échantillon	Épaisseur (nm)	Composition (%)
α	23	13.5
β	19	13.5
γ	17	13.5
δ	14	13.5

Table 3.1 – Caractéristiques de la série d'échantillons CKSAS 3.

Nous présenterons également les caractéristiques des échantillons de la série CKSAS 3 mesurés lors de cette thèse (tab (3.1)). Cette série d'échantillons a été synthétisée pour cerner finement la transition supraconducteur-isolant à la composition $x = 13.5\%$. Elle est donc constituée de quatre films d'épaisseur variable, entre 14 nm et 23 nm, qui ont été recuits à des températures s'échelonnant de 90°C à 250°C. Nous nous attacherons à montrer la cohérence des mesures de ces films avec celles déjà obtenues par le groupe.

3.1 Transport électronique et morphologie des films

Tout d'abord, en complément de la section (2.2) du chapitre précédent, notons que les mesures de transport confirment le caractère homogène des films minces supraconducteurs de a-Nb_xSi_{1-x}.

La figure (3.1) montre l'évolution avec la température de la résistance de films de $Nb_{18}Si_{82}$ de différentes épaisseurs [Crauste, 2010]. L'évolution de la température critique supraconductrice T_c avec l'épaisseur est caractéristique des systèmes homogènes (section (1.3.2)) : nous observons un abaissement de la température critique T_c lorsque l'épaisseur est réduite, avec une transition supraconductrice qui reste raide. Nous n'observons ni l'élargissement de la transition supraconductrice ni les réentrances à basse température, caractéristiques des systèmes granulaires.

Par ailleurs, la mesure du couplage électron-phonon $g_{e-ph} \simeq 40$ W.K^{-5}.cm^{-3} (à T=100 mK), pour les films minces ($d = 17.5$ nm) est du même ordre de grandeur que celui déterminé pour des films épais [Marnieros, 1998]. Ceci montre que l'ensemble du film participe au processus de conduction électrique, ce qui nous permet d'exclure un transport percolant entre d'éventuels grains.

Comme souligné à la section (2.2), nous avons donc considéré que **les films supraconducteurs de a-Nb_xSi_{1-x} étaient morphologiquement homogènes.**

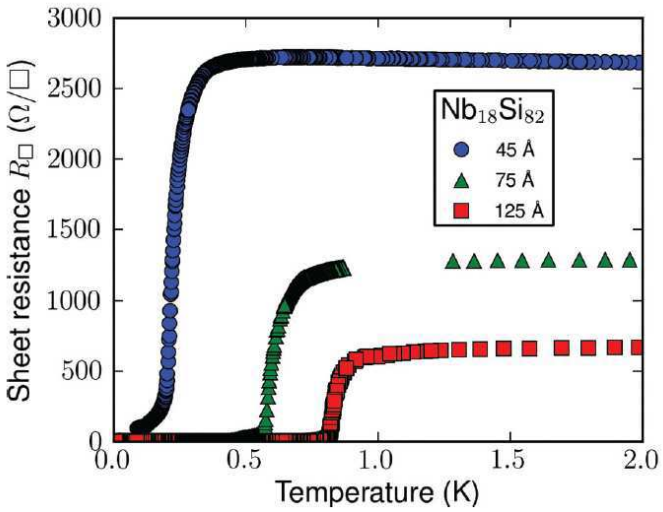

Figure 3.1 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ avec la température pour des films de $Nb_{18}Si_{82}$ de différentes épaisseurs [Crauste, 2010].

3.2 Effets de la composition

À 3D, le a-Nb_xSi_{1-x} peut être supraconducteur, métallique ou isolant selon sa composition.

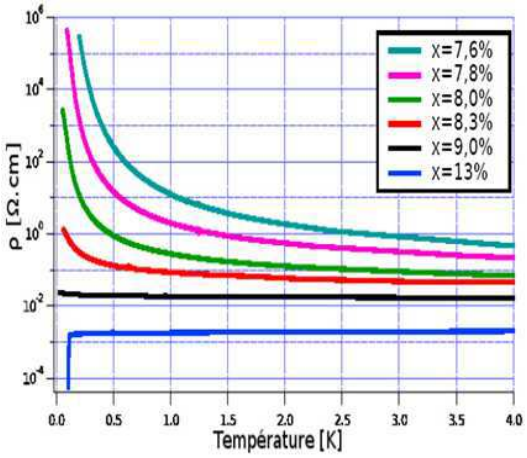

Figure 3.2 – Évolution de la résistivité avec la composition pour des échantillons épais (d = 100 nm de a-Nb_xSi_{1-x}) synthétisés par co-évaporation au CSNSM [Marnieros, 1998]. Les échantillons de composition en niobium x $\gtrsim$ 12% sont supraconducteurs, métalliques entre 10 % $\lesssim$ x $\lesssim$ 12% et isolant pour x $\lesssim$ 10 %.

La figure (3.2) montre l'évolution en température de la résistivité de films de a-Nb_xSi_{1-x} **épais** (d $\geq$ 100 nm), synthétisés au CSNSM par co-évaporation [Marnieros, 1998]. En fonction de la composition en niobium x de l'alliage, l'état fondamental évolue de supraconducteur (x $\gtrsim$ 12 %) à métallique (10 % $\lesssim$ x $\lesssim$ 12 %), puis isolant pour x $\lesssim$ 10 %.

Nous allons préciser les propriétés de ces films, en nous focalisant sur l'évolution de la

conductivité et de la température critique supraconductrice en fonction de la composition x.

3.2.1 Évolution de la conductivité avec x

La figure (3.3) montre l'évolution de la conductivité à l'état normal (T= 4.2 K), pour des films **épais** de a-Nb_xSi_{1-x} [Marnieros, 1998, Juillard, 1996, Marrache-Kikuchi, 2006, Crauste, 2010, Diener, 2013]. Nous observons une diminution linéaire de la conductivité lorsque la composition en niobium de l'alliage est réduite. L'extrapolation de cette dépendance linéaire de $\sigma(x)$ pour $\sigma \to 0$ donne une composition $x_c \simeq 10.2\%$, définissant une transition métal-isolant.

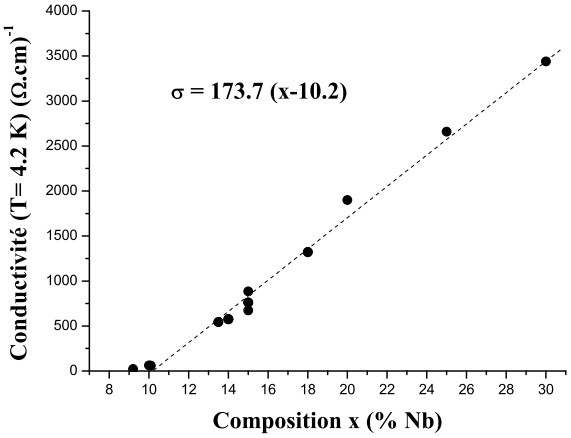

Figure 3.3 – Évolution de la conductivité à T = 4.2 K en fonction de la composition x pour des films de Nb_xSi_{1-x} épais (d $\geq$ 50 nm) [Juillard, 1996, Marnieros, 1998, Marrache-Kikuchi, 2006, Crauste, 2010, Diener, 2013].

Notons que cette composition critique est plus faible que celle déterminée pour les films de a-Nb_xSi_{1-x} synthétisés par co-sputtering par Bishop et al. [Bishop et al., 1985]. Cette différence peut s'interpréter par la différence de synthèse des échantillons. Il est en effet admis que le désordre effectif est plus important pour les films synthétisés par co-sputtering que pour les films co-évaporés.

3.2.2 Évolution de $T_{c,bulk}$ avec x

L'évolution de la température critique supraconductrice de films **épais** (d $\geq$ 50 nm), que nous notons spécifiquement $T_{c,bulk}$[1], est représentée sur la figure (3.4) en fonction de la composition x de l'alliage. Pour $x \lesssim 25\%$, nous observons une diminution linéaire de $T_{c,bulk}$ lorsque la composition x est réduite. Cette évolution linéaire de la température critique avec la composition, également observée pour d'autres alliages semiconducteur-métal tels que Mo_xSi_{1-x} [Ikebe et al.,] ou encore Mo_xGe_{1-x} [Yoshizumi et al., 1985], est cohérente avec une réduction de la densité d'états électronique lorsque la concentration d'atomes métalliques diminue.

[1]Pour les échantillons épais, typiquement d $\gtrsim$ 50 nm, les différents critères permettant une définition de la température critique supraconductrice (annulation de la résistance ou maximum de la dérivée dR/dT) coïncident à quelques pourcents près.

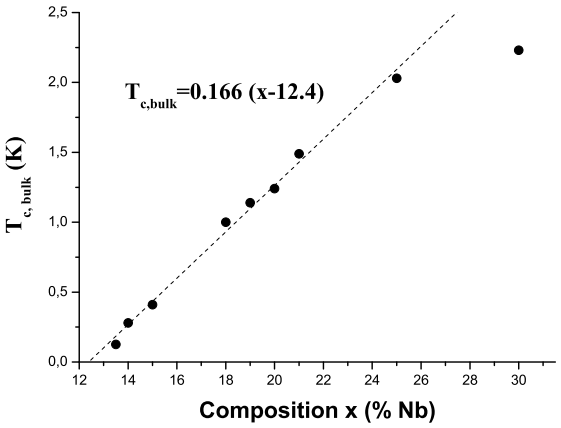

Figure 3.4 – Évolution de la température critique supraconductrice $T_{c,bulk}$ des films épais de a-Nb_xSi_{1-x} en fonction de la composition x (d $\geq$ 50 nm) [Juillard, 1996, Marnieros, 1998, Marrache-Kikuchi, 2006, Crauste, 2010, Diener, 2013].

L'écart à la linéarité de $T_{c,bulk}(x)$ observé pour le seul film de $Nb_{30}Si_{70}$ ne permet pas de conclure quant à une éventuelle saturation de $T_{c,bulk}$ à forte composition. Celle-ci est cependant probable, étant donnée la température critique de 9.2 K du niobium pur ($x = 100\%$), inférieure à la valeur obtenue par l'extrapolation de l'évolution linéaire de $T_c(x)$ à $x = 100\%$. Ajoutons également que l'évolution de $T_c(x)$ pour l'alliage Au_xSi_{1-x} présente également une saturation de T_c à forte composition x ($x \simeq 20\%$) [Nishida et al., 1985].

L'extrapolation de $T_c(x) \rightarrow 0$ dans la gamme linéaire donne une composition critique $x_c \simeq 12.4\%$ pour l'existence de la supraconductivité à 3D. Tout comme pour la transition métal-isolant, cette composition critique est plus faible que celle de 18% obtenue par Bishop et al. [Bishop et al., 1985].

3.2.3 Interprétation des effets de composition

L'effet majeur d'une augmentation de la composition en niobium est assimilable à un dopage du système en électrons, changeant par conséquent la densité d'états au niveau de Fermi et donc le vecteur d'onde de Fermi k_F.

En effet, les études de structures réalisées sur des films de a-Nb_xSi_{1-x} de différentes compositions ($x = 12\%$, 20% et 65%) ne montrent pas de changement de la distance moyenne inter-atomique ($d_{Nb-Si} = 2.6$ Å) [Wiech et al., 1989, Hucknall et al., 1992]. Le libre parcours moyen l, essentiellement limité par cette distance inter-atomique dans les systèmes amorphes, est donc vraisemblablement peu affecté par un changement de composition.

Il est par conséquent raisonnable de penser que la composition modifie le paramètre de Ioffe-Regel k_Fl en changeant le vecteur d'onde de Fermi k_F, laissant le libre parcours moyen l essentiellement inchangé.

Pour aller plus loin dans cette interprétation, nous pouvons estimer la variation de la densité électronique n_e due à un changement de composition, en considérant l'évolution de

$\sigma_N(x)$, où σ_N est la conductivité à l'état normal. Par un simple modèle d'électrons libres, σ_N est donnée par :

$$\sigma_N = \frac{le^2}{\hbar}\left(\frac{{n_e}^2}{3\pi^2}\right)^{1/3} \tag{3.1}$$

Les valeurs des principales grandeurs fermiologiques, obtenues en imposant un libre parcours moyen de quelques angströms[2], sont résumées dans le tableau (3.2) pour différentes compositions en niobium. On donne également celles du niobium pur, pour comparaison [Ashcroft and Mermin, 1976].

x	10%	13.5%	15%	20%	25%	30%	100%
σ_N $(\Omega.\mathrm{m})^{-1}$	$6,27.10^3$	$5.5.10^4$	$8,85.10^4$	$1,90.10^5$	$2,66.10^5$	$3,43.10^5$	
n_e $(10^{26}$ $\mathrm{m}^{-3})$	0.6	16.5	27	107	177	260	555
E_F (eV)	0.06	0.5	1.1	1.5	2.5	3.2	5.3
v_F $(10^6$ $\mathrm{m.s}^{-1})$	0.1	0.4	0.5	0.8	0.9	1.1	1.4

Table 3.2 – Évolution des principales propriétés électroniques en fonction de la composition. Les valeurs du niobium pur sont issues de [Ashcroft and Mermin, 1976].

Nous remarquons que les densités électroniques ainsi estimées sont relativement importantes, comparable à celle de l'or ($n_e = 6.10^{28} m^{-3}$), traduisant le caractère métallique de la densité d'états du système.

3.3 Effets du recuit

Nous avons montré dans le chapitre (2), que les caractérisations effectuées sur les films de a-Nb_xSi_{1-x} ne révèlent pas d'évolution morphologique du système avec la température de recuit θ_{rec}, pour un recuit modéré. Toutefois, une modification des propriétés de transport est observée, que nous interprétons par un changement du désordre microscopique. Nous allons présenter dans cette section l'évolution de ces propriétés en fonction de θ_{rec}.

3.3.1 Évolution de la conductivité avec le recuit

La figure (3.5) montre l'évolution de la conductivité σ à T=4.2 K en fonction de la température de recuit θ_{rec}, pour une série de films de $Nb_{18}Si_{82}$ d'épaisseurs différentes [Crauste, 2010], la figure (3.6) cette même évolution pour les quatre films de la série CKSAS 3.

Pour une température de recuit supérieure à la température de dépôt[3], nous observons une diminution linéaire de $\sigma(\theta_{rec})$ pour les films d'épaisseur d $\geq$ 7.5 nm et x = 18%.

Pour les films les plus minces, une déviation par rapport à cette évolution est observée, d'autant plus forte que l'épaisseur du film est faible. Nous définissons la température de recuit θ_{max} à partir de laquelle la rupture de la linéarité de $\sigma(\theta_{rec})$ est observée, conduisant

[2] L'évaluation des paramètres fermiologiques est obtenue en fixant le libre parcours moyen l = 5 Å [Crauste, 2010]. Cette valeur de quelques angströms est typique des systèmes amorphes, très désordonnés [Bezryadin, 2012].

[3] Nous estimons que le dépôt du film est équivalent à un recuit à T∼70°C, dû au rayonnement des sources perçu par l'échantillon lors des évaporations. Cette température de recuit effective est obtenue par l'extrapolation de la linéarité de $\sigma(\theta_{rec})$.

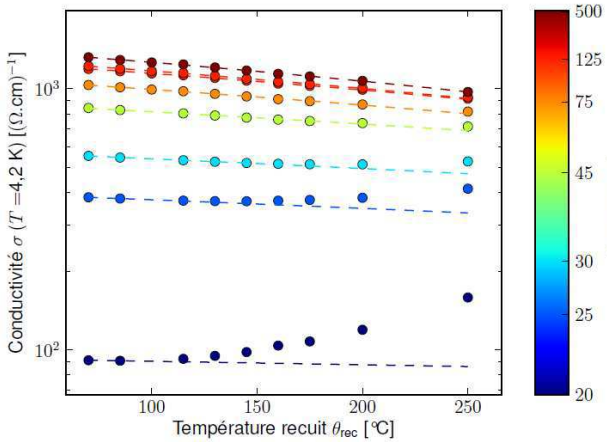

Figure 3.5 – Évolution de la conductivité à T = 4.2 K en fonction de la température de recuit θ_{rec}, pour les différents films de la série OC 6 ($x = 18\%$) [Crauste, 2010].

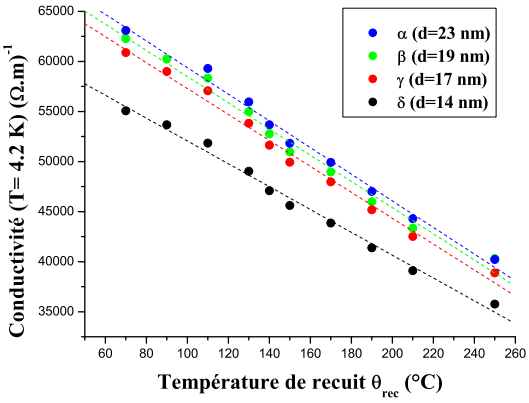

Figure 3.6 – Évolution de la conductivité à T= 4.2 K en fonction de la température de recuit pour les films de la série CKSAS 3.

à une augmentation de σ : θ_{max} est d'autant plus faible que le film est mince (fig. (3.7)).

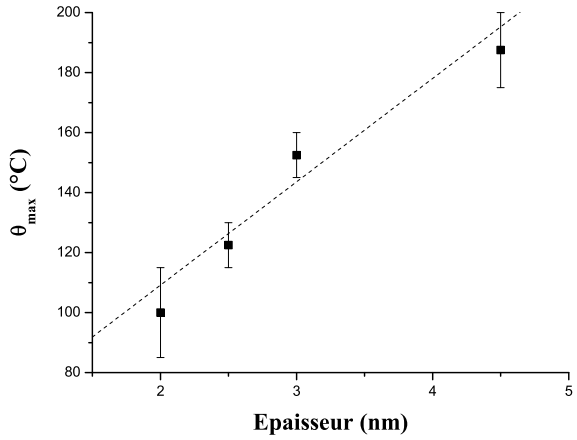

Figure 3.7 – Évolution de θ_{max}, définie par la rupture de la linéarité de $\sigma(\theta_{rec})$, en fonction de l'épaisseur pour les films de la série OC 6 ($x = 18\%$) [Crauste, 2010].

Nous avons vu au chapitre (2) que les mesures de TEM en recuit montrent l'apparition de cristallites à partir de $\theta_{rec} = 500°C$. Cependant, la résolution spatiale du microscope ne nous permet pas d'exclure la formation de cristallites, de taille inférieure à 2 nm, pour une température de recuit plus faible. Nous pensons que les mesures de transport sont extrêmement sensibles à la structure microscopique des films et permettent d'identifier une amorce de ré-organisation avant les caractérisations microscopiques. Nous avons donc interprété le changement de comportement à θ_{max} par une amorce de modification morphologique

des films. Pour $\theta \geq \theta_{max}$, nous pensons que le recuit réorganise structurellement le film[4], conduisant à une augmentation de la conductivité σ. Corrélativement, nous pensons que **la linéarité de $\sigma(\theta_{rec})$ traduit l'absence de changement morphologique du système**.

Concernant les échantillons étudiés lors de cette thèse, les CKSAS 3, la linéarité de $\sigma(\theta_{rec})$ est observée sur toute la gamme de températures de recuit utilisée. Nous avons donc considéré que ces échantillons demeuraient amorphes et homogènes.

L'ensemble des données que nous considèrerons par la suite pour l'étude des propriétés physiques du a-Nb_xSi_{1-x} (la série CKSAS 3 et les autres échantillons préalablement synthétisés) sera restreint à la gamme de recuit $\theta_{rec} < \theta_{max}(d)$.

3.3.2 Évolution de la T_c avec le recuit

La figure (3.8) montre l'évolution des $R_\square(T)$ d'un film supraconducteur de $Nb_{18}Si_{82}$ à différentes températures de recuit, précédemment mesuré au sein du groupe [Crauste, 2010]. Conformément aux résultats du paragraphe précédent, nous observons une augmentation de la résistance à l'état normal lorsque la température de recuit θ_{rec} augmente. Nous verrons dans le paragraphe suivant que cette augmentation de la résistance à l'état normal traduit selon nous une augmentation du désordre. Dans le même temps, nous observons un abaissement de la température critique supraconductrice T_c lorsque θ_{rec} augmente, comme attendu lorsque le désordre augmente.

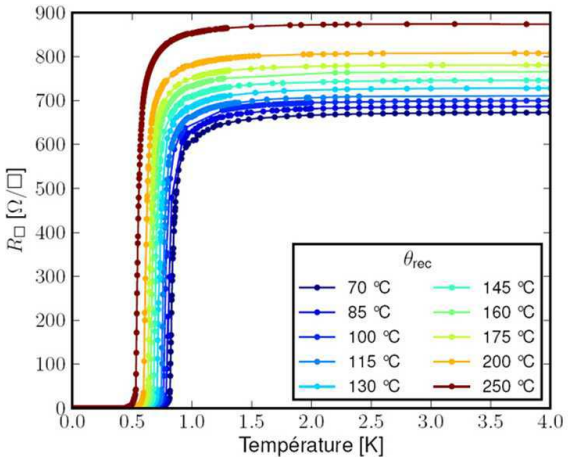

Figure 3.8 – Évolution des $R_\square(T)$ d'un film de $Nb_{18}Si_{82}$, d'épaisseur $d = 12.5$ nm, en fonction de la température de recuit [Crauste, 2010].

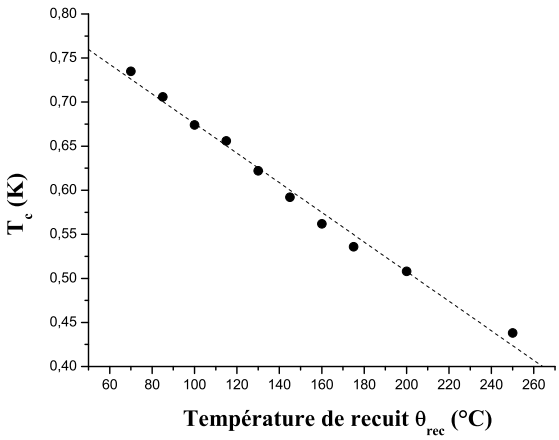

Figure 3.9 – Évolution de la T_c avec la température de recuit pour un film de $Nb_{18}Si_{82}$ (d= 12.5 nm) [Crauste, 2010].

L'évolution de la T_c de ce film avec θ_{rec} est représentée sur la figure (3.9) et montre une diminution linéaire. Cette évolution est caractéristique des films supraconducteurs de a-Nb_xSi_{1-x}, quelque soit leur épaisseur et composition. L'effet du recuit sur l'abaissement de la T_c d'un film semble être toutefois d'autant plus important que son épaisseur est faible [Crauste, 2010], comme cela est visible sur la figure (3.10). Nous n'avons pas à ce jour d'interprétation satisfaisante de cette observation.

[4]Cette réorganisation structurelle se fait à une échelle atomique.

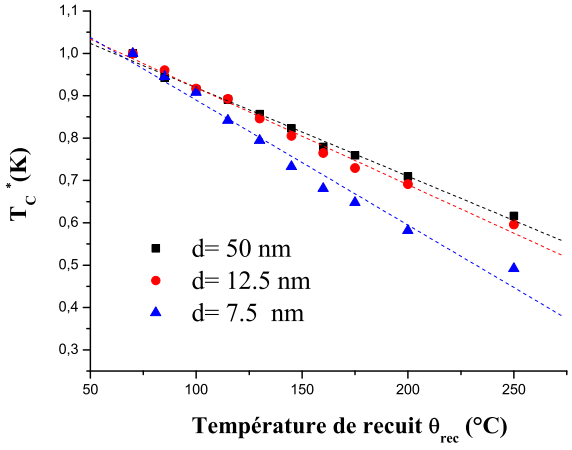

Figure 3.10 – Évolution de $T_c^\star = \dfrac{T_c(\theta_{rec})}{T_c(70°C)}$ en fonction de θ_{rec} pour des films de a-$Nb_{18}Si_{82}$ de différentes épaisseurs [Crauste, 2010].

Comme la conductivité, la T_c est très sensible à un changement structural [Crauste, 2010], nous pensons donc que l'observation de la linéarité de $T_c(\theta_{rec})$ est un élément supplémentaire, confirmant l'absence de changement morphologique avec le recuit.

3.3.3 Interprétation de l'effet du recuit

Une interprétation de la diminution de la conductivité avec le recuit peut être formulée en lien avec les travaux théoriques de Béal et Friedel, qui considèrent la relaxation due à un apport d'énergie externe, tel que le recuit, dans les alliages binaires [Béal and Friedel, 1964]. Pour ce type de systèmes, la relaxation d'énergie s'effectue par une réorganisation locale du système via des *mouvements subatomiques*, conduisant à une modification de la figure d'interférences de la diffusion électronique. Béal et Friedel montrent que ces changements conduisent systématiquement à une diminution de la conductance locale, caractéristique du désordre microscopique dans le cadre de localisation d'Anderson [Abrahams et al., 1979].

Par ailleurs, les mesures d'effet Hall réalisées par Nava et al. sur des films épais de $Nb_{26}Si_{74}$ à différentes températures de recuit, montrent que la densité électronique n'est pas affectée par le recuit jusqu'à $\theta_{rec} = 270°C$ [Nava et al., 1986]. Nous pensons donc que le vecteur d'onde de Fermi k_F n'est pas modifié par le recuit.

Notre interprétation est donc que le recuit affecte le paramètre de Ioffe-Regel $k_F l$ par une modification du libre parcours moyen l, tout en laissant le vecteur d'onde de Fermi k_F inchangé.

Pour notre système, le recuit apparait donc comme un paramètre particulièrement intéressant, permettant une modification très fine du désordre microscopique d'un échantillon.

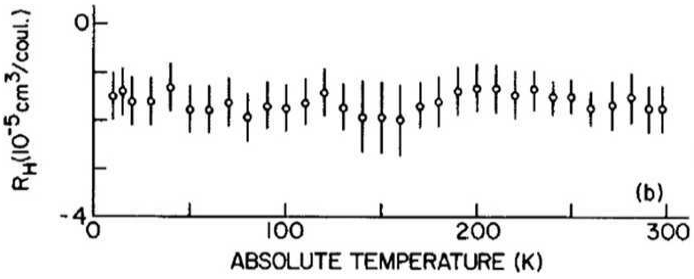

Figure 3.11 – Évolution de la résistance de Hall en fonction de la température de recuit, mesurée sur des films de 100 nm de $Nb_{26}Si_{74}$ [Nava et al., 1986].

3.4 Effets de l'épaisseur

3.4.1 Évolution de la résistivité avec l'épaisseur

Comme pour tous les matériaux, la résistivité des films épais de a-Nb_xSi_{1-x} est une caractéristique du matériau, dépendante de la composition x, comme nous l'avons déjà vu (fig (3.3)), mais non de l'épaisseur. La constance de la résistivité, à x fixée, entre différentes évaporations, témoigne d'ailleurs de la qualité et de la reproductibilité de celles-ci. Cependant, pour des films suffisamment minces (d $\lesssim$ 10 nm), une augmentation de la résistivité avec la diminution de l'épaisseur d est observée (fig. (3.12)).

La nature très désordonnée de notre système élimine a priori le rôle des surfaces dans cette augmentation de la résistivité des films les plus minces. En effet, comme nous l'avons déjà mentionné, les films de a-Nb_xSi_{1-x} sont caractérisés par un libre parcours moyen de l'ordre de la distance inter-atomique, très inférieur à l'épaisseur des films. La loi de Fuchs décrivant une augmentation de la résistivité par un terme de réflexions diffuses dues aux surfaces ne s'applique donc pas à nos films [Sondheimer, 1952][5]. Nous ne pouvons par contre exclure les effets de localisation pour expliquer ces observations, avec une probable augmentation des corrections quantiques de localisation faible à mesure que l'épaisseur de nos films est réduite.

La figure (3.12) montre l'évolution de la résistivité avec l'épaisseur pour différentes séries en composition, dont la série CKSAS 3 mesurée au cours de cette thèse. La comparaison de ces différentes séries montre que la résistivité des films de la série CKSAS 3 est plus grande que celle des films de la série OC 5, correspondant à la même composition nominale de x = 13.5 %.

Ces différences peuvent s'interpréter soit par une sur-composition en niobium de la série CKSAS 3, que l'on peut évaluer à $\Delta x \simeq 0.2\%$, soit par une sous-estimation de l'épaisseur, estimée à $\Delta d \simeq 2$ nm. Cette dernière incertitude est supérieure à la reproductibilité des évaporations en épaisseurs. Nous privilégions donc l'hypothèse d'un léger écart en composition, compatible à la fois avec les mesures RBS et avec les limites de reproductibilité des évaporations.

[5] Par ailleurs, l'augmentation de la résistivité à basse épaisseur est plus importante que la dépendance en $1/d$ prédite par la loi de Fuchs.

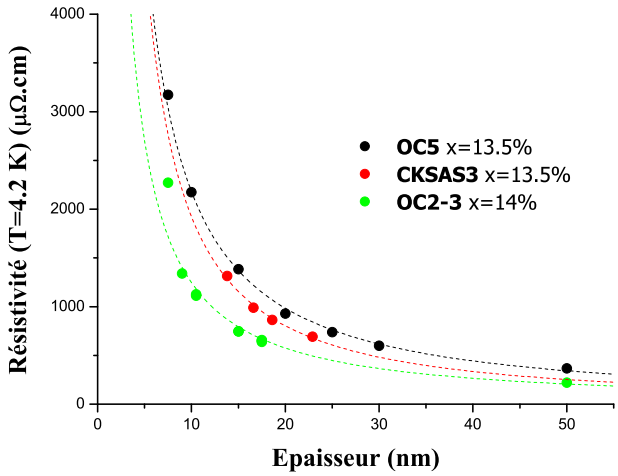

Figure 3.12 – Résistivité à $T = 4.2$K en fonction de l'épaisseur pour les séries CKSAS 3 (x=13.5%), OC 2/3 ($x = 14\%$) et OC 5 ($x = 13.5\%$).

3.4.2 Évolution de la T_c avec l'épaisseur

La figure (3.13) montre l'évolution des $R_\square(T)$ avec l'épaisseur, pour les films de $Nb_{18}Si_{82}$ [Crauste, 2010]. Les échantillons les plus épais sont supraconducteurs, les plus minces isolants. Une réduction de l'épaisseur des films induit une augmentation de la résistance à l'état normal R_n. Cette augmentation de la résistance est associée à une diminution de la température critique supraconductrice T_c. En-deçà d'une certaine épaisseur d_c, la supraconductivité disparaît ($T_c = 0$).

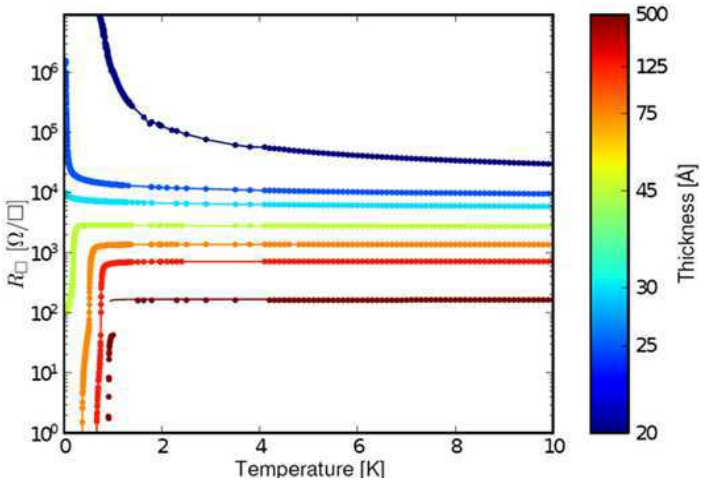

Figure 3.13 – Évolution des $R_\square(T)$ pour des films de $Nb_{18}Si_{82}$, d'épaisseurs différentes [Crauste, 2010].

Nous avons représenté l'évolution $T_c(1/d)$ sur la figure (3.14), pour les films des séries OC 2/3 et 5 [Crauste et al., 2009], encadrant en composition la série CKSAS 3. Notons que la

linéarité de T_c avec l'inverse de l'épaisseur observée est une caractéristique de notre système, quelque soit sa composition. La comparaison de la série CKSAS 3 avec ces deux séries déjà étudiées confirme que les échantillons CKSAS 3 ont vraisemblablement une composition légèrement supérieure à la composition nominale ($x \simeq 13.7\%$ au lieu de $x = 13.5\%$).

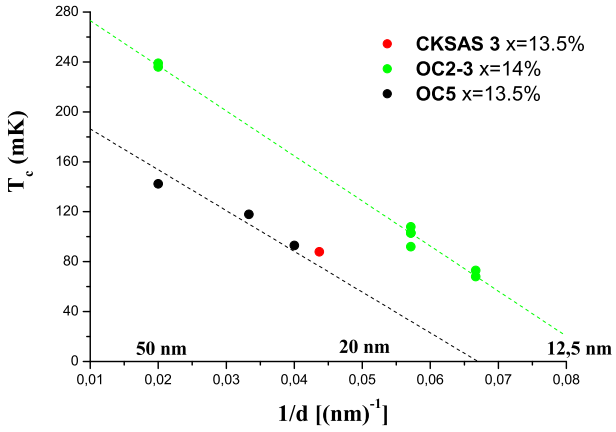

Figure 3.14 – Évolution de la T_c avec l'inverse de l'épaisseur pour les séries CKSAS 3 (x=13.5%), OC 2/3 ($x = 14\%$) et OC 5 ($x = 13.5\%$).

3.5 Comparaison des effets de composition, d'épaisseur et de recuit

Nous avons montré qu'une variation de la composition du Nb_xSi_{1-x} pouvait être interprétée par un effet de dopage, conduisant à un changement du vecteur d'onde de Fermi k_F dans le paramètre de désordre k_Fl. Par ailleurs, les effets du recuit peuvent s'expliquer par un changement du désordre microscopique du système, que l'on peut relier à une modification de k_Fl via un changement du libre parcours moyen l. En revanche, si k_Fl, que l'on peut relier à $R_\square$ dans la limite 2D (éq. (3.2)), est modifié par l'épaisseur, on peut se poser la question de savoir si ce paramètre induit uniquement un changement du désordre ou s'il inclut des effets plus complexes, tels qu'une réduction de la dimensionnalité effective du système par exemple.

$$(k_Fl)_{2D} = \frac{1}{R_\square}\frac{h}{e^2} \tag{3.2}$$

Nous présentons dans cette section la comparaison de l'influence de la composition x, de l'épaisseur d et de la température de recuit θ_{rec} sur les abaissements de T_c, déjà obtenue pour le Nb_xSi_{1-x} [Crauste, 2010], [Crauste et al., 2013].

Nous allons considérer l'influence de $R_\square$, modifiée par chacun de ces paramètres expérimentaux, sur la réduction de T_c. Cette étude révèle **un rôle particulier de l'épaisseur sur la supraconductivité**, marquant une distinction entre les effets dimensionnels (d) et les effets de désordre (x et θ_{rec}), et par conséquent l'impossibilité d'une description commune de ces effets par le seul paramètre $R_\square$, ou de façon équivalente par k_Fl.

3.5.1 Comparaison des effets de recuit et de composition

La figure (3.15) montre l'évolution de T_c en fonction de $R_\square$, modifiée soit par une augmentation de la composition x, soit par un recuit à la température θ_{rec}, pour des films de même épaisseur (d = 50 nm). Chaque forme représente une composition différente, comprise entre $x = 13.5\%$ et 18%, et chaque couleur une température de recuit comprise entre $\theta_{rec} = 70°C$ et 250°C. Nous observons une seule et même évolution de $T_c(R_\square)$, indiquant que T_c est uniquement déterminée par la valeur de $R_\square$, quelque soit le paramètre à l'origine de sa modification (x ou θ_{rec}).

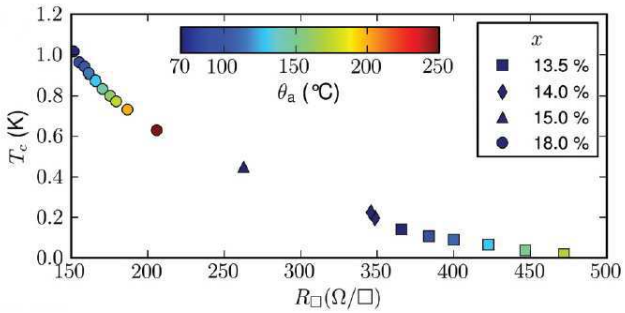

Figure 3.15 – T_c en fonction de $R_\square$ pour des échantillons d'épaisseur fixée (d= 50 nm). Chaque couleur correspond à une température de recuit différente et chaque forme à une composition différente [Crauste, 2010].

Cette comparaison montre donc que le recuit et la composition ont un effet équivalent sur le désordre en tant que paramètre affectant la supraconductivité. Ce résultat est cohérent avec l'interprétation que nous avons déjà formulée : x et θ_{rec} modifient $k_F l$, respectivement par k_F et l.

3.5.2 Comparaison des effets de recuit et d'épaisseur

Une analyse similaire permet la comparaison des effets d'épaisseur et de recuit sur la supraconductivité. La figure (3.16) montre l'évolution de T_c en fonction de $R_\square$, modifiée soit par une variation de l'épaisseur d soit par un recuit à la température θ_{rec}, pour des films de $Nb_{18}Si_{82}$. Chaque forme représente une épaisseur différente entre 7.5 nm et 50 nm et chaque couleur une température de recuit comprise entre $\theta_{rec} = 70°C$ et 250°C.

Pour les différentes épaisseurs considérées, nous voyons que les abaissements de T_c avec $R_\square$ ne collapsent pas sur une seule courbe, contrairement à ce que nous avons observé dans le paragraphe précédent. Ceci indique un rôle distinct de l'épaisseur par rapport au recuit dans la modification de $R_\square$. Nous n'avons pas à ce jour d'explication quant au rôle spécifique de l'épaisseur dans la modification du désordre, mais il est intéressant de noter que les effets dimensionnels devraient sans doute être pris en compte dans la quantification du désordre, tout au moins en ce qui concerne les propriétés supraconductrices.

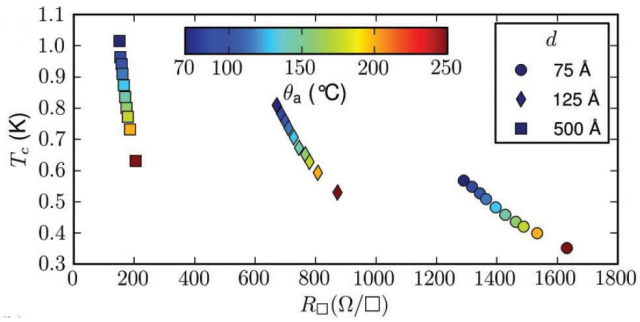

Figure 3.16 – T_c en fonction de $R_\square$ pour des échantillons de composition fixée ($x = 18\%$). Chaque couleur correspond à une température de recuit différente et chaque forme à une épaisseur différente [Crauste, 2010].

Chapitre 4

Résultats expérimentaux

Sommaire

4.1 Présentation générale des résultats 70
4.1.1 Évolution en épaisseur 70
4.1.2 Évolution en recuit 71
4.1.3 Possibles effets parasites 74
4.2 Analyse des résultats 76
4.2.1 Dimensionnalité des échantillons 76
4.2.2 Quantification du désordre 79
4.2.3 Transition Supraconducteur - Métal 1 80
4.2.4 Transition Métal 1 - Métal 2 80
4.2.5 Transition Métal 2 - Isolant 88
4.3 Diagramme de phase et interprétation 97
4.3.1 Diagramme de phase 97
4.3.2 Effet de l'épaisseur 100
4.3.3 Tentative d'interprétation 100
4.3.4 Questions ouvertes 102

Introduction

Nous avons vu dans le chapitre précédent que le recuit permettait une modification très fine du désordre microscopique des films de a-Nb_xSi_{1-x}. L'un des buts de cette thèse a été l'utilisation de ce paramètre pour induire la transition supraconducteur-isolant au sein d'un même film de façon très progressive, afin de pouvoir étudier très précisément les propriétés critiques du système.

L'analyse des mesures de transport des échantillons CKSAS 3 étudiés lors de cette thèse nous a permis d'identifier non seulement les phases supraconductrice et isolante, mais également deux régimes dissipatifs intermédiaires. Nous allons tout d'abord présenter les caractéristiques de ces différentes phases avant de généraliser cette nouvelle analyse à l'ensemble des films minces de a-Nb_xSi_{1-x} mesurés au sein du groupe depuis plus de 10 ans. Enfin, pour résumer l'ensemble de ces résultats, nous présenterons un diagramme de phase, identifiant les différents états fondamentaux mis en évidence pour notre système, en fonction de son degré de désordre et de son épaisseur.

4.1 Présentation générale des résultats

Nous avons introduit dans le chapitre précédent les caractéristiques des films CKSAS 3 à l'état normal (T = 4.2 K) et avons vérifié que celles-ci étaient cohérentes avec ce que nous connaissions du a-Nb_xSi_{1-x} par ailleurs. Nous allons nous concentrer dans cette section sur la présentation des propriétés de ces films à plus basse température ($T \leq 1$ K).

4.1.1 Évolution en épaisseur

La figure (4.1) montre l'évolution en température de la résistance par carré $R_\square(T)$ des quatre films, non-recuits, de la série CKSAS 3. Dans cette série, seul le film α (d = 23 nm), le plus épais, est supraconducteur. Dans tout ce qui suit, nous définissons la température critique supraconductrice T_c comme la température en-deçà de laquelle la résistance est nulle. Pour le film α non recuit, $T_c = 50$ mK.

Lorsque l'épaisseur des films est réduite, nous observons une augmentation de la résistance à l'état normal, cohérente avec l'évolution en épaisseur décrite au chapitre précédent.

Le film β (d=19 nm) présente une diminution brutale de la résistance avec la température, mais une résistance finie est mesurée aux plus basses températures accessibles ($T \simeq 7$ mK). Cette résistance résiduelle augmente lorsque l'épaisseur diminue, comme c'est le cas pour le film γ (d=17 nm).

Pour le film δ, la résistance par carré $R_\square$ augmente de façon logarithmique lorsque la température diminue, et ce jusqu'à $T \simeq 30$ mK, où la résistance sature avec la température (fig. (4.2)). Nous reviendrons sur ce comportement dissipatif par la suite.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre (1), le « Temperature Coefficient of Resistance » (TCR) est défini comme la dérivée de la résistance par rapport à la température (TCR $= dR/dT$). Pour les films α, γ et δ, le TCR est positif à très basse température ($T \lesssim 20$ mK), il est négatif pour le film δ.

Dans le cadre du « Dirty Boson Model » (chap. (1)), ce changement de signe du TCR peut être interprété comme marquant une Transition Supraconducteur-Isolant (TSI), caractérisée par une épaisseur critique $d_c = 15.5 \pm 1.5$ nm. Cette série d'échantillons, de part et d'autre

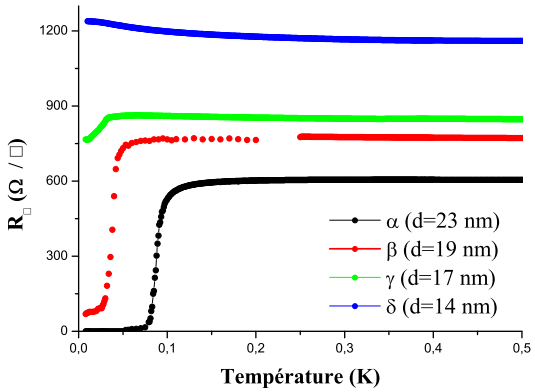

Figure 4.1 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ en fonction de la température, pour les quatre films de la série CKSAS 3.

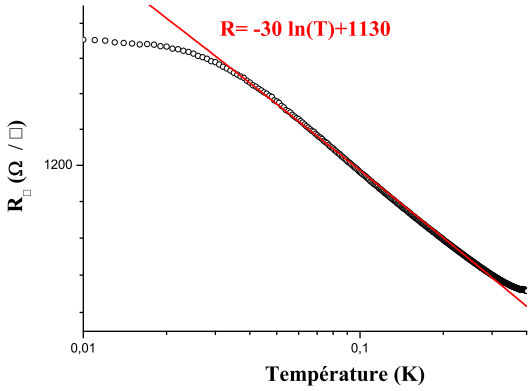

Figure 4.2 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ en fonction de la température, pour le film δ (d=14 nm). La droite rouge représente un ajustement logarithmique en température.

de la TSI - au sens de Fisher - est donc particulièrement adaptée à l'étude que nous voulons mener, visant à sonder les propriétés du a-Nb_xSi_{1-x} en fonction du recuit, au sein de la TSI.

La figure (4.1) illustre trois des **quatre régimes** que nous allons étudier en détails dans la suite :

i) Un régime **supraconducteur** (R=0) *(film α)*

ii) Un premier régime dissipatif dans la limite T→ 0, avec un TCR > 0, que nous avons appelé « **Métal 1** » *(films β et γ)*

iii) Un second régime dissipatif dans la limite T→ 0, avec un TCR < 0, que nous avons appelé « **Métal 2** » *(film δ)*

Nous verrons que l'augmentation du désordre conduit à l'apparition d'un quatrième régime, **isolant** dans la limite T→ 0.

4.1.2 Évolution en recuit

Chacun des échantillons de la série CKSAS 3 a été recuit graduellement, par pas de 10°C ou 20°C, jusqu'à une température de recuit maximum $\theta_{rec} = 250$°C.

Les caractérisations morphologiques présentées dans le chapitre (2) permettent d'être confiant sur l'absence de changement structurel de nos films dans cette gamme de recuit.

Nous présentons sur les figures (4.3) et (4.4) l'évolution en température de la résistance par carré $R_\square$ à différentes températures de recuit θ_{rec} pour ces quatre échantillons.

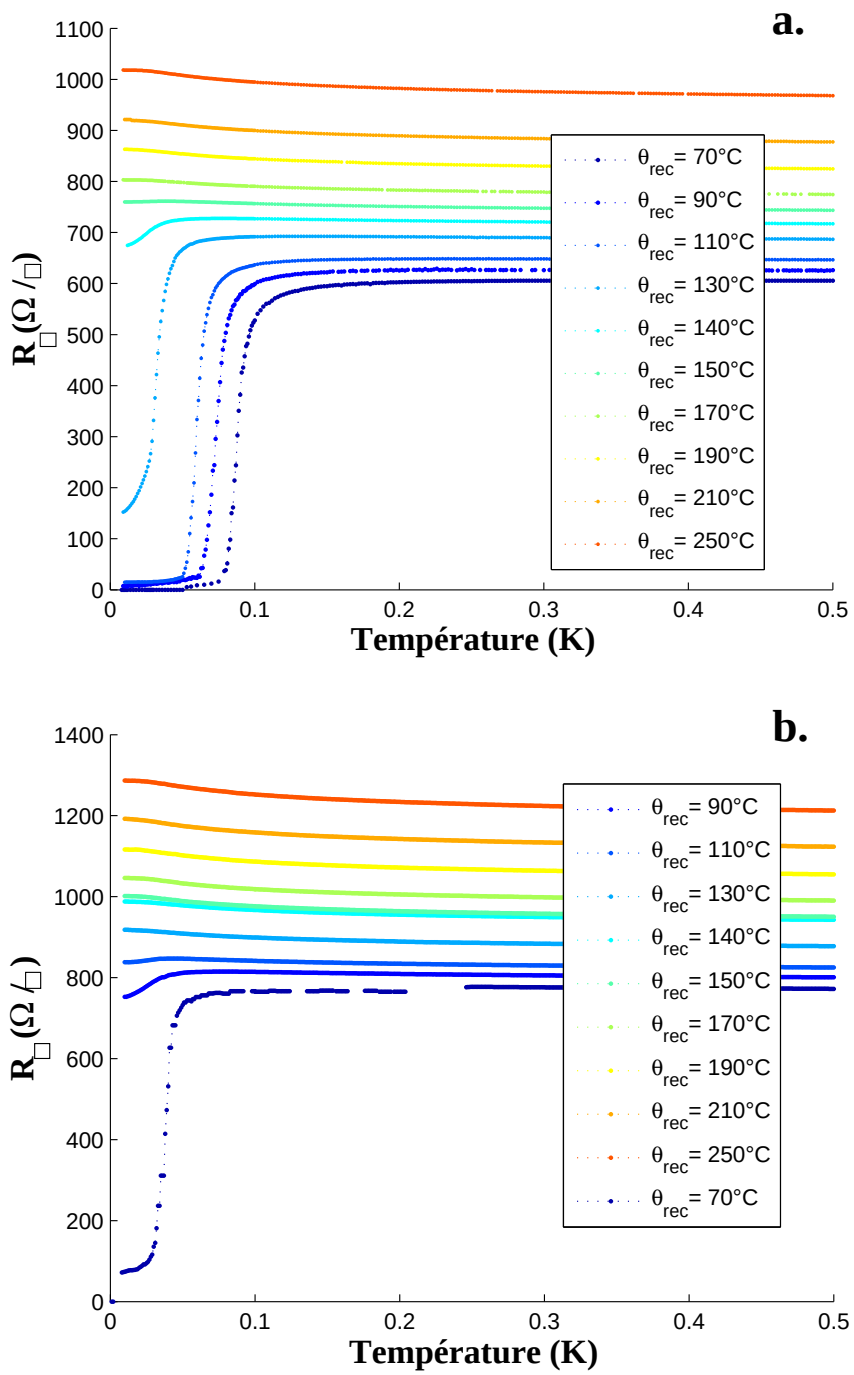

Figure 4.3 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ avec la température, à différentes températures de recuit θ_{rec}, pour les échantillons CKSAS 3 α (d=23 nm) (a) et β (d=19 nm) (b).

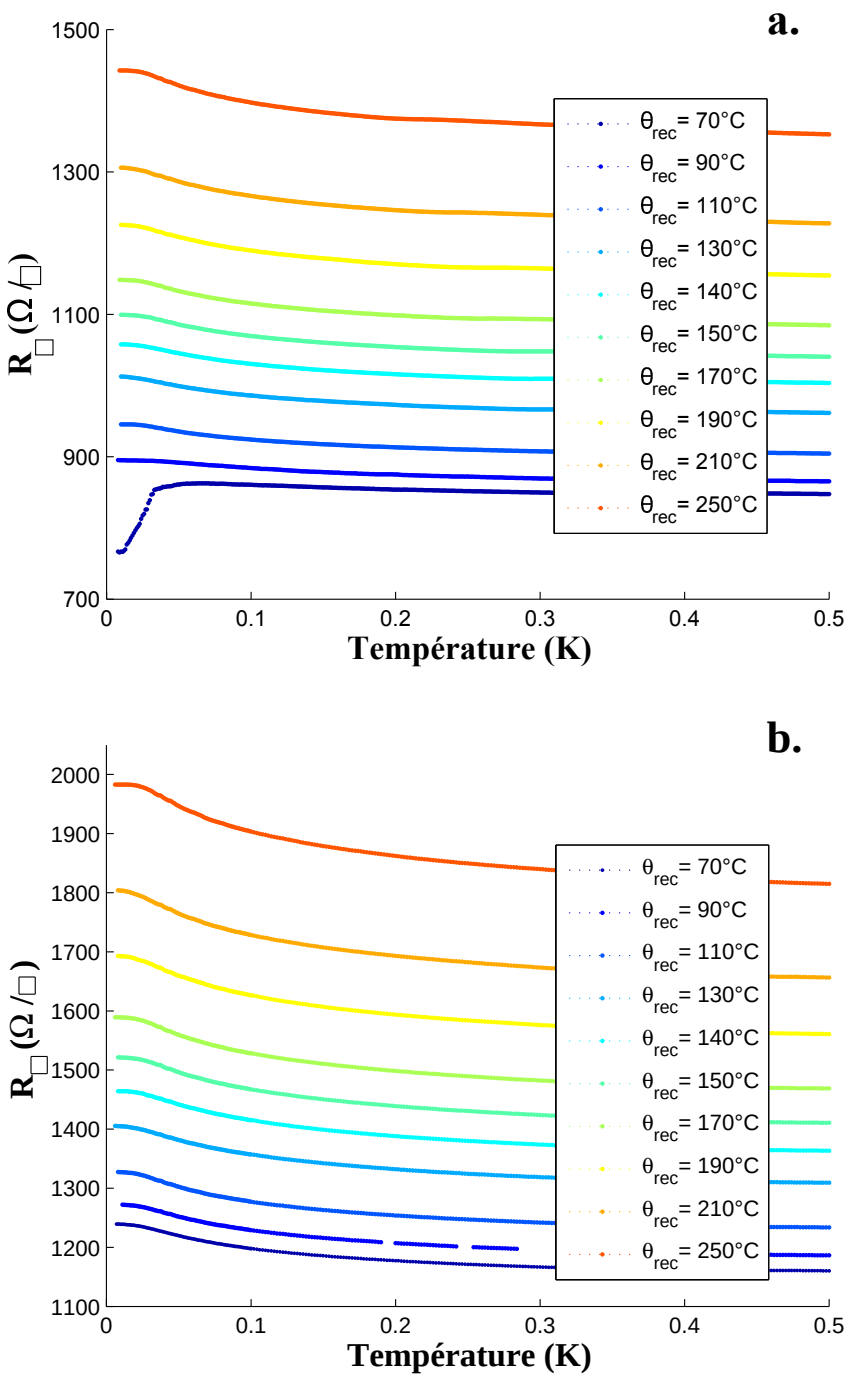

Figure 4.4 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ avec la température, à différentes températures de recuit θ_{rec}, pour les échantillons CKSAS 3 γ (d=17 nm) (a) et δ (d=14 nm) (b).

Film α

Comme nous l'avons déjà vu, le film α est supraconducteur avant recuit (fig. (4.1)). À l'état normal, nous observons une augmentation de sa résistance avec la température de recuit θ_{rec}, équivalente à l'évolution de $\sigma_{4.2K}(\theta_{rec})$ décrite dans le chapitre précédent et interprétée comme traduisant une augmentation du désordre microscopique (fig. (4.3 a)).

À plus basse température, le film recuit présente une forte diminution de la résistance avec la température, mais une résistance finie est mesurée à très basse température (T $\simeq$ 7 mK). C'est le régime que nous avons appelé « Métal 1 ». La diminution de la résistance à basse température est visible jusqu'à $\theta_{rec} \lesssim 140°$C, à partir de quoi l'échantillon présente un TCR < 0 et entre alors dans le régime « Métal 2 ». L'évolution en température de la résistance est alors similaire à celle du film δ non-recuit.

Cette évolution en recuit est particulièrement remarquable dans la mesure où nous observons le passage entre les différents régimes supraconducteur, « Métal 1 » et « Métal 2 » précédemment identifiés, **au sein d'un seul et même échantillon**.

Films β et γ

Pour les deux films β et γ, nous observons également une augmentation progressive de la résistance résiduelle avec la température de recuit θ_{rec} et le passage entre les régimes « Métal 1 » et « Métal 2 » induit par le recuit, associé notamment au changement de signe du TCR (fig. (4.3 b et (4.4 a)).

Film δ

Quelque soit la température de recuit θ_{rec} considérée, la résistance du film δ augmente avec la température, jusqu'à $T \simeq 30$ mK où un plateau de la résistance est observé. À basse température, quelque soit θ_{rec}, le TCR est négatif (fig. (4.4 b)).

Dans ce qui va suivre, nous allons présenter une analyse quantitative de ces résultats et montrer que ces différents comportements constituent des régimes physiques intrinsèques. Cependant, avant d'aller plus loin dans l'analyse de ces résultats, il convient de s'interroger sur d'éventuels effets parasites pouvant entacher nos mesures.

4.1.3 Possibles effets parasites

Nous avons vu que l'évolution des $R_\square(T)$ montre l'apparition de résistances résiduelles, fonction de l'épaisseur d des films et de leur température de recuit θ_{rec}.

Les mesures de transport cryogénique sont particulièrement sensibles aux puissances parasites, pouvant induire un chauffage des électrons et donc une saturation de la résistance avec la température.

Pour les résultats que nous venons de présenter, nous sommes toutefois convaincus que ces observations reflètent **une dissipation intrinsèque du système**.

Nous avons décrit dans le chapitre (2), les précautions prises afin de minimiser la présence d'éventuelles puissances parasites, au niveau de l'échantillon dans le cryostat. Nous allons

discuter ici les différents artefacts expérimentaux pouvant être mis en cause, du point de vue des mesures, et montrer qu'ils ne permettent pas d'expliquer nos observations.

Découplage électron-phonon

L'existence d'une puissance parasite P au niveau de l'échantillon peut induire un découplage entre le bain thermique des phonons et celui des électrons (éq. (4.1)). La résistance ne dépendant que la température électronique T_e [Marnieros et al., 2000], une puissance parasite chauffant les électrons peut provoquer une saturation de cette résistance avec la température des phonons T_{ph}.

$$P = g_{e-ph}\Omega(T_e^5 - T_{ph}^5) \tag{4.1}$$

où P est la puissance échangée, g_{e-ph} la constante électron-phonon du matériau, Ω le volume du système.

Différentes puissances parasites peuvent être à l'origine d'un découplage électron-phonon, nous distinguons en particulier :

- **Une puissance électrique de mesure :** les mesures de résistance ont été effectuées à différentes polarisations, permettant de nous assurer que nous étions bien dans le régime ohmique de ces mesures, excluant ainsi un chauffage des électrons.

- **Une puissance parasite agissant comme un générateur de tension :** dans le cas d'une puissance $P \propto 1/R$, on s'attend à ce que l'effet de chauffage soit d'autant plus important que la résistance de l'échantillon est faible, ce qui va à l'encontre de nos observations. La mesure d'une résistance nulle pour le film CKSAS 3 α non-recuit exclut également ce type de puissance parasite.

- **Une puissance parasite constante :** la mesure d'échantillons isolants nous permet d'exclure l'existence d'une puissance issue d'un rayonnement résiduel. Pour un échantillon isolant de la série CKSAS 6 (x = 13.5 %, d = 4.5 nm) [Humbert, 2013], dont l'évolution en température de la résistance par carré $R_\square$ est représentée sur la figure (4.5), nous avons choisi une description phénoménologique des propriétés de transport, via une loi de type Arrhénius (éq. (4.2))[1]. Nous n'observons pas d'écart à cette loi de transport dans la gamme de température où les saturations de la résistance sont observées, typiquement pour $T \lesssim 30$ mK.

  $$R(T) = R_0 \exp(\frac{T_0}{T}) \tag{4.2}$$

  Nous pouvons également ajouter que nous n'observons pas de corrélation entre les effets de saturations et l'aire des films, comme ce serait le cas pour un chauffage dû à un **rayonnement résiduel**. Certains films « saturants » ont par ailleurs été mesurés dans un autre cryostat, où la même résistance résiduelle est mesurée, avec ou sans amplification de leur réponse électrique à froid.

  Ces différents éléments nous permettent donc d'éliminer la présence de rayonnement parasite sur l'échantillon.

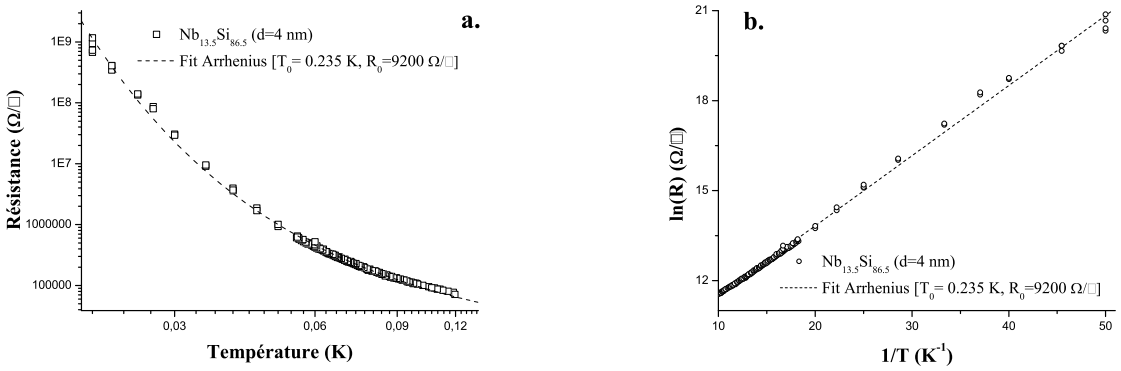

Figure 4.5 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ en fonction de la température pour un film de a-Nb_xSi_{1-x} isolant (CKSAS 6.1 γ_g) mesuré dans le même cryostat que l'ensemble des mesures présentées dans cette étude [Humbert, 2013].

Granularité induite par le recuit

Nous avons montré dans le chapitre (2) que les caractérisations morphologiques des films en fonction du recuit ne montrent pas l'apparition de structures cristallines ou d'inhomogénéités de composition pour $\theta_{rec} < 500°C$.

De plus, les caractéristiques de transport et en particulier la linéarité de $\sigma(\theta_{rec})$, observée pour les films CKSAS 3 sur toute la gamme de recuit, ne révèlent pas de recristallisation partielle du film.

La cohérence de l'analyse que nous allons présenter dans la partie suivante, pour **un nombre important d'échantillons** (plus de 40 films), d'épaisseurs et de géométries différentes, constitue un élément supplémentaire plaidant pour une origine intrinsèque de cette dissipation.

4.2 Analyse des résultats

L'analyse qualitative des mesures de transport des échantillons CKSAS 3 - décrites dans la section précédente - nous a permis d'identifier **quatre régimes de transport distincts à très basse température**. Outre les régimes supraconducteurs et isolants attendus, nous allons montrer que l'analyse des saturations de résistance conduit à la distinction de deux régimes dissipatifs dans la limite T$\rightarrow$ 0.

À partir des résultats obtenus sur les échantillons CKSAS 3, nous avons étendu l'analyse de ces quatre régimes aux films de a-Nb_xSi_{1-x} mesurés par le groupe lors des dernières années.

4.2.1 Dimensionnalité des échantillons

Comme nous l'avons vu dans le chapitre (1), la dimensionnalité du système est une donnée particulièrement importante quand il s'agit de déterminer son état fondamental.

[1] Nous reviendrons plus en détails dans la suite sur la description des échantillons isolants de Nb_xSi_{1-x}.

Si nos films ne sont pas purement bi-dimensionnels au sens de la longueur d'onde de Fermi ($d \gg \lambda_F$), nous pouvons discuter une limite quasi-2D en considérant les différentes longueurs caractéristiques pertinentes.

La problématique de la TSI dans les films minces résulte d'une compétition entre la supraconductivité, la localisation d'Anderson et les interactions coulombiennes. Nous allons discuter dans ce paragraphe la dimensionnalité de notre système vis-à-vis de chacune des longueurs caractéristiques associées à ces phénomènes physiques.

4.2.1.1 Supraconductivité

Le critère habituellement considéré pour définir la bidimensionnalité d'un supraconducteur est donné par la comparaison de **la longueur de cohérence supraconductrice** ξ avec l'épaisseur d du système. Cette limite bidimensionnelle est atteinte dès lors que $d \lesssim \xi$ (sect. (1.3.1)).

D'après la théorie BCS, la longueur de cohérence supraconductrice ξ_0 est donnée par $\xi_0 = \hbar v_F/(\pi\Delta_0)$, où v_F est la vitesse de Fermi et $\Delta_0 = 1.76\ k_B T_c$ le gap supraconducteur à T = 0. Dans la limite « sale », cette longueur est renormalisée par le libre parcours moyen l, et est alors donnée par $\xi_{eff} = \sqrt{\xi_0 l}$.[2]

Pour la composition $x = 13.5\%$ de la série CKSAS 3, nous avons évalué la vitesse de Fermi v_F dans le chapitre précédent ($v_F = 4.10^5 m.s^{-1}$), en prenant un libre parcours moyen de l'ordre de la distance inter-atomique ($l = 5$ Å). Pour des films supraconducteurs de a-$Nb_{13.5}Si_{86.5}$ de différentes épaisseurs [Crauste, 2010], nous avons ainsi estimé la longueur de cohérence ξ_{eff}, dont les valeurs en fonction de l'épaisseur d sont données dans le tableau (4.1). Pour le film CKSAS 3 α, $\xi_{eff} \sim 75$ nm.

d (nm)	T_c (mK)	ξ_0 (μm)	ξ_{eff} (nm)
20	34	16	90
23	50	11	75
25	48	12	76
30	85	7	57
50	125	4	47

Table 4.1 – Estimation de la longueur de cohérence supraconductrice ξ_{eff} en fonction de l'épaisseur d de films de a-$Nb_{13.5}Si_{63.5}$, en prenant un libre parcours moyen $l = 5$ Å. Les températures critiques T_c sont issues de [Crauste, 2010], sauf pour l'échantillon de 23 nm d'épaisseur qui appartient à la série CKSAS 3.

Tous les films de a-Nb_xSi_{1-x} de cette étude, d'épaisseur $d \leqslant 30$ nm, se placent donc dans la limite bidimentionnelle du point de vue de la supraconductivité.

[2]Notons que l'estimation de ξ_{eff} ainsi obtenue peut être toutefois légèrement surestimée. En effet, des valeurs du ratio $\Delta_0/(k_B T_c)$ plus importante que la prédiction BCS ont été obtenues pour certains supraconducteurs désordonnés [Sacépé et al., 2008, Mondal et al., 2011a]. La conclusion obtenue concernant la dimensionnalité du système, vis à vis de la supraconductivité, reste néanmoins inchangée pour les films les plus minces lorsque l'on considère une valeur raisonnablement plus importante du ratio $\Delta_0/(k_B T_c) \simeq 5$.

4.2.1.2 Localisation

Comme nous l'avons déjà vu dans le chapitre (1), à température finie, la longueur caractéristique qui détermine la dimensionnalité du système par rapport à la localisation est **la longueur de Thouless L_{Th}**, donnée par l'équation :

$$L_{th} = \sqrt{D\tau_{in}} \tag{4.3}$$

Les figures (4.6) et (4.7) présentent l'évolution de la résistance avec la température, respectivement à haute ($T \gtrsim 50$ K) et basse température ($T \lesssim 30$ K), pour un film de $Nb_{13.5}Si_{86.5}$ (d = 5 nm). L'évolution décrite par ces courbes est compatible avec un changement de régime de localisation faible :

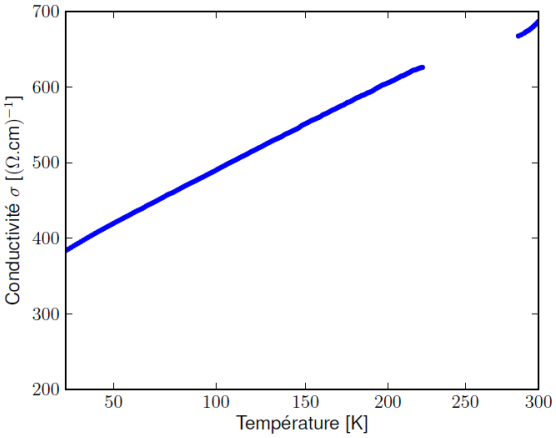

Figure 4.6 – Régime haute température - Évolution de la conductivité en fonction de $T^{3/4}$, pour un film de $Nb_{13.5}Si_{86.5}$ (d=5 nm) [Crauste, 2010].

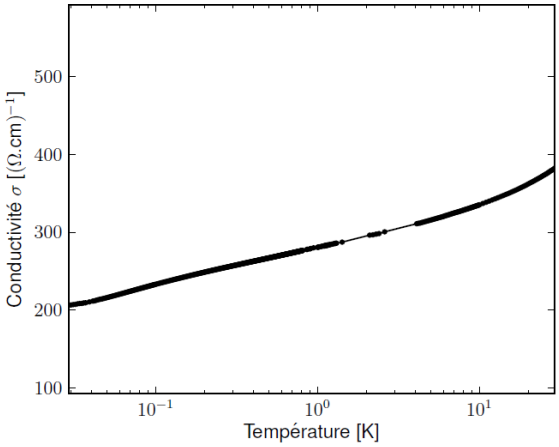

Figure 4.7 – Régime basse température - Évolution de la conductivité en fonction de la température en échelle logarithmique, pour un film de $Nb_{13.5}Si_{86.5}$ (d=5 nm) [Crauste, 2010].

i) Le régime haute température ($T \gtrsim 30$ K) est décrit par une évolution selon une loi de puissance, correspondant à un régime 3D de localisation faible.

ii) Dans le régime à plus basse température ($T \lesssim 30$ K), l'évolution de la conductivité est décrite par une dépendance logarithmique en température, correspondant à un régime de localisation faible à 2D.

Nous avons vérifié que ce crossover dimensionnel est présent pour les différents films de la série CKSAS 3.

À suffisamment basse température, les lois de transport de nos films sont donc caractéristiques des corrections de localisation faible à 2D. Nos films peuvent donc être considérés comme bidimensionnels du point de vue de la localisation.

4.2.1.3 Interactions coulombiennes

Imry et Ovadyahu ont montré que même si un système pouvait être bidimensionnel du point de vue de la localisation, il pouvait être tridimensionnel en ce qui concerne les interactions

coulombiennes [Imry and Ovadyahu, 1982]. La longueur caractéristique à considérer dans ce cas est **la longueur thermique L_T**, définie par l'équation :

$$L_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{k_B T}} \tag{4.4}$$

Les mesures de champ magnétique critique effectuées sur des films de $Nb_{15}Si_{85}$ donnent une estimation du coefficient de diffusion D $\simeq 0.6\ cm^2.s^{-1}$ [Aubin et al., 2006]. Cette valeur est cohérente avec les évaluations du coefficient de diffusion obtenues pour des systèmes similaires [Imry and Ovadyahu, 1982, Song and Ketterson, 1991]. Nous avons représenté sur la figure (4.8) l'évolution de la longueur thermique L_T en fonction de la température pour différentes valeurs du coefficient de diffusion D, autour de notre estimation de D pour le Nb_xSi_{1-x}.

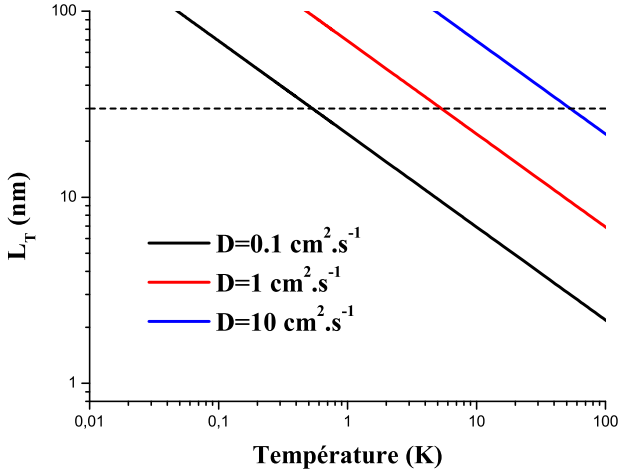

Figure 4.8 – Évolution de la longueur thermique L_T en fonction de la température pour différentes valeurs du coefficient de diffusion D. La ligne horizontale en pointillés correspond à l'épaisseur maximale des films considérés dans cette étude (d= 30 nm).

Pour une température suffisamment faible, nous voyons que les films étudiés dans ce travail (d $\leq$ 30 nm) sont bi-dimensionnels du point de vue des interactions électrons-électrons, et ce, quelle que soit l'évaluation précise du coefficient de diffusion D.

4.2.2 Quantification du désordre

Ainsi, tous les films étudiés dans cette thèse sont suffisamment minces (d $\lesssim$ 30 nm) pour être considérés comme bidimensionnels du point de la supraconductivité, de la localisation et des interactions coulombiennes.

C'est ce qui nous a incité à évaluer **le paramètre de Ioffe-Regel** $k_F l$, à partir de la résistance par carré $R_\square$ à l'état normal (T = 500 mK) (éq. (4.5))[3], c'est-à-dire dans une

[3]Nous avons vérifié que la température à laquelle nous évaluons ce paramètre ne modifie pas l'analyse que nous allons présenter.

limite bidimensionnelle.

$$k_F l = \frac{1}{R_\square}\frac{h}{e^2} \tag{4.5}$$

Ce choix est discutable dans la mesure où nos films ne sont pas bi-dimensionnels par rapport à la longueur d'onde de Fermi λ_F, ce que sous-tend l'équation (4.5). Il faut donc, nous semble-t-il, considérer les valeurs obtenues de $k_F l$, non comme une évaluation « absolue » du désordre, mais comme le reflet de l'évolution de $R_\square$. En particulier, nous avons conscience que pour les films les moins désordonnés, les valeurs de $k_F l$ obtenues peuvent être considérées comme très importantes[4]. Cependant, l'analyse issue de ce choix a fait émerger des tendances qui nous ont incité à maintenir cette quantification du désordre par ce paramètre de Ioffe-Regel $k_F l$, défini par l'équation (4.5) :

- La résistance résiduelle dans le régime « Métal 2 » évolue de manière universelle avec les valeurs de $k_F l$ ainsi calculées.
- Nous verrons qu'avec notre choix de $k_F l$, la transition vers un état isolant a lieu pour $k_F l = 1$, conformément à ce que l'on peut attendre pour l'apparition d'états localisés au niveau de Fermi.
- L'obtention de $(k_F l)_{3D}$[5] requiert une hypothèse soit sur k_F soit sur l, contrairement à l'évaluation de $(k_F l)_{2D}$ qui se déduit directement de $R_\square$.

4.2.3 Transition Supraconducteur - Métal 1

Comme mentionné précédemment, le film CKSAS 3 α évolue d'un régime supraconducteur à un premier régime dissipatif, que nous avons appelé « Métal 1 », lorsqu'on le recuit. Dans ce paragraphe, nous allons analyser ce changement de comportement, qui a lieu entre θ_{rec} =70°C (non-recuit) et $\theta_{rec} = 90$°C.

Nous pouvons définir une résistance critique R_c à la transition, définie comme la moyenne des résistances à l'état normal des $R_\square(T)$ encadrant cette transition. Pour cet échantillon, $R_c = 616 \pm 10\ \Omega/\square$ (fig. (4.9)). De façon équivalente, nous pouvons définir un paramètre de Ioffe-Regel critique $(k_F l)_1$ à partir de l'équation (4.5) ($(k_F l)_1 = 42 \pm 0.7$).

Pour les différents films de a-Nb_xSi_{1-x} déjà mesurés au sein du groupe, nous avons recherché une telle transition entre un état supraconducteur et le métal 1. [Marrache-Kikuchi, 2006, Crauste, 2010]. Pour les échantillons ainsi identifiés, le paramètre de Ioffe-Regel critique $(k_F l)_1$ est représenté en fonction de l'épaisseur d sur la figure (4.10).Nous voyons que $(k_F l)_1$ diminue quasi-linéairement lorsque l'épaisseur d des films est réduite. En d'autre termes, il semble que le désordre critique séparant ces deux régimes soit d'autant plus important que l'épaisseur est faible.

Nous reviendrons dans la suite sur l'interprétation physique de ces différents régimes.

4.2.4 Transition Métal 1 - Métal 2

Jusqu'à présent nous avons distingué les deux régimes « Métal 1 » et « Métal 2 » par le signe du TCR à basse température. En considérant l'évolution des propriétés du film CKSAS 3 α

[4] $k_F l = 40$ est une valeur importante du paramètre de Ioffe-Regel, mais pas improbable [Ioffe, 2013].
[5] $(k_F l)_{3D}$ est défini à partir de $\sigma_{3D} = 1/(3\pi^2)e^2/\hbar(k_F l)^2/l$

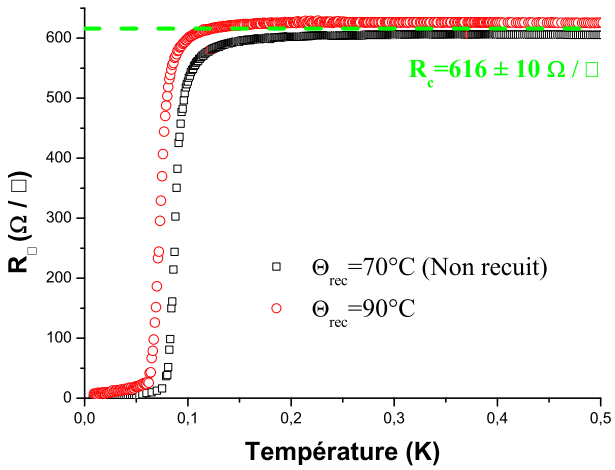

Figure 4.9 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ avec la température, pour la film CKSAS 3 α, non-recuit ($\theta_{rec} = 70°C$) (courbe noire) et à la température de recuit $\theta_{rec} = 90°C$ (courbe rouge). La droite verte en pointillés correspond à la résistance critique définie dans le texte ($R_c = 616 \pm 10\ \Omega/\square$).

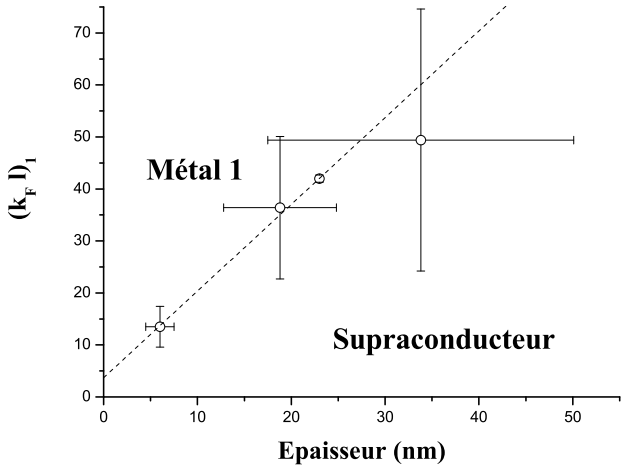

Figure 4.10 – Évolution du paramètre de Ioffe-Regel critique $(k_F l)_1$ entre les régimes supraconducteur et Métal 1, en fonction de l'épaisseur d des films. À épaisseur fixée, le changement de régime est induit soit par un recuit soit par un changement de la composition x.

avec la température de recuit θ_{rec}, nous allons introduire différents critères permettant de préciser cette distinction.

La description des propriétés de l'ensemble de la série CKSAS 3 nous permettra ensuite une comparaison des effets d'épaisseur et de recuit pour chacun de ces deux régimes, comme nous l'avons fait pour l'état supraconducteur (chap. (3))). Ceci nous permettra de distinguer

les effets dimensionnels des effets de désordre.

4.2.4.1 Évolution en recuit : deux régimes dissipatifs

Évolution de R_{min}

Afin de caractériser les deux régimes « Métal 1 » et « Métal 2 » du point de vue de la dissipation, nous avons défini la résistance résiduelle R_{min} par la mesure de la résistance par carré à T= 10 mK. La résistance mesurée pour T $\leq$ 10 mK étant quasi-constante, nous considérons à partir de maintenant R_{min} comme reflétant **la dissipation du système à température nulle**.

L'évolution de R_{min} avec θ_{rec} est représentée sur la figure (4.11), pour le film CKSAS 3 α. Comme nous l'avons déjà décrit qualitativement, R_{min} augmente avec θ_{rec} : d'abord fortement, puis à partir de θ_{rec} ~140°C, l'évolution de $R_{min}(\theta_{rec})$ ralentit brutalement. Nous voyons que ce changement dans l'évolution de R_{min} apparaît lorsque la résistance résiduelle devient de l'ordre de la résistance normale (fig. (4.12)). Ce changement d'évolution permet de distinguer :

i) un premier régime, où $R_{min} < R_n$ évolue rapidement avec θ_{rec} et donc avec R_n,

ii) un second régime, défini par $R_{min} \gtrsim R_n$ et par une évolution plus lente de R_{min} avec R_n.

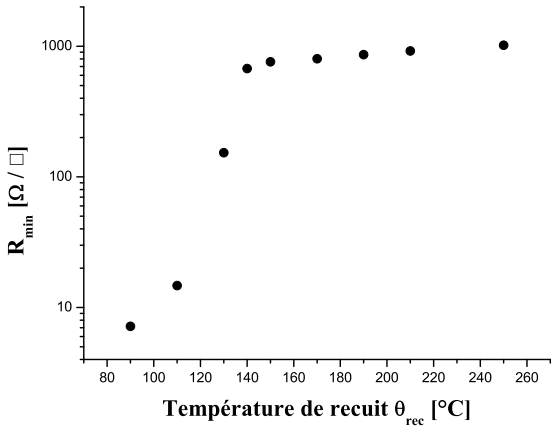

Figure 4.11 – Évolution de R_{min} en fonction de la température de recuit θ_{rec} pour le film α (CKSAS 3).

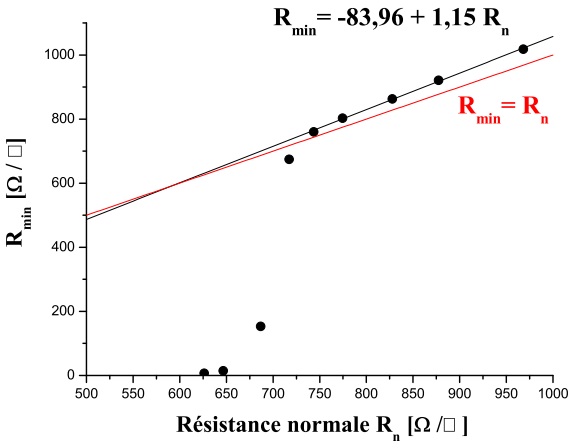

Figure 4.12 – Évolution de R_{min} en fonction de la résistance par carré à l'état normal R_n pour le film α (CKSAS 3).

En vue d'une généralisation de ces dépendances, nous avons reporté, figure (4.13), l'évolution de la résistance résiduelle R_{min} en fonction du paramètre de Ioffe-Regel $k_F l$. Le recuit, augmentant le désordre, conduit à une diminution de $k_F l$ et à une augmentation de R_{min}. Pour $k_F l \simeq 35$, nous observons le changement de régime précédemment décrit.

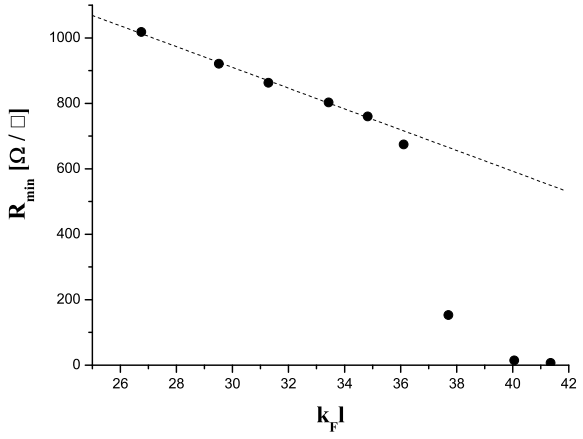

Figure 4.13 – Évolution de R_{min} en fonction du paramètre de Ioffe-Regel $k_F l$ pour le film α (CKSAS 3).

Définition(s) de T_{c0}

Malgré la perte de l'état de résistance nulle dès $\theta_{rec} \simeq 90°C$, une forte diminution de résistance avec la température persiste jusqu'à $\theta_{rec} \lesssim 140°C$, caractéristique du régime « Métal 1 » (fig. (4.3 a)).

Il est raisonnable de penser que cette diminution brutale de la résistance est associée à une énergie caractéristique du système. Nous avons donc cherché à extraire une température caractéristique de cette chute de résistance afin de décrire plus quantitativement cette évolution. Pour cela, nous avons considéré trois critères distincts définissant une telle température, appelée $(T_{c0})_i$:

i) Nous définissons la température $(T_{c0})_1$ comme la température à laquelle la dérivée $\dfrac{dR}{dT}$ est maximale.

ii) Comme pour un échantillon supraconducteur, nous pouvons décrire le transport pour $R > R_n/2$ par un terme classique et des corrections quantiques prenant en compte la localisation faible et les fluctuations supraconductrices de type Aslamazov-Larkin (AL), Maki-Thompson (MT) et les corrections de densité d'états (DOS). La procédure utilisée, permettant l'extraction d'une température caractéristique $(T_{c0})_2$ en plus d'une température T_c - qui est fixée à $(T_{c0})_1$ - est détaillée dans la thèse d'Olivier Crauste [Crauste, 2010]. La figure (4.14) montre un exemple du résultat de cette modélisation pour le film CKSAS 3 α non-recuit, permettant un encadrement de $(T_{c0})_2$.

iii) Reprenant l'analyse de Gantmakher et al. [Gantmakher and Golubkov, 2001], nous définissons la température $(T_{c0})_3$ comme la température correspondant à $R = 0.9R_{max}$. R_{max} est la résistance maximum que présente l'échantillon en température. Dans les supraconducteurs désordonnés, R_{max} peut être interprété comme résultant de la compétition entre les différentes corrections quantiques au transport électronique.

Nous comparons sur la figure (4.15) l'évolution des trois températures $(T_{c0})_1$, $(T_{c0})_2$ et $(T_{c0})_3$ ainsi obtenues, en fonction du paramètre $k_F l$, modifié ici par le recuit.

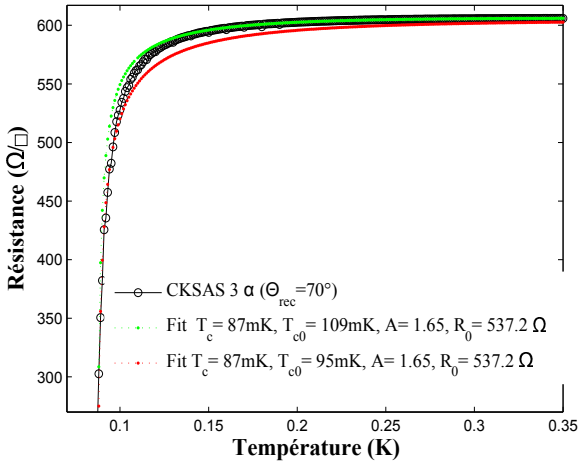

Figure 4.14 – Modélisation des propriétés de transport pour R > $R_n/2$ de l'échantillon CKSAS 3 α non-recuit, via des termes de localisation faible, de paraconductivité, de correction de densité d'états et la correction de Maki-Thompson. Dans cette modélisation, la température critique T_c est définie par la température à $R_n/2$, le temps de diffusion élastique τ est fixé à $\tau = 5.10^{-16}s$, issu de nos estimations (chap. (3)). Les paramètres A (poids de la localisation faible) et T_{c0} sont ajustés pour décrire au mieux la courbe expérimentale (courbe noire).

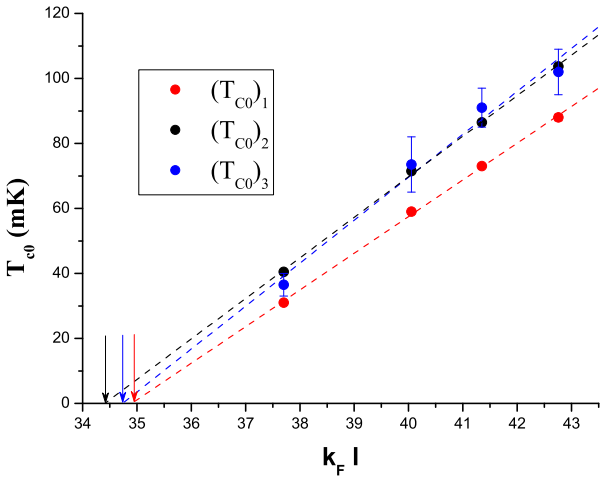

Figure 4.15 – Évolution de T_{c0} avec $k_F l$ en fonction des 3 critères utilisés, pour le film α (CKSAS 3). Les droites en pointillés correspondent à un ajustement linéaire.

Qualitativement, nous voyons que l'évolution générale de ces trois courbes est très similaire, décrivant une diminution linéaire de T_{c0} lorsque $k_F l$ diminue. Quelque soit le critère retenu, nous observons une continuité entre T_{c0} dans le régime supraconducteur ($k_F l \simeq 43$) et T_{c0} dans le régime dissipatif ($k_F l \lesssim 42$). Par ailleurs, l'extrapolation $T_{c0} \to 0$, obtenue pour chacune des définitions de T_{c0}, donne une valeur très proche de $k_F l$ ($k_F l = 34.7 \pm 0.3$). De ce point de vue, nous considérons ces trois critères comme équivalents, et définirons à

partir de maintenant T_{c0} par le critère du maximum de la dérivée $\frac{dR}{dT}$.

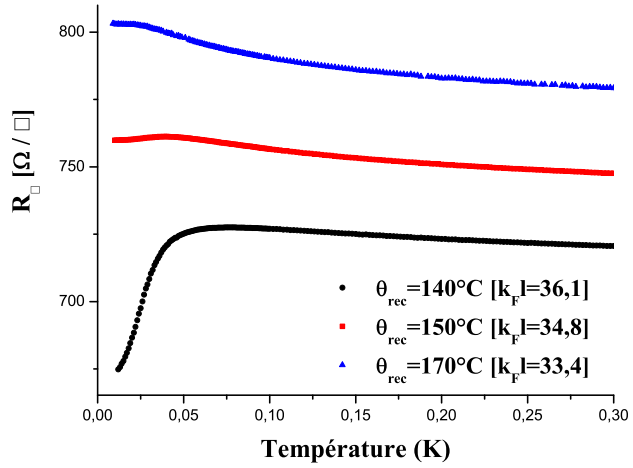

Figure 4.16 – Évolution de $R_\square$ en fonction de la température pour le film α (CKSAS 3), à différentes températures de recuit au voisinage du changement de signe du TCR.

Évolution du signe du TCR $= \frac{dR}{dT}$ à basse température

Lors de la transition du « Métal 1 » au « Métal 2 », le TCR change de signe.

Pour l'échantillon CKSAS 3 α, à la température de recuit $\theta_{rec} = 140°C$, le TCR est positif à suffisamment basse température ($T \lesssim 30$ mK). Pour $\theta_{rec} = 150°C$, le TCR est à peu près nul et pour $\theta_{rec} = 170°C$, il est négatif (fig. (4.16)).

Nous définissons le k_Fl correspondant au changement de signe du TCR à basse température par la moyenne du k_Fl entre le dernier échantillon de TCR positif et le premier échantillon caractérisé par un TCR négatif. Pour l'échantillon α, nous obtenons ainsi $k_Fl = 34.75 \pm 1.4$.

Équivalence des 3 critères (R_{min}, T_{c0}, TCR)

Sur la figure (4.17), nous avons superposé l'évolution de R_{min} avec k_Fl à celle de T_{c0}. La ligne verticale marque le changement de signe du TCR. Nous voyons que l'extrapolation de T_{c0} à zéro coïncide à la fois avec la rupture dans l'évolution de $R_{min}(k_Fl)$, avec le changement de signe du TCR, et avec $R_{min} \sim R_n$.

Ces trois critères indiquent un changement pour la même valeur de $k_Fl = (k_Fl)_2$. Nous pensons qu'ils marquent un changement du système, entre les régimes « Métal 1 » et « Métal 2 ». Dans le cas de l'échantillon CKSAS 3 α, $(k_Fl)_2 = 35$.

Nous pouvons donc définir le régime « **Métal 1** » par :

- une évolution rapide de $R_{min}(k_Fl) \lesssim R_n$

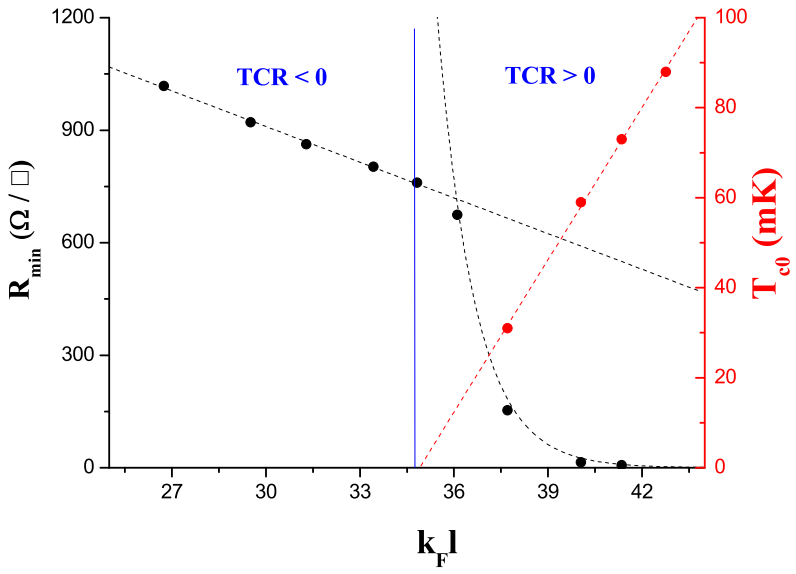

Figure 4.17 – Évolution de la résistance résiduelle R_{min} et de la température T_{c0} en fonction de $k_F l$, pour l'échantillon α (CKSAS 3). La ligne verticale correspond au changement de signe du TCR à basse température.

- TCR > 0
- une température T_{c0} finie

Pour $k_F l < (k_F l)_2$, le régime « **Métal 2** » est caractérisé par :

- une évolution plus lente de $R_{min} > R_n$ avec $k_F l$
- TCR < 0
- T_{c0}=0

4.2.4.2 Évolution en l'épaisseur

Nous avons considéré jusqu'à présent l'évolution du film CKSAS 3 α avec le recuit. Afin de généraliser ces observations, et pour pouvoir notamment comparer le rôle de l'épaisseur par rapport au recuit, nous allons désormais nous intéresser à l'évolution des ***quatre*** films de la série CKSAS 3 avec le recuit.

La figure (4.18) représente l'évolution de la résistance résiduelle R_{min} en fonction du paramètre $k_F l$, modifié par θ_{rec} ou d.

Nous observons pour les films β et γ une rupture dans l'évolution de $R_{min}(k_F l)$ lorsque $k_F l$ diminue. Comme pour le film CKSAS 3 α, nous voyons sur la figure (4.20) que cette rupture coïncide avec l'annulation de T_{c0} et avec le changement de signe du TCR, permettant une première généralisation de cette phénoménologie.

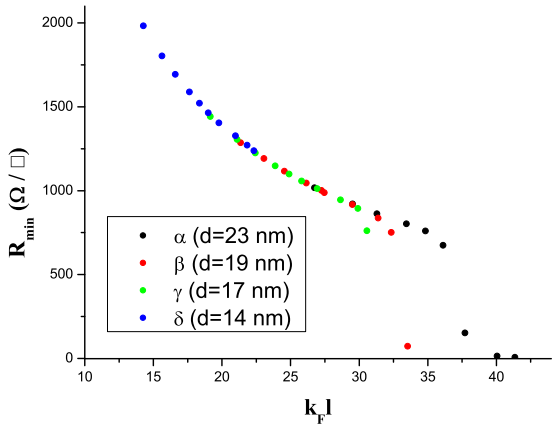

Figure 4.18 – Évolution de la résistance résiduelle R_{min} en fonction de $k_F l$ pour les 4 films de la série CKSAS 3.

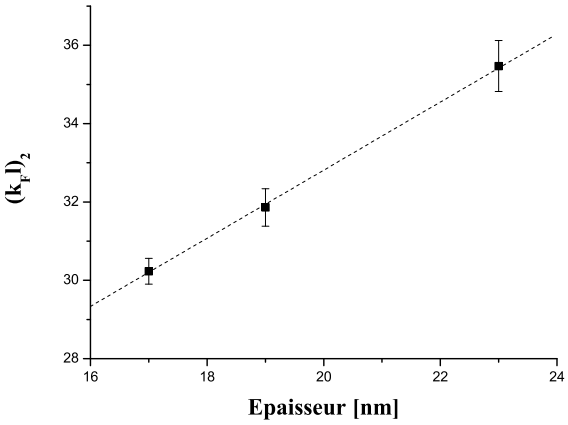

Figure 4.19 – Évolution de $(k_F l)_1$ séparant les deux régimes dissipatifs, en fonction de l'épaisseur d, pour les films de la série CKSAS 3.

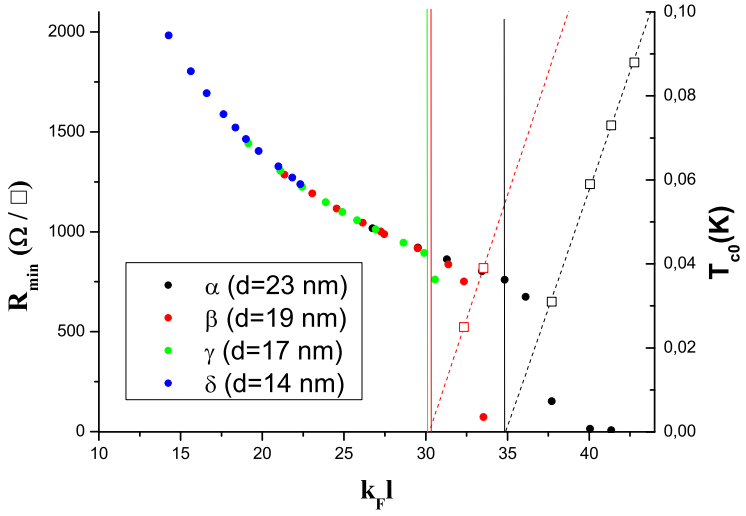

Figure 4.20 – Évolution de la résistance résiduelle R_{min} (ronds) et de la température T_{c0} (carrés) en fonction de $k_F l$, pour les 4 films de la série (CKSAS 3). Les lignes verticales correspondent au changement de signe du TCR à basse température. Chaque couleur correspond à une épaisseur différente.

Par ailleurs, pour $k_F l > (k_F l)_1$ (« Métal 1 »), R_{min} dépend à la fois de $k_F l$ et de d alors que pour $k_F l < (k_F l)_1$ (« Métal 2 »), les courbes $R_{min}(k_F l)$ collapsent pour tous les films : R_{min} **ne dépend plus alors que de la valeur de** $k_F l$, quelque soit le paramètre expérimental à l'origine de sa modification (d ou θ_{rec}).

Nous avons représenté sur la figure (4.19) l'évolution de $(k_F l)_2$ avec l'épaisseur d : plus le film est mince, plus $(k_F l)_2$ est faible (fig. (4.19)).

4.2.5 Transition Métal 2 - Isolant

L'analyse que nous venons de développer et qui fait apparaître deux régimes métalliques intermédiaires entre les états supraconducteur et isolant est l'un des résultats originaux de cette thèse. Afin de généraliser les propriétés ainsi mises en évidence, nous avons donc réanalysé à travers ce prisme les $R(T)$ de l'ensemble des échantillons étudiés par le groupe ces dernières années.

4.2.5.1 Propriétés du régime Métal 2

Nous allons nous concentrer tout d'abord sur l'analyse des échantillons de a-Nb_xSi_{1-x} vérifiant les critères d'existence du « Métal 2 » précédemment définis.

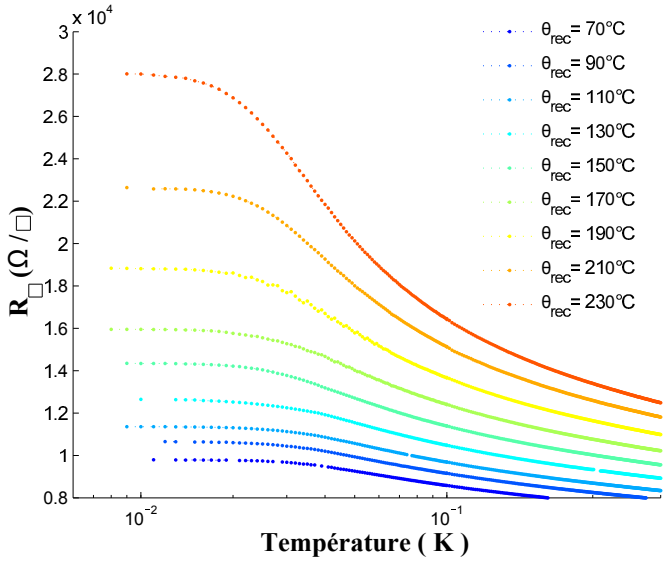

Figure 4.21 – Évolution de la résistance par carré $R_\square$ avec la température, à différentes températures de recuit θ_{rec}, pour un échantillon de la série OC5 ($x = 13.5\%$), d'épaisseur d=5 nm [Crauste, 2010].

Définition de T_{sat}

La figure (4.21) montre l'évolution des $R_\square(T)$ de l'un de ces échantillons avec la température de recuit θ_{rec} [Crauste, 2010]. Qualitativement, pour chaque θ_{rec}, l'évolution en température indique un changement de comportement entre deux régimes :

1. un premier régime à très basse température, où la résistance est quasi-constante ($T \lesssim 30$ mK).

2. un second régime à plus haute température, caractérisé par une diminution de la résistance lorsque la température augmente ($T \gtrsim 30$ mK).

Afin de caractériser ce changement de régime, nous avons cherché à extraire une température caractéristique, appelée T_{sat}. Pour cela, nous avons choisi de décrire le comportement

Échantillon	Composition (%)	Épaisseur (nm)	$k_F l$	σ_{min}
CKSAS δ	13.5	13	22.3	3.3
OC5	13.5	5	3.5	0.4
OC5	15	7.5	7.6	1.1
OC5	15	10	11.3	1.7
OC6	18	4.5	3.7	0.5
CKJ2	15	5	6.6	0.9
CKJ3	17	4	5.1	0.7
CK10 β	9.9	25	3.6	0.5
CK11 α	14.2	12.5	14.9	2.3
CK11 β	13.2	13	11	1.6
CK11 γ	12.1	13	7.5	1.1
CK11 δ	10.9	13	4	0.5
CK13 γ	10	18	3.2	0.4
CK13 γ	10	15	2.6	0.3
CK13 β	10.1	25	4.9	0.7
CK13 α	10	25	6	0.9
CK15 α	11.1	12	3.8	0.5
CK15 β (large)	11.4	12	5.3	0.7
CK15 β (étroit)	11.4	12	5.5	0.7
CK15 γ	12.1	12	6.3	0.9
CK15 δ	11.7	12.5	7.9	1.1

Table 4.2 – Caractéristiques des échantillons dans le régime **Métal 2** (non-recuit), échantillons CK et CKJ [Marrache-Kikuchi, 2006] et OC [Crauste, 2010].

à basse température par la résistance constante R_{min} et le comportement à plus haute température par une loi de localisation forte de type VRH (éq. (4.6)). Nous reviendrons plus en détails sur l'interprétation de cette dernière description dans un paragraphe dédié.

$$R(T) = R_0 \exp\left((\frac{T_0}{T})^{1/n}\right) \tag{4.6}$$

La température T_{sat} est définie comme la température de croisement entre ces deux évolutions. La figure (4.22) montre l'extraction de T_{sat} pour un film de $Nb_{13.5}Si_{86.5}$, à différentes températures de recuit θ_{rec}. L'évolution de T_{sat}, obtenue pour chaque θ_{rec}, est représentée en fonction de $k_F l$ sur la figure (4.23) : T_{sat} diminue quand $k_F l$ diminue. En d'autres termes, les saturations de résistance apparaissent à d'autant plus basse température que le niveau de désordre est important. Notons que ce résultat est observé indépendamment de la définition de T_{sat}, par exemple en définissant T_{sat} par le changement de courbure du $R_\square(T)$, ou encore en considérant un écart constant à R_{min}.

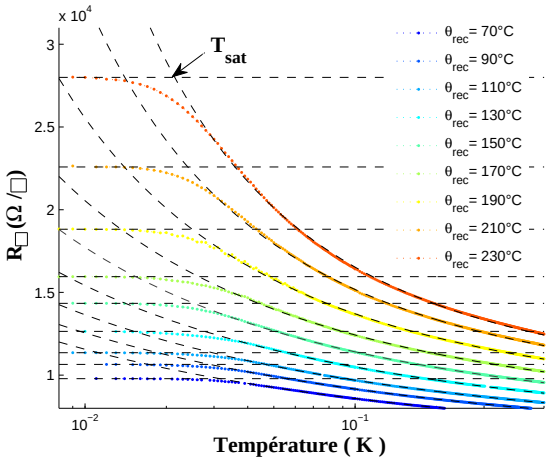

Figure 4.22 – Évolution des $R_\square(T)$ à différentes températures de recuit θ_{rec}, pour un échantillon de la série OC5 ($x = 13.5\%$), d'épaisseur d = 5 nm [Crauste, 2010]. T_{sat} correspond à l'intersection entre l'ajustement à haute température et la résistance de saturation R_{min}.

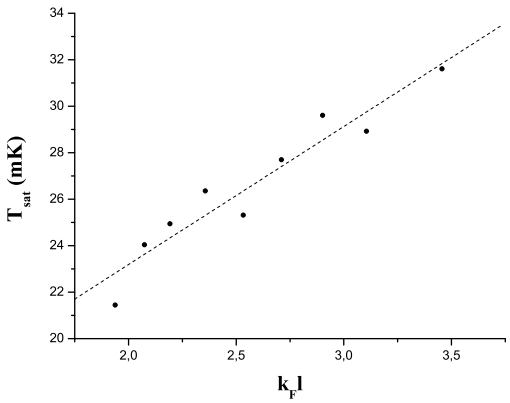

Figure 4.23 – Évolution de T_{sat} en fonction de $k_F l$ pour le film présenté sur la figure (4.22) [Crauste, 2010]. La droite correspond à un guide pour les yeux.

Nous avons par ailleurs extrait T_{sat} pour les différents films de la série OC5 ($x = 13.5\%$). L'évolution de T_{sat} pour ces quatre films est représentée en fonction de $k_F l$ sur la figure (4.26). Pour chacun des films, nous observons une diminution de T_{sat} lorsque $k_F l$ diminue, modifié ici encore par le recuit. La comparaison des différents films révèle une dépendance de T_{sat} avec $k_F l$ et d : plus le film est mince, plus la pente $dT_{sat}/d(k_F l)$, décrivant l'évolution en recuit, est importante. Nous verrons que ceci diffère du comportement observé pour $T < T_{sat}$. Nous n'avons pas à ce jour d'interprétation sur ce rôle particulier de l'épaisseur dans le régime « haute température » du « Métal 2 ».

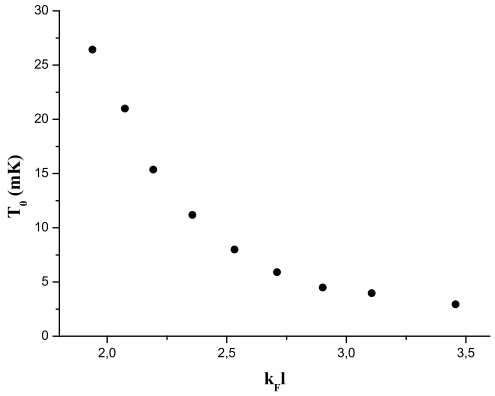

Figure 4.24 – Évolution de la température T_0, définie dans l'équation (4.6), en fonction du paramètre $k_F l$ pour le film de $Nb_{13.5}Si_{86.5}$ (d = 5 nm) (OC5), pour différents recuits [Crauste, 2010].

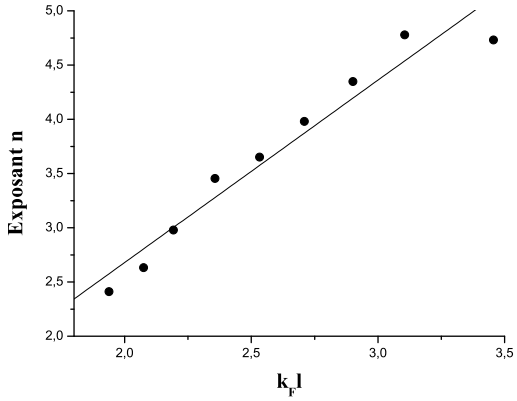

Figure 4.25 – Évolution de l'exposant n, défini dans l'équation (4.6), en fonction du paramètre $k_F l$ pour le film de $Nb_{13.5}Si_{86.5}$ (d = 5 nm) (OC5) [Crauste, 2010]. La droite correspond à un guide pour les yeux.

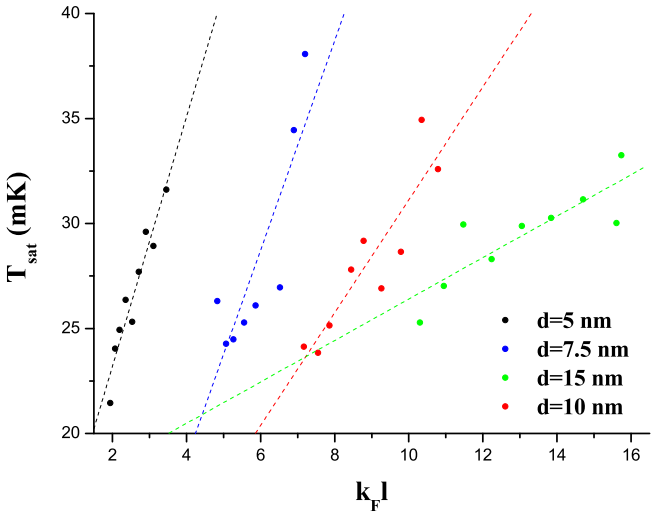

Figure 4.26 – Évolution de la température T_{sat} en fonction du paramètre $k_F l$ pour les quatre films de la série OC5 ($x = 13.5\%$), d'épaisseur d comprise entre 5 et 15 nm [Crauste, 2010]. Les droites en pointillés sont des guides pour les yeux.

Transport pour T > T_{sat}

Nous avons choisi de décrire les propriétés de transport pour T > T_{sat} par une loi de localisation forte (éq. (4.6)). Ce choix non-usuel est motivé par le fait qu'une description satisfaisante du $R_\square(T)$ jusqu'à T_{sat} n'est pas possible par une loi de localisation faible, comme attendu pour un « métal » désordonné à 2D.

Ceci est visible sur la figure (4.27), où est représentée l'évolution en température de la

conductivité du film de la série OC5 précédemment introduit ($Nb_{13.5}Si_{86.5}$, d = 5 nm). Nous observons en effet qu'en-deçà de 200 mK ($T \gg T_{sat}$) une évolution logarithmique ne permet pas de décrire l'évolution de $\sigma(T)$.

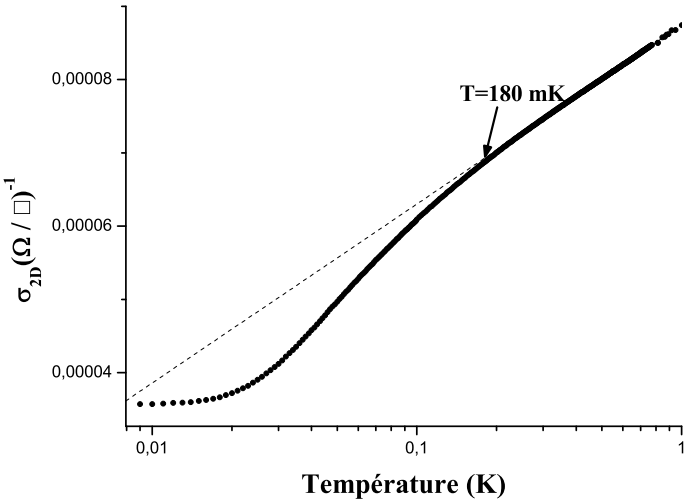

Figure 4.27 – Évolution de la conductivité 2D ($\sigma_{2D} = \frac{1}{R_\square}$) en fonction de $\log T$ pour un échantillon de la série OC 5 (d = 5 nm, θ_{rec} =230°C) [Crauste, 2010].

Si l'on considère la description en terme de VRH pour l'évolution en recuit de l'échantillon présentée sur la figure (4.22), en laissant libre l'exposant n dans l'ajustement de type VRH, nous observons une diminution de l'exposant n (fig. (4.25)) et une augmentation de la température T_0 (fig. (4.24)) lorsque $k_F l$ diminue (fig. (4.25)), traduisant un comportement de plus en plus isolant dans ce régime « haute température » du « Métal 2 », à mesure que la température de recuit augmente. Notons que n tend vers la valeur $n = 2$, qui est l'exposant caractéristique de processus de hopping médiés par les interactions coulombiennes, de type Efros-Shklovskii, comme nous l'avons vu au chapitre (1).

Cette description pose la question des mécanismes de conduction pour $T > T_{sat}$, qui semblent différer de ceux conduisant à une résistance finie dans la limite $T \to 0$.

Transport pour $T < T_{sat}$

Pour $T < T_{sat}$, le transport est bien décrit par une résistance constante R_{min}. Nous avons déjà vu qualitativement que R_{min} augmente lorsque θ_{rec} augmente et d diminue.

Nous avons représenté l'évolution de R_{min} et $\sigma_{min} = 1/R_{min}$, en fonction de $k_F l$, respectivement sur la figure (4.28 a et b), pour tous les échantillons de type Métal 2 identifiés (tab. (4.2)).

Assez remarquablement, pour les 21 échantillons considérés, et, le cas échéant à différentes θ_{rec}, nous observons **une seule et même évolution de R_{min} et σ_{min} avec $k_F l$**, quelque soit le paramètre expérimental à l'origine de sa modification (x, d ou θ_{rec}). Cette observation traduit **un caractère « universel » du paramètre $k_F l$**, tel que l'avons évalué,

dans la description des effets du désordre.

Nous allons montrer dans le paragraphe suivant, que la forte diminution de $\sigma_{min}(k_F l)$, observée pour $k_F l \simeq 1$, précède l'apparition du caractère isolant dans la limite $T \to 0$.

4.2.5.2 Propriétés du régime Isolant

Comme nous l'avons montré au chapitre (3), les films de a-Nb_xSi_{1-x} sont isolants pour une composition en niobium ou pour une épaisseur suffisamment faible. Si nous n'avons pas mesuré d'échantillons isolants lors de cette thèse, nous avons ré-analysé les isolants précédemment mesurés au sein du groupe, listés dans le tableau (4.3). Nous présentons dans ce paragraphe cette analyse pour des films minces (d$\leq$ 30 nm).

Définition de T_0

Nous définissons le caractère isolant par la divergence de la caractéristique $R(T)$ dans la limite $T \to 0$. Précisément, nous avons vu que le transport électronique pour ces isolants d'Anderson peut être décrit en termes de VRH, dont l'expression générale est donnée ci-dessous :

$$R(T) = BT^{-m} \exp(\frac{T_0}{T})^{1/n} \tag{4.7}$$

Suivant la procédure définie par [Zabrodskii and Zinov'eva, 1984], nous définissons $w(T)$ par l'équation suivante :

$$w(T) = -\frac{dln(R)}{dln(T)} = m + n(\frac{T_0}{T})^n \tag{4.8}$$

Tracer $ln(w)$ en fonction de $ln(T)$ permet alors l'extraction de la température caractéristique T_0 et de l'exposant n, reliés à suffisamment basse température ($m \ll n(\frac{T_0}{T})^n$) par l'équation :

$$ln(w(T)) \simeq ln(nT_0^n) - nln(T) \tag{4.9}$$

La figure (4.29) montre une telle analyse appliquée au film isolant β (série CK 9) [Marrache-Kikuchi, 2006]. La linéarité de $ln(w)$ avec $ln(T)$ permet l'extraction de n et T_0.

Cette analyse, appliquée à l'ensemble des films isolants donne un exposant n compris entre 0.8 et 1.1. Nous avons donc considéré par la suite une description phénoménologique des isolants, en fixant $n = 1$, par une loi d'activation simple de type Arrhenius. L'évolution des $R(T)$ de tous les échantillons isolants répertoriés (tab. (4.3), [Marrache-Kikuchi, 2006]), est représentée dans un diagramme d'Arrhenius sur la figure (4.30). La linéarité des $R(T)$ dans cette représentation permet l'extraction d'une température d'activation T_0.

L'échantillon isolant le moins désordonné ($k_F l = 0.98$) s'écarte de cette description à basse température. Nous pensons que la description des processus de transport est probablement plus complexe qu'une loi simplement activé pour $k_F l \sim 1$, pouvant faire intervenir différent régimes de hopping. Une analyse du passage entre ces différents régimes est actuellement en cours dans le groupe. Cependant, afin de pouvoir comparer les différents échantillons, nous avons choisi d'extraire - pour chacun des échantillons - la température d'activation T_0

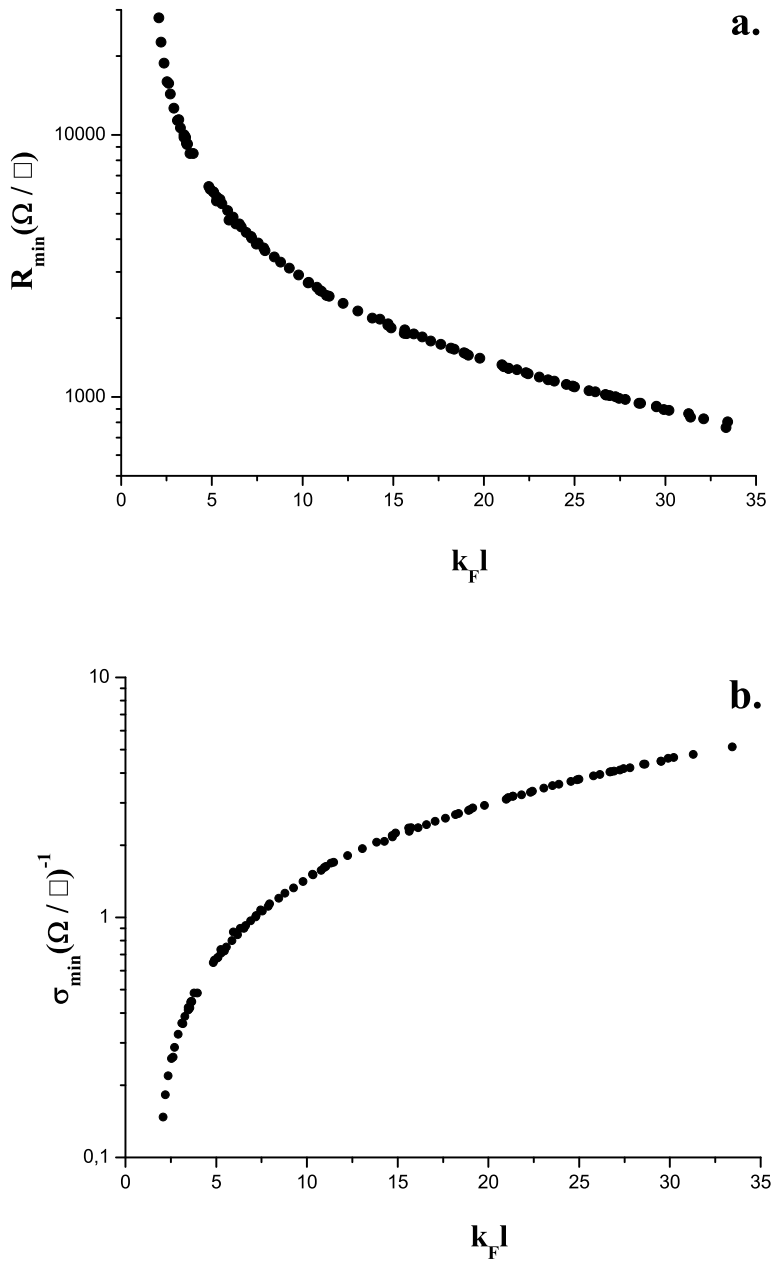

Figure 4.28 – Évolution de la résistance résiduelle R_{min} (a) et de la conductivité résiduelle $\sigma_{min} = 1/R_{min}$ (b) en fonction du paramètre $k_F l$ pour tous les échantillons de type Métal 2.

Échantillon	Composition (%)	Épaisseur (nm)	$R_\square$ (T=500mK) ($\Omega/\square$)	$k_F l$	T_0
CK6 β Étroit	8,4	26,5	$2{,}9.10^5$	0,09	1,03
CK6 β Large	8,4	26,5	$2{,}4.10^5$	0,12	1,08
CK6 γ Étroit	8,5	12,5	$1{,}3.10^9$	$2{,}10^{-5}$	4,85
CK6 γ Large	8,5	12,5	$1{,}5.10^8$	2.10^{-4}	3,91
CK8 β Étroit	9,1	25,5	$7{,}2.10^4$	0,36	0,42
CK8 β Large	9,1	25,5	$4{,}5.10^4$	0,58	0,35
CK8 γ Large	9,2	12,5	2.10^6	0,01	2
CK9 β Large	9	25	$3{,}4.10^4$	0,77	0,24
CK9 γ Étroit	8,9	12,5	$6{,}5.10^5$	0,04	1,47
CK10 γ Large	10,1	12,5	$2{,}6.10^4$	0,98	0,14

Table 4.3 – Caractéristiques des échantillons isolants [Marrache-Kikuchi, 2006].

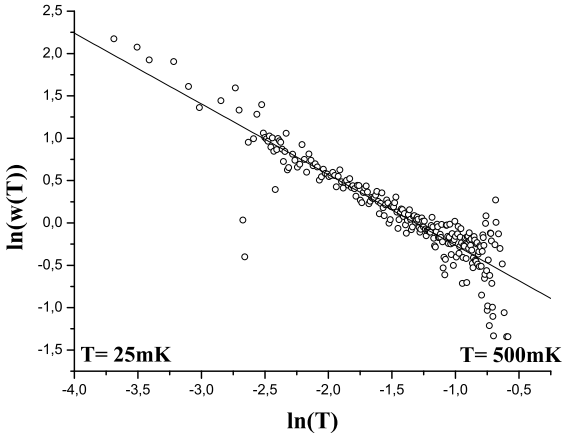

Figure 4.29 – Évolution du coefficient w en fonction de la température T pour le film β CK 9 (d=25 nm, $x = 9\%$). La droite correspond à un fit linéaire $ln(w) = -1.1 - 0.835\ ln(T)$.

à partir du régime linéaire observé dans la représentation d'Arrhenius.

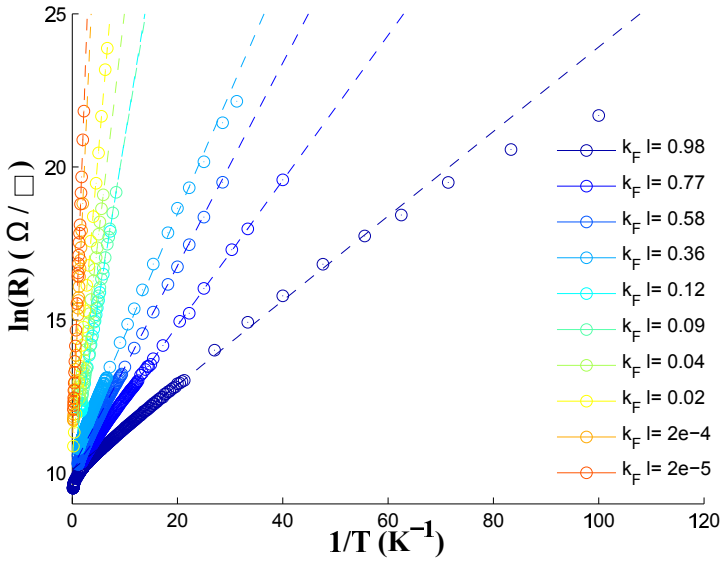

Figure 4.30 – Évolution de la résistance par carré en fonction de l'inverse de la température pour les films isolants (tab. (4.3)).

Évolution de T_0 avec $k_F l$

L'évolution de la température d'activation T_0 en fonction du paramètre $k_F l$ est présentée sur la figure (4.31).

Tous les échantillons isolants sont caractérisés par $k_F l \lesssim 1$. Nous observons **une seule et**

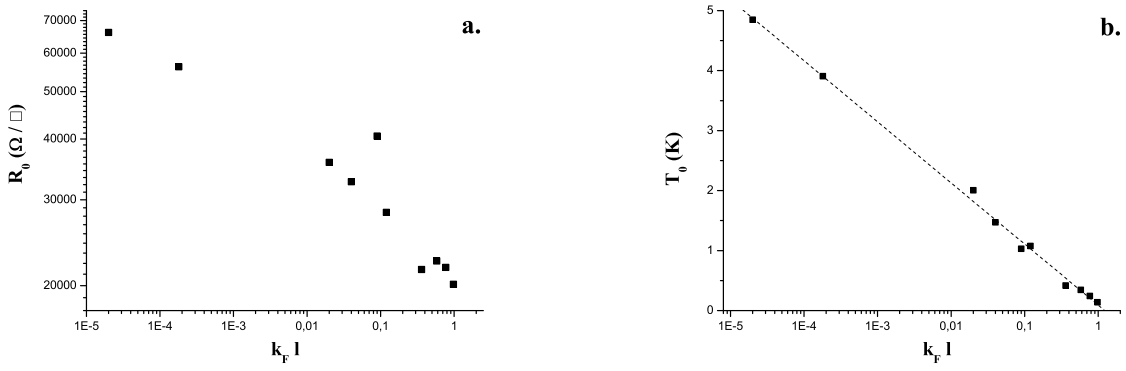

Figure 4.31 – Évolution de R_0 (a) et T_0 (b) en fonction de $k_F l$ pour les films isolants (tab. (4.3)). Pour T_0 ($k_F l$), la droite en pointillés correspond à un fit linéaire $T_0 = 9.10^{-2} + 1.02 \log(k_F l)$.

même évolution de T_0, uniquement décrite par $k_F l$, quelque soit x et d[6] : T_0 augmente lorsque $k_F l$ diminue.

Comme pour le régime « Métal 2 », $k_F l$ décrit donc de façon globale la modification du désordre, induite par un changement de composition, d'épaisseur ou par un recuit. Nous observons de plus **une annulation de T_0, lorsque que $k_F l \to 1$ par valeurs inférieures**.

Nous avons représenté sur le même graphe l'évolution de la conductivité résiduelle σ_{min} et de la température d'activation T_0 en fonction de $k_F l$ (fig. (4.32 a)). Nous voyons l'annulation simultanée de ces deux échelles caractéristiques, pour la même valeur de $k_F l$ ($k_F l \simeq 1$), pour laquelle on peut s'attendre à un régime de localisation forte.

De façon équivalente, l'évolution des $R(T)$ marque une rupture au voisinage de cette valeur $k_F l = 1$: alors que la résistance à haute température évolue peu, nous voyons sur la figure (4.33) un changement brutal des courbes à très basse température, associé à la perte de la saturation, caractéristique du « Métal 2 ».

4.3 Diagramme de phase et interprétation

4.3.1 Diagramme de phase

Nous avons résumé sur la figure (4.34) les résultats obtenus, sous la forme d'un diagramme de phase dans le plan $(k_F l, d)$. Le paramètre de désordre $k_F l$ est ici indifféremment varié soit par une modification de la composition x de l'alliage, soit par un recuit à une température θ_{rec}. Rappelons que nous avons pu constituer ce diagramme de phase grâce aux échantillons mesurés pendant cette thèse (CKSAS 3) et à une ré-analyse de l'ensemble des résultats obtenus par le groupe durant les 10 dernières années.

Grâce à différents critères, synthétisés dans le tableau (4.4), nous avons donc identifié quatre régimes distincts dans la limite T $\to$ 0 :

[6] L'équivalence des paramètres x et θ_{rec} dans la modification des propriétés électroniques de ces isolants a par ailleurs déjà été montrée lors des précédentes études [Marnieros, 1998, Crauste, 2010].

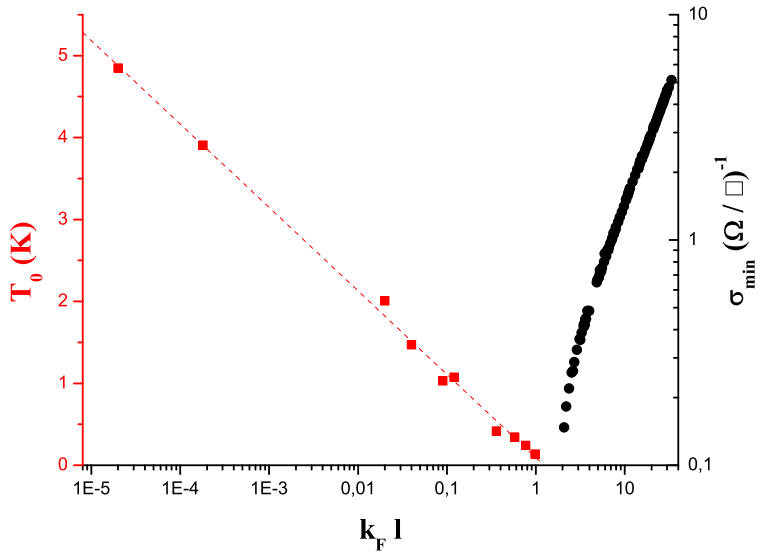

Figure 4.32 – Évolution de la température d'Arrhenius T_0 et de conductivité résiduelle σ_{min} en fonction de $k_F l$.

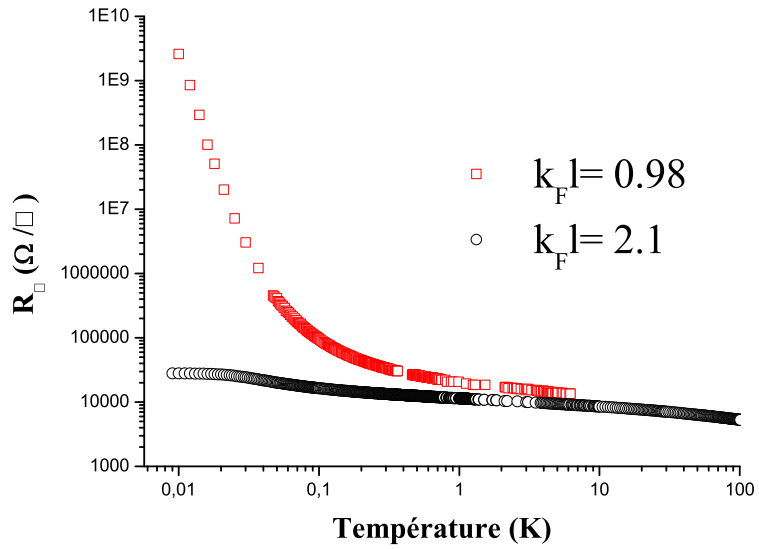

Figure 4.33 – Évolution de la résistance par carré avec la température pour deux échantillons situés au plus proche de $k_F l \simeq 1$, valeur inférieure (courbe rouge) (CK 10 γ_L) et valeur supérieure (courbe noire) (OC 5 d = 5 nm $\theta_{rec} = 230°$C).

- **Régime Supraconducteur** : Ce régime est non dissipatif pour $T < T_c$.
- **Régime « Métal 1 »** : Ce régime est défini à la fois par une chute brutale de la résistance à T_{c0} et par une conductance saturante σ_{min} reflétant un état dissipatif à

État	σ_{min}	signe du TCR	T_c	T_{c0}	T_0
Supraconducteur	∞	+	Finie	Finie	0
Métal 1	Finie	+	0	Finie	0
Métal 2	Finie	-	0	0	0
Isolant	0	-	0	0	Finie

Table 4.4 – Critères de distinction des quatre régimes dans la limite T $\rightarrow$ 0.

$T = 0$. Ce régime est caractérisé par un TCR positif à basse température.

- **Régime « Métal 2 »** : Dans ce régime, l'évolution de la résistance en température peut être décrite par une résistance quasi-constante à très basse température qui laisse place, à des températures intermédiaires, à une loi de type localisation faible ou localisation forte (VRH) selon le degré de désordre du système. Ce régime est caractérisé par un TCR négatif à basse température.

- **Régime Isolant** : Dans ce régime, la résistance du système diverge à très basse température. La température d'Arrhenius T_0 associée à cette évolution devient de plus en plus importante à mesure que l'on augmente le désordre.

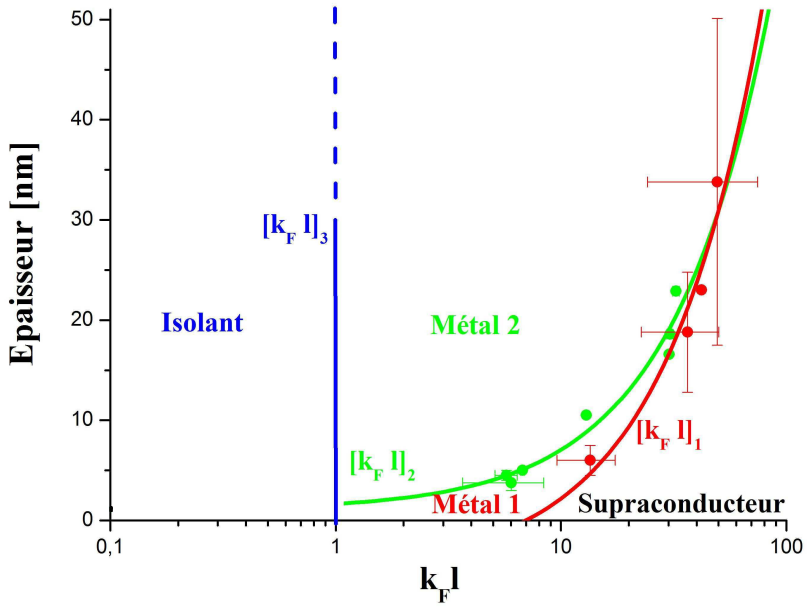

Figure 4.34 – Diagramme de phase dans le plan (d, k_Fl), où k_Fl est modifié soit par un recuit soit par un changement de la composition de l'alliage. Les lignes rouge et verte ($[k_Fl]_1$ et $[k_Fl]_2$) sont des guides pour les yeux, reliant les transitions que nous avons déterminées expérimentalement entre les différents régimes, à différentes épaisseurs. En revanche, nous avons montré que la ligne bleue ($[k_Fl]_3$) séparant les régimes « Métal 2 » et « Isolant » était indépendante de l'épaisseur.

4.3.2 Effet de l'épaisseur

Des travaux antérieurs du groupe [Crauste et al., 2013] avaient montré le rôle spécifique de l'épaisseur sur les propriétés supraconductrices : les abaissements de T_c étaient quantitativement différents lorsque ceux-ci étaient induits par un changement de l'épaisseur d ou par une modification du désordre via x ou θ_{rec}. Nous avons étendu cette analyse aux phases mises en évidence ici et montré que les caractéristiques du régime « Métal 1 » - σ_{min} et T_{c0} notamment -, ainsi que ses transitions vers les régimes supraconducteur ou « Métal 2 » - $(k_F l)_1$ et $(k_F l)_2$ - étaient également fonction de l'épaisseur des échantillons. En revanche, les deux autres régimes, « Métal 2 » et isolant, ont des propriétés à basse température qui sont intégralement déterminées par la seule donnée de $k_F l$, quelque soit le moyen de modifier ce paramètre de désordre - x, d, ou θ_{rec} -. Ainsi, la conductance résiduelle σ_{min} du régime « Métal 2 », $(k_F l)_3$ qui détermine la transition vers l'état isolant, et la température d'activation T_0 dans le régime isolant ne font pas apparaître de rôle spécifique de l'épaisseur.

Bien que nous n'ayons pas encore d'explication probante de cette dichotomie quant aux effets de l'épaisseur d, celle-ci permet notamment de clairement différencier les deux régimes métalliques l'un de l'autre.

D'autres études seraient par ailleurs nécessaires afin de comprendre si la différence dans la prise en compte des effets d'épaisseur signale un cross-over dimensionnel à la transition « Métal 1 » - « Métal 2 ».

4.3.3 Tentative d'interprétation

Si les régimes supraconducteur et isolant sont des phases, par définition, bien identifiées dans les films minces présentant une Transition Supraconducteur-Isolant, les comportements métalliques décrits dans les paragraphes précédents ont longtemps été considérés comme violant le dogme de la théorie de la localisation qui veut que le désordre, aussi faible soit-il, localise les fonctions d'onde électroniques pour des systèmes bidimensionnels. Récemment cependant, on a pu noter un regain d'intérêt, tant théorique [Spivak et al., 2001, Feigel'man et al., 2001, Bucheli et al., 2012], qu'expérimental [Mason and Kapitulnik, 1999] [Mason and Kapitulnik, 2002, Eley et al., 2012, Lin et al., 2012, Liu et al., 2013, Han et al., 2014], pour une possible phase métallique intermédiaire, induite soit par l'application d'un champ magnétique, par un couplage à un réservoir fermionique, ou encore par des fluctuations mésoscopiques favorisées par le désordre.

Cependant, il nous semble que nos observations expérimentales ne peuvent être directement confrontées aux développements théoriques sus-mentionnés. Rappelons que la mise en évidence des quatre régimes - Supraconducteur, « Métal 1 », « Métal 2 », et Isolant - se fonde sur la mesure de plusieurs dizaines d'échantillons de a-Nb_xSi_{1-x}, dans des gammes de compositions variant de 8.5% à 18%, et pour des épaisseurs s'échelonnant entre 4 et 30 nm. La température de recuit nous a par ailleurs permis, dans plusieurs cas, de passer la transition d'un régime à l'autre au sein *d'un même échantillon*. Étant confiants que nos résultats ne sont pas dûs à des artefacts expérimentaux de mesure, et bien que nous ne disposions pas à ce jour d'une interprétation précise de la nature des différents régimes mis en évidence, nous avons tenté d'élaborer un scénario possible pour la destruction de la supraconductivité et de fournir des éléments de réflexion quant à l'éventuelle nature de chacune de ces phases.

L'ingrédient essentiel de cette conjecture est l'existence d'inhomogénéités électroniques induites par le désordre. Bien que nous ayons montré que nos films sont morphologiquement

homogènes, il est raisonnable de conjecturer que les propriétés électroniques peuvent ne pas être uniformes, comme c'est par exemple le cas pour les films d'InO_x, de NbN ou de TiN (chap. (1)). Partant d'un état supraconducteur, suivons l'évolution progressive de l'état du système.

Une augmentation du désordre fait tout d'abord apparaître quelques îlots incohérents (fig. (4.35 a)), dont la densité augmente avec le désordre.

Au désordre critique $(k_F l)_1$, la phase incohérente devient majoritaire et on a alors des régions supraconductrices dans une matrice métallique ou isolante (fig. (4.35 b)). La densité de ces régions supraconductrices n'est alors plus suffisante pour établir une cohérence de phase à l'échelle macroscopique. C'est l'état dissipatif, que nous avons appelé « Métal 1 ». Dans ce régime, la température caractéristique T_{c0} pourrait être interprétée comme la température en-deçà de laquelle le paramètre d'ordre supraconducteur acquiert - localement - une amplitude finie [Gantmakher and Golubkov, 2001]. La persistance de fluctuations supraconductrices dans le « Métal 1 » pourrait également expliquer le rôle particulier de l'épaisseur mis en évidence dans ce régime. En effet, comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, l'épaisseur joue un rôle particulier sur la destruction de la supraconductivité. Une telle propriété devrait donc également se manifester dans la destruction des fluctuations supraconductrices. Les lignes de séparations de phases $(k_F l)_1(d)$ et $(k_F l)_2(d)$ se rejoignent, définissant alors une éventuelle disparition du régime « Métal 1 » pour des épaisseurs suffisamment importantes ($d \gtrsim 40$ nm). En d'autres termes, l'extension du régime « Métal 1 » augmente lorsque l'épaisseur diminue, ce qui est cohérent avec un régime de fluctuations plus important à faible épaisseur. Enfin, notons que cette phase pourrait être comparable à ce qui a été expérimentalement observé récemment, pour des systèmes d'îlots supraconducteurs couplés par effet de proximité à un plan métallique [Eley et al., 2012, Han et al., 2014].

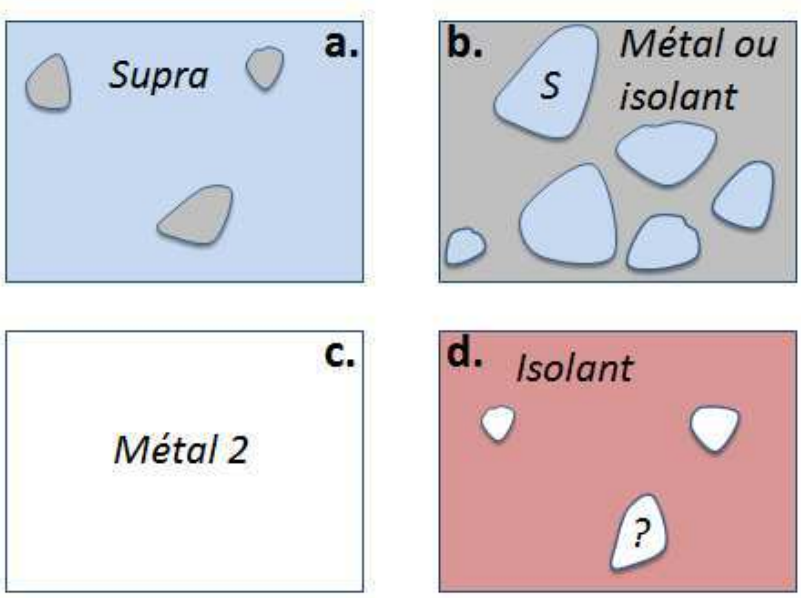

Figure 4.35 – Scénario possible pour la destruction de l'état supraconducteur dans un film mince à mesure que l'on augmente le désordre. Se reporter au texte.

Au désordre critique $(k_F l)_2$, on atteint le régime « Métal 2 ». Comme on l'a vu, celui-ci

est caractérisé par un comportement isolant à haute température ($T > T_{sat}$) et un comportement métallique - et même saturant - à basse température ($T < T_{sat}$). Ce crossover contre-intuitif rend l'interprétation de ce régime difficile, et nous n'en avons pas pour l'instant d'image satisfaisante.

Enfin, au delà de $(k_F l)_3$, le transport se fait essentiellement à travers une matrice isolante, et on retrouve une loi de transport thermiquement activée (fig. (4.35 d)).

4.3.4 Questions ouvertes

Comme nous l'avons vu, l'établissement de ce diagramme de phase pose un certain nombre de questions qui ne sont pas encore résolues à ce jour, et que nous avons listées ci-dessous pour les différents régimes considérés :

Régime supraconducteur Le scénario présenté postule l'existence d'une phase supraconductrice non-uniforme. Une des premières questions que nous devons considérer est donc de savoir si la supraconductivité s'établit de manière homogène ou inhomogène dans notre système. Dans le cas inhomogène, on peut se demander si elle émerge d'un scénario de type percolation.

Régime Métal 1

- La transition Supraconducteur - Métal 1 est-elle un crossover ou une transition de phase ?
- Existe-t-il deux phases en présence dans ce régime, comme schématisé sur la figure (4.35 d) ?
- Si tel est le cas, la matrice est-elle métallique ou isolante ?
- Dans le cas d'une matrice métallique, quelle est sa nature : fermionique ou bosonique ?
- Comment expliquer que ce Métal 1 soit favorisé par les faibles épaisseurs ?
- Existe-t-il - aux faibles épaisseurs - une transition directe Métal 1 - Isolant ?
- Quelle serait alors la nature microscopique de la phase isolante résultante ?

Régime Métal 2

- Quels sont les mécanismes à l'origine de la dissipation dans la limite $T \to 0$?
- Le comportement isolant à haute température est-il dû à l'existence d'un gap dans la densité d'états ?
- Les fluctuations supraconductrices persistent-elles dans ce régime ?

Isolant

- Existe-t-il une continuité entre le comportement isolant à haute température dans le Métal 2 et cette phase isolante ?
- Cette phase est-elle un isolant fermionique ou bosonique ?

De manière plus générale, on peut se poser la question de la spécificité des effets d'épaisseur dans les régimes Supraconducteur et Métal 1.

Nous avons établi ce diagramme de phase pour des films minces, dans une limite bidimensionnelle, on peut donc se poser la question du devenir de ces régimes pour des épaisseurs plus importantes, dans une limite tridimensionnelle. Il en découle la définition des critères établissant la limite 2D/3D, et les longueurs caractéristiques associées.

Un certain nombre de techniques expérimentales permettrait de contribuer à répondre à ces questions. On peut mentionner en particulier les techniques de champ proche, comme la microscopie par effet tunnel (STM), la microscopie par force magnétique (MFM) ou encore la spectroscopie locale à base de nano-SQUID [Luan et al., 2011], permettant de sonder l'existence de paires de Cooper. L'extension des mesures de transport en champ magnétique et des mesures d'effet tunnel macroscopique dans ces différents régimes permettrait également d'avancer dans leur compréhension.

Un autre moyen de mettre en évidence la nature des excitations, et notamment l'existence éventuelle de fluctuations supraconductrices, consiste à sonder la réponse électrodynamique du système, par exemple par l'utilisation de techniques de spectroscopie micro-ondes. La troisième partie de ce manuscrit sera consacrée à l'utilisation de cette technique.

Troisième partie

Transport dynamique

Chapitre 5

Contexte : Électrodynamique des supraconducteurs désordonnés

Sommaire

5.1 La fréquence comme sonde des transitions de phase quantiques 107
5.2 Électrodynamique dans le cadre BCS 108
5.2.1 Modèle à deux fluides 108
5.2.2 Théorie de Mattis-Bardeen 110
5.2.3 Faits expérimentaux 112
5.3 Fluctuations supraconductrices dans les films minces 113
5.3.1 Fluctuations thermiques supraconductrices 113
5.3.2 Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless 116
5.4 Transition supraconducteur-isolant 117
5.4.1 Effets des fluctuations mésoscopiques 117
5.4.2 Effets des interactions coulombiennes 118
5.4.3 Persistance de paires de Cooper dans l'état isolant 119
5.4.4 État métallique intermédiaire 119
5.5 Situation de notre travail 119

Introduction

La troisième partie de ce manuscrit est dédiée à l'étude de la dynamique de films minces supraconducteurs désordonnés, au voisinage de la Transition Supraconducteur-Isolant.

Cette partie a constitué une part importante du travail expérimental de cette thèse. Il s'agissait de mettre au point une nouvelle méthode de mesure de l'électrodynamique d'un système, à très basse température, dans le régime des micro-ondes. Nous reviendrons ultérieurement sur ces aspects expérimentaux et les premiers résultats qui en ont découlé.

Dans ce chapitre, en complément du chapitre (1), nous allons tenter de montrer l'intérêt fondamental de cette étude et de remettre celle-ci dans son contexte.

5.1 La fréquence comme sonde des transitions de phase quantiques

À l'origine de cette thèse, l'une des premières motivations pour entreprendre des mesures dynamiques était, avant même de permettre la caractérisation des composantes dissipative et superfluide du système étudié, d'apporter un éclairage sur ses propriétés critiques à l'approche d'une transition de phase quantique. En effet, une Transition de Phase Quantique (TPQ), bien que ne pouvant théoriquement avoir lieu qu'à T = 0, se manifeste à température finie par des lois d'échelle caractérisées par des exposants critiques (chap. (1)).

Ainsi, pour les mesures à fréquence finie, dans la limite où $\hbar\omega \gg k_B T$, la résistivité ρ du système, près d'une TPQ gouvernée par un paramètre K, obéit à une loi d'échelle de la forme :

$$\rho(K, T, \omega) = f\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}, \frac{K - K_c}{K_c T^{1/\nu z}}\right) \tag{5.1}$$

où K_c est la valeur critique du paramètre K, z l'exposant critique dynamique et ν celui de longueur de corrélation [Sondhi et al., 1997].

Le passage du régime où les fluctuations classiques sont prépondérantes au domaine dominé par les fluctuations quantiques est attendu pour $\hbar\omega \simeq k_B T$.

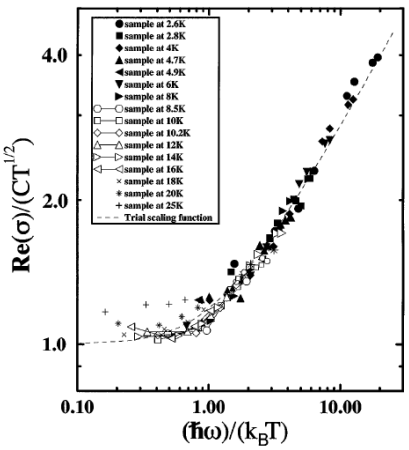

Figure 5.1 – Conductivité renormalisée en fonction de la variable $\frac{\hbar\omega}{k_B T}$. La fonction d'échelle est donnée en pointillés. Le crossover entre les régimes classique et quantique est observé pour $\hbar\omega \simeq k_B T$ [Lee et al., 1998].

La transition de phases quantique Métal-Isolant à 3D a ainsi été étudiée dans le a-Nb_xSi_{1-x}, par des mesures optiques, dans la gamme de fréquences 87-1040 GHz [Lee et al., 1998, Lee et al., 2000]. Comme on le voit sur la figure (5.1), la relation d'universalité (éq. (5.1)) est bien vérifiée, permettant ainsi l'extraction des exposants critiques de la transition (ici $z = 2$, $\nu = 1$).

L'étude dynamique d'un système à l'approche d'une TPQ est donc particulièrement intéressante, dans la mesure où elle permet la mise en évidence du caractère quantique des fluctuations à l'approche du point critique de la transition, mais aussi une étude quantitative des caractéristiques critiques du système et de la TPQ associée (lois d'échelles, exposants critiques, etc.).

Les mesures dynamiques permettent également de sonder les excitations et d'obtenir la réponse électrodynamique complète du système. C'est ce que nous allons détailler dans les sections suivantes, dans le cas précis des supraconducteurs.

5.2 Électrodynamique dans le cadre BCS

5.2.1 Modèle à deux fluides

Dans le modèle à deux fluides, la réponse électrodynamique d'un supraconducteur est décrite comme la superposition de la **réponse dissipative** des quasiparticules et **inductive** des paires de Cooper. Ce modèle permet une bonne description des propriétés électrodynamiques dans la limite des basses fréquences ($\hbar\omega << \Delta$), où Δ est le gap supraconducteur.

Dans ce cadre, l'impédance complexe Z du supraconducteur est donnée par :

$$Z = \frac{RL^2\omega^2}{R^2 + (L\omega)^2} + j\frac{R^2 L\omega}{R^2 + (L\omega)^2} \tag{5.2}$$

où R est la résistance des quasiparticules et L l'inductance cinétique des paires de Cooper. La dépendance en température de R et L peut être simplement approximée par les expressions suivantes :

$$R(T) = R_n \exp\left(\Delta_0/T\right) \tag{5.3}$$

$$L(T) = \frac{L_0}{\sqrt{1 - T/T_c}} \tag{5.4}$$

où R_n est la résistance à l'état normal, L_0 l'inductance cinétique des paires de Cooper à température nulle, que l'on peut évaluer dans la limite sale de la théorie BCS via l'équation (5.5) et T_c la température critique supraconductrice, et $\Delta_0 = 1.76 k_B T_c$ le gap supraconducteur.

$$L_0 = \frac{\hbar R_n}{\pi \Delta_0} \tag{5.5}$$

Nous avons représenté sur la figure (5.2) l'évolution de l'impédance complexe Z définie dans ce cadre du modèle à deux fluides, en fonction de la fréquence, pour différentes températures inférieures à la température critique supraconductrice.

Nous avons également représenté cette évolution en fréquence, en considérant une représentation de Nyquist, où la partie imaginaire de l'impédance $Im(Z)$ est tracée en fonction de la partie réelle $Re(Z)$, la fréquence est alors une variable paramétrique.

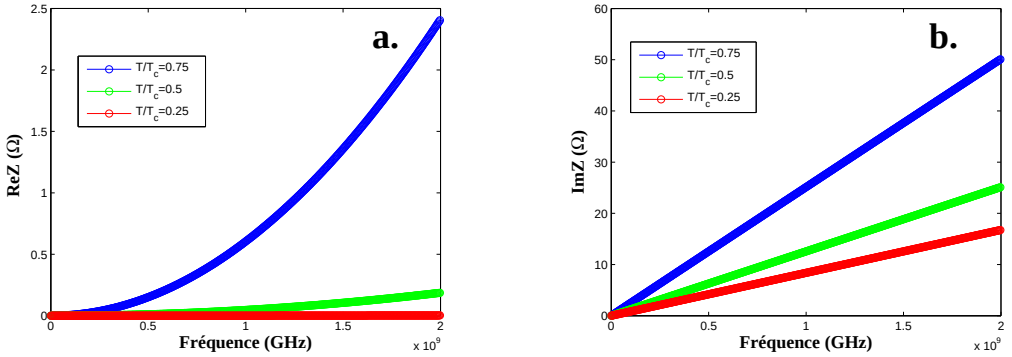

Figure 5.2 – Évolution de l'impédance complexe Z, partie réelle Re(Z) (a) et partie imaginaire Im(Z) (b), en fonction de la fréquence, à différentes températures à l'état supraconducteur, obtenue par une modélisation électrocinétique via l'équation (5.2). Les paramètres utilisés pour cette modélisation sont R_n =100 Ω et L_0 = 1 nH.

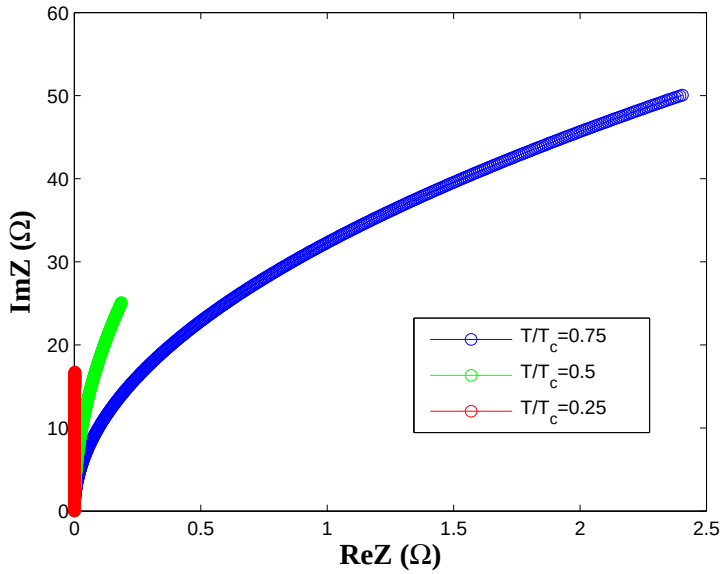

Figure 5.3 – Évolution de l'impédance complexe Z, dans une représentation de Nyquist pour différentes températures. La fréquence est ici une variable paramétrique, comprise entre 100 MHz et 2 GHz. Les paramètres utilisés sont R_n =100 Ω et L_0 = 1 nH.

À mesure que la température diminue, la contribution des quasiparticules est de moins en moins importante, ce qui qui se traduit par une réponse de plus en plus inductive : le diagramme de Nyquist évolue vers une droite verticale.

Notons également que, dans ce modèle, la conductivité s'exprime :

$$G_1(T,\omega) = Re(G) = \frac{1}{R(T)} = \frac{1}{R_n}\exp\left(-\Delta_0/T\right) \tag{5.6}$$

$$G_2(T,\omega) = Im(G) = \frac{1}{L(T)\omega} = \frac{\sqrt{1-T/T_c}}{L_0\omega} \tag{5.7}$$

Les variations de G_1 et G_2 en fonction de la fréquence sont données figures (5.4). La partie réelle de la conductance est constante en fréquence, puisque seule y contribue la partie dissipative due aux quasi-particules. La partie imaginaire croît à basse fréquence, traduisant la diminution de l'inductance cinétique à basse température.

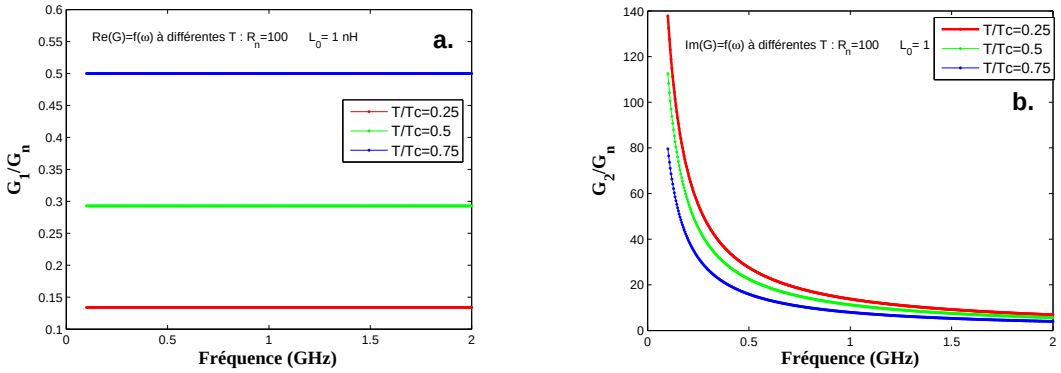

Figure 5.4 – Évolution de la conductance complexe G, partie réelle de la conductance G_1 (a) et partie imaginaire G_2 (b), en fonction de la fréquence, à différentes températures à l'état supraconducteur, obtenue par une modélisation électrocinétique par les équations (5.6) et (5.7). Les paramètres utilisés pour cette modélisation sont R_n =100 Ω et L_0 = 1 nH.

Nous reviendrons plus en détails sur ces courbes lorsque nous introduirons les résultats issus de nos mesures (chap. (7)).

5.2.2 Théorie de Mattis-Bardeen

5.2.2.1 Expression théorique

Dans une gamme de fréquence plus importante, la réponse électrodynamique d'un supraconducteur est décrite par les expressions de la conductivité complexe de Mattis-Bardeen, établies sur la base de la théorie BCS [Mattis and Bardeen, 1958] :

$$\begin{aligned}\frac{\sigma_1(\omega,T)}{\sigma_n} =& \frac{2}{\hbar\omega}\int_{\Delta}^{\infty}\frac{[f(E)-f(E+\hbar\omega)]\,(E^2+\Delta^2+\hbar\omega E)}{(E^2-\Delta^2)^{1/2}\left[(E+\hbar\omega)^2-\Delta^2\right]^{1/2}}\mathrm{d}E \\ &+\frac{1}{\hbar\omega}\int_{\Delta-\hbar\omega}^{-\Delta}\frac{[1-2f(E+\hbar\omega)]\,(E^2+\Delta^2+\hbar\omega E)}{(E^2-\Delta^2)^{1/2}\left[(E+\hbar\omega)^2-\Delta^2\right]^{1/2}}\mathrm{d}E\end{aligned} \tag{5.8}$$

$$\frac{\sigma_2(\omega,T)}{\sigma_n} = \frac{1}{\hbar\omega}\int_{\Delta-\hbar\omega,-\Delta}^{\Delta}\frac{[1-2f(E+\hbar\omega)]\,(E^2+\Delta^2+\hbar\omega E)}{(\Delta^2-E^2)^{1/2}\left[(E+\hbar\omega)^2-\Delta^2\right]^{1/2}}\mathrm{d}E \tag{5.9}$$

où σ_1 et σ_2 sont respectivement la partie réelle et la partie imaginaire de la conductivité. $f(E,T) = (\exp(E/k_BT)-1)^{-1}$ est la fonction de la distribution de Fermi-Dirac, E l'énergie et Δ est le gap supraconducteur.

L'expression de σ_1/σ_n décrit la réponse dissipative due aux excitations de quasi-particules. Le premier terme de l'équation (5.8) traduit la contribution des quasi-particules thermiquement activées, ce terme disparaît donc à $T = 0$. Le second traduit l'excitation de quasi-particules par une perturbation électromagnétique d'énergie $\hbar\omega > 2\Delta(T)$.

L'expression de σ_2/σ_n décrit la réponse non-dissipative des paires de Cooper, que l'on peut relier à l'expression du gap $\Delta(T)$, par l'expression suivante [Tinkham, 1975] :

$$\frac{\sigma_2(\omega,T)}{\sigma_n} \approx \frac{\pi\Delta(T)}{\hbar\omega}\tanh\left[\frac{\Delta(T)}{2k_BT}\right] \approx_{T\to 0} \frac{\pi\Delta(0)}{\hbar\omega} \tag{5.10}$$

Les figures (5.6) et (5.5) montrent l'évolution de la conductivité complexe σ, respectivement en fonction de la fréquence et de la température, calculée à partir des équations (5.8) et (5.9).

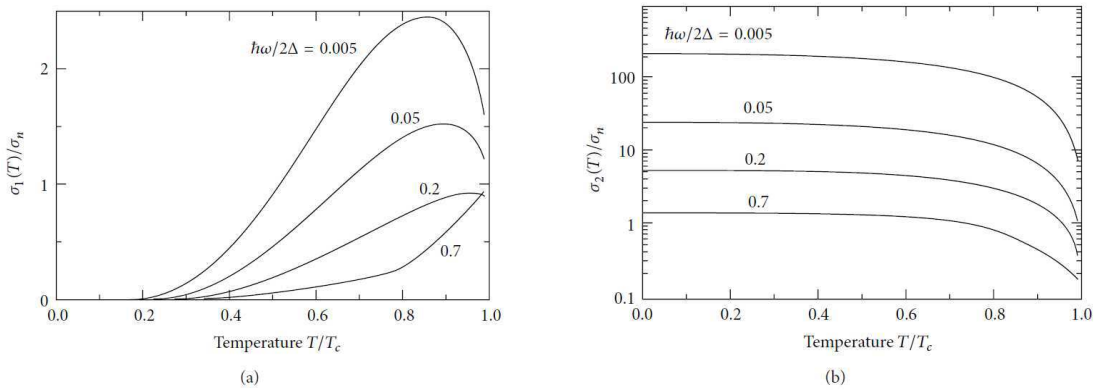

Figure 5.5 – Évolution de la conductivité complexe $\sigma_1 = Re(\sigma)$ (a) et $\sigma_2 = Im(\sigma)$ (b) en fonction de la température T pour différente fréquence ω en dessous du gap supraconducteur Δ, telle que prédite par la théorie de Mattis-Bardeen, d'après [Dressel, 2013].

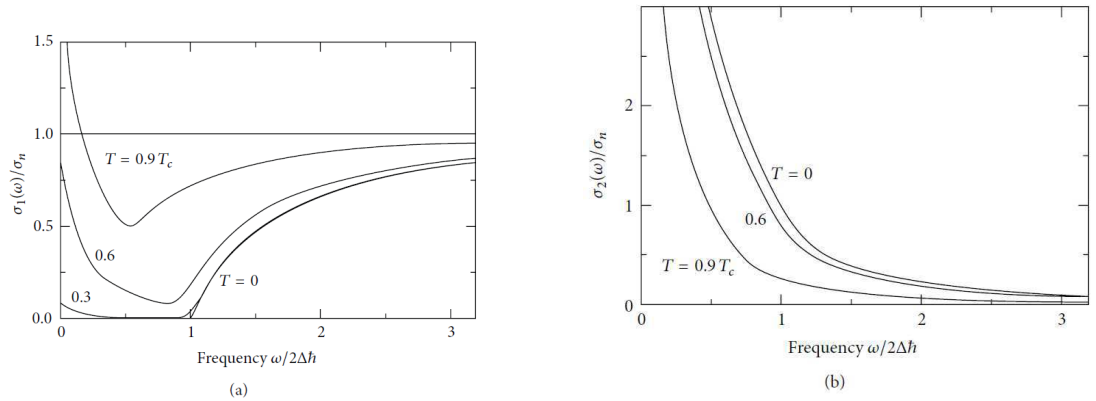

Figure 5.6 – Évolution de la conductivité complexe $\sigma_1 = Re(\sigma)$ (a) et $\sigma_2 = Im(\sigma)$ (b) en fonction de la fréquence pour différentes températures, telle que prédite par la théorie de Mattis-Bardeen, d'après [Dressel, 2013].

À basse fréquence, l'évolution de σ_1 en température montre une augmentation pour $T/T_c \sim 0.8$ par rapport à la conductivité à l'état normal σ_N. Cette augmentation de la dissipation est connue sous le nom de **pic de cohérence**. L'amplitude de ce pic de cohérence, donnée par l'équation (5.11), diminue avec la fréquence pour disparaître pour $\hbar\omega \geqslant \Delta/2$ [Dressel, 2013].

$$\left(\frac{\sigma_1}{\sigma_n}\right)_{max} \sim \log\left[\frac{2\Delta_0}{\hbar\omega}\right] \tag{5.11}$$

L'évolution de σ_1 en fonction de la fréquence ω montre une forte diminution pour $\hbar\omega < 2\Delta(T)$, traduisant la forte réduction de la population de quasi-particules due à l'ouverture du gap Δ dans la densité d'états au niveau de Fermi pour $T < T_c$.

5.2.3 Faits expérimentaux

Parmi les nombreuses mises en évidence expérimentales de la théorie de Mattis-Bardeen, on peut citer l'expérience menée par Steinberg et al. [Steinberg et al., 2008] sur un film d'aluminium de 50 nm d'épaisseur (fig. (5.7)). Dans cet exemple, la fréquence (45 MHz - 40 GHz) est telle que $3.10^{-4} < \frac{\hbar\omega}{2\Delta(0)} < 0.3$, c'est-à-dire que l'on sonde le régime basse fréquence de la figure (5.6).

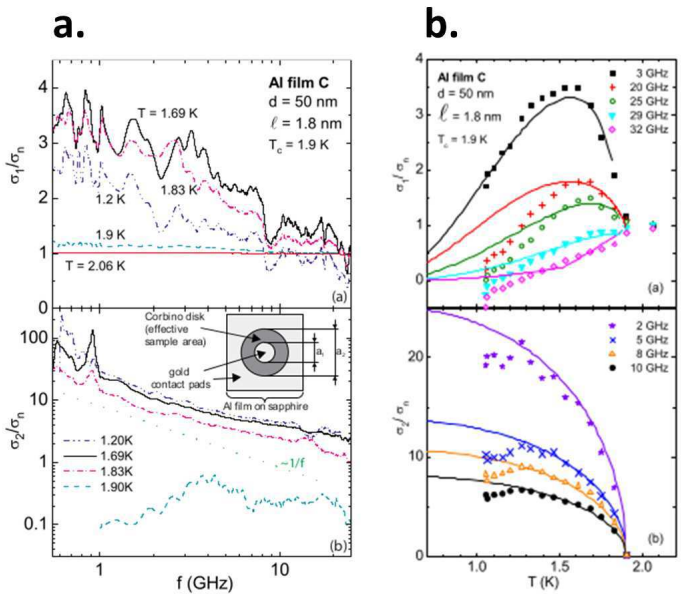

Figure 5.7 – Parties réelles et imaginaires de la conductivité en fonction de la fréquence (a.) et de la température (b.) pour un film d'aluminium de 50 nm d'épaisseur, et de température critique supraconductrice de $T_c = 1.9$ K. L'évolution expérimentale de la conductivité avec la température (points) est comparée à la théorie BCS (lignes) [Steinberg et al., 2008].

La partie imaginaire de la conductivité σ_2 varie alors en $1/\omega$, comme nous pouvons l'observer sur la figure (5.7 a). L'évolution en température de la partie réelle σ_1 permet d'observer le pic de cohérence pour des températures inférieures à la température critique T_c du film.

Plus récemment, des films minces de TiN faiblement désordonnés ($R_\square \simeq 80\Omega/\square$ à l'état normal) ont été mesurés en transmission, par une technique de spectroscopie optique, dans une gamme de fréquence allant de 90 à 510 GHz, pour des températures s'échelonnant entre 2 et 292 K et sous un champ magnétique pouvant atteindre 7 T [Pracht et al., 2012]. Comme on peut le voir figure (5.8), les mesures sont bien décrites par la théorie BCS[1].

[1] C'est également le cas pour des films d'InO_x proche de la Transition Supraconducteur-Isolant mesurés dans ces gammes de fréquence [Sherman et al., 2014].

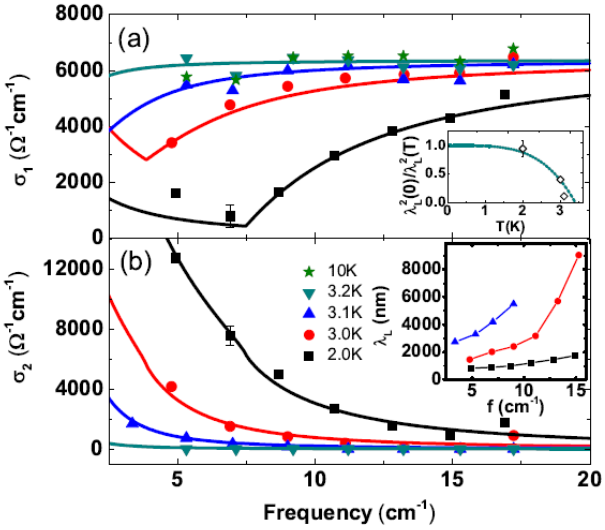

Figure 5.8 – Parties réelles (a.) et imaginaires (b.) de la conductivité en fonction de la fréquence pour un film de TiN de 18 nm d'épaisseur, et de température critique supraconductrice de $T_c = 3.4$ K. L'évolution expérimentale de la conductivité avec la température (points) est comparée à la théorie BCS (lignes) [Pracht et al., 2012].

Pour des films supraconducteurs plus désordonnés (films de a-$Mo_{77}Ge_{23}$ avec 33 Ω $< R_\square <$ 1243 Ω à l'état normal), des mesures de longueur de pénétration [Turneaure et al., 2000, Turneaure et al., 2001] ont montré que l'inductance de ces films, même dans la limite bidimensionnelle, suivait la prédiction BCS, sauf au voisinage immédiat de T_c ($T > 0.9\ T_c$) où les fluctuations de phase ont un effet mesurable (fig. (5.9)). En particulier, l'inductance cinétique à température nulle coïncide à mieux que 7% avec la valeur prédite par BCS (éq. (5.5)).

5.3 Fluctuations supraconductrices dans les films minces

On le voit, le modèle de Mattis-Bardeen est relativement robuste et permet, en première approximation, de décrire quantitativement le comportement de nombre de supraconducteurs, des plus conventionnels, tels que l'aluminium, jusqu'aux plus désordonnés, même dans une limite 2D, tels que les films d'a-Mo_xGe_{1-x} sus-mentionnés.

La réponse fréquentielle exacte doit cependant prendre en compte des fluctuations supraconductrices qui peuvent être importantes pour des supraconducteurs désordonnés ou de basse dimensionnalité. Ainsi, la paraconductivité ou les fluctuations à l'origine de la transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (chap. (1)) apportent des corrections aux expressions de la conductivité AC données précédemment.

5.3.1 Fluctuations thermiques supraconductrices

Pour des films minces désordonnés, le temps de vie fini des paires de Cooper au-dessus de la température critique supraconductrice engendre les fluctuations dites d'Aslamazov-Larkin [Larkin and Varlamov, 2005]. Celles-ci vont se traduire par une correction au modèle de Mattis-Bardeen, prise en compte par la théorie de Schmidt [Schmidt, 1968].

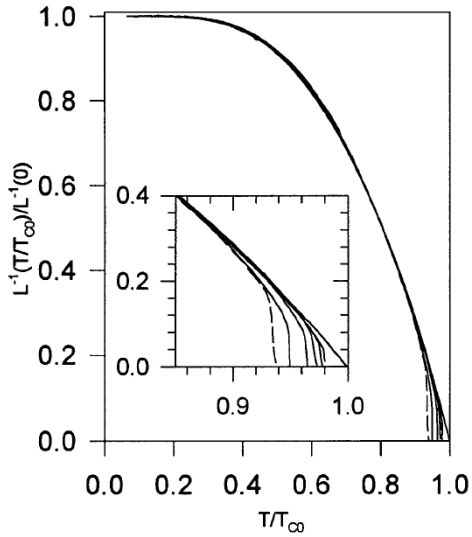

Figure 5.9 – $L^{-1}(T/T_c)/L^{-1}(0)$ pour différents films de a-$Mo_{77}Ge_{23}$ ($2.15 < d < 50$ nm) et un film d'InO_x (tirets, 10 nm) en fonction de T/T_c. Dans l'insert, un zoom sur le comportement proche de la T_c montre de légères déviations par rapport aux prédictions BCS, attribuées à des fluctuations de phase de plus en plus importantes à mesure que l'épaisseur des films est réduite [Turneaure et al., 2000].

On peut voir sur la figure (5.10) l'effet de ces fluctuations sur le coefficient de transmission micro-onde mesuré près de la T_c sur un film mince de Pb (d = 3.5 nm) [Lehoczky and Briscoe, 1969].

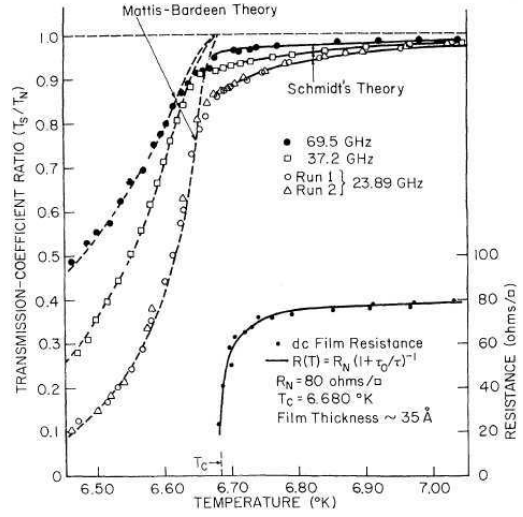

Figure 5.10 – Coefficient de transmission pour un film de Pb (d = 3.5 nm) à différentes fréquences (23.9, 37.2 et 69.5 GHz), autour de la transition supraconductrice [Lehoczky and Briscoe, 1969].

Plus récemment, Ohashi et al. ont fourni une analyse plus complète de la conductivité dynamique dans des films minces supraconducteurs, par des mesures de réflectométrie large bande jusqu'à 10 GHz [Ohashi et al., 2006]. Celle-ci vérifie les prédictions théoriques

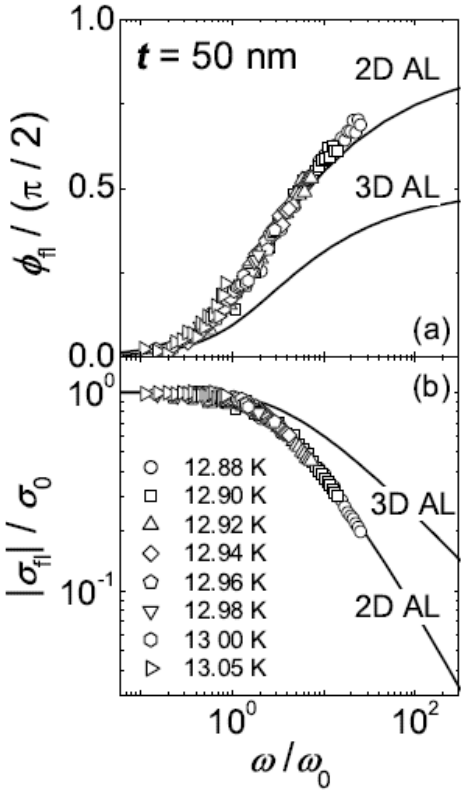

Figure 5.11 – Loi d'échelle pour la phase et l'amplitude de la conductivité complexe pour un film de NbN de 50 nm d'épaisseur. Les prédictions de la théorie d'Aslamazov-Larkin (3D et 2D) sont données en traits pleins [Ohashi et al., 2006].

de Schmidt (fluctuations d'Aslamazov-Larkin) complétées par celles d'Aslamazov et Varlamov [Aslamasov and Varlamov, 1980] pour le comportement dynamique des fluctuations de Maki-Thompson :

À 2D	À 3D
$\sigma_{2D}(\omega) = \frac{e^2}{16\hbar d\epsilon} S_{2D}\left(\frac{\pi\hbar\omega}{16 k_b T_c \epsilon}\right)$	$\sigma_{3D}(\omega) = \frac{e^2}{32\hbar\xi_0\sqrt{\epsilon}} S_{3D}\left(\frac{\pi\hbar\omega}{16 k_b T_c \epsilon}\right)$
$\mathrm{Re}S_{2D}(x) = \frac{2}{x}\arctan x - \frac{1}{x^2}\ln(1+x^2) + \frac{2\pi x - 2\ln(2x)}{1+4x^2}$	$\mathrm{Re}S_{3D}(x) = \frac{8}{3x^2}\left[1-(1+x^2)^{3/4}\cos\left(\frac{3}{2}\arctan x\right)\right] + \frac{4-4\sqrt{x}+8x^{3/2}}{1+4x^2}$
$\mathrm{Im}S_{2D}(x) = \frac{2}{x^2}(\arctan x - x) + \frac{1}{x}\ln(1+x^2) + \frac{\pi+4x\ln(2x)}{1+4x^2}$	$\mathrm{Im}S_{3D}(x) = \frac{8}{3x^2}\left[-\frac{3}{2}x-(1+x^2)^{3/4}\sin\left(\frac{3}{2}\arctan x\right)\right] + \frac{4\sqrt{x}-8x+8x^{3/2}}{1+4x^2}$

où $\epsilon = |\frac{T}{T_c} - 1|$. Ces prédictions sont équivalentes à la loi d'échelle prédite par Fisher et al. [Fisher et al., 1991] pour des fluctuations gaussiennes au voisinage d'une transition de phase du second ordre. C'est cette relation d'universalité qui est testée figure (5.11).

Notons, par ailleurs, qu'au-dessus de la T_c, certaines expériences [Crane et al., 2007b, Liu et al., 2011, Mondal et al., 2013] mesurent un "pic de dissipation", visible sur la partie réelle de la conductivité (fig. (5.12)). Bien que l'origine de cette dissipation soit encore peu claire [Mondal, 2013], cet effet a été interprété par un ralentissement de la dynamique des

fluctuations au voisinage de $T = T_c$, dû à la divergence du temps de Ginzburg-Landau ($\tau_{GL} = \frac{\pi\hbar}{8k_B(T-T_c)}$), qui n'est pas prévu par le modèle gaussien des fluctuations d'Aslamazov-Larkin en fréquence [Crane et al., 2007a].

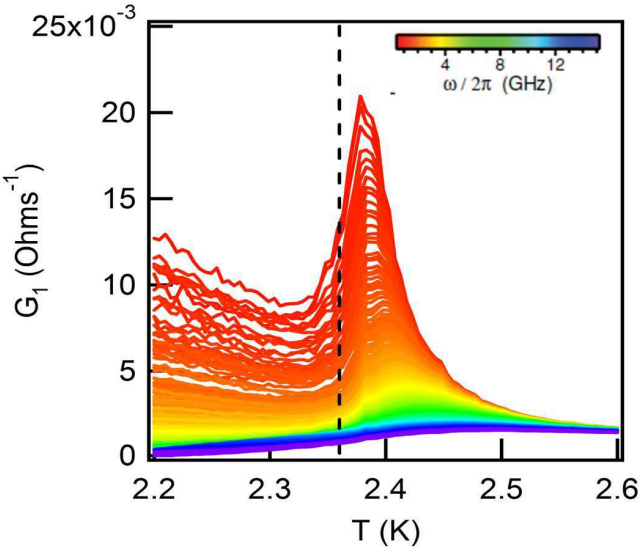

Figure 5.12 – Dépendance en température de σ_1 à différentes fréquences pour un film d'InO_x (d=30 nm ; T_c = 2.36 K). Tiré de [Liu, 2011].

5.3.2 Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless

Pour des films minces supraconducteurs, les fluctuations deviennent plus importantes et on s'attend à observer dans la limite bidimensionnelle une transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (chap (1)), pour T = T_{BKT}, en-deçà de laquelle les défauts topologiques s'apparient en paires vortex-antivortex, formant alors un quasi-ordre à longue portée. La phase du paramètre d'ordre supraconducteur est alors figée. Pour des températures supérieures à T_{BKT}, en revanche, la dissociation des paires vortex-antivortex, énergétiquement favorable, induit des fluctuations de phase du paramètre d'ordre supraconducteur, qui perd donc en rigidité et tombe de manière discontinue à zéro pour $T > T_{BKT}$.

À température fixée, les paires vortex-antivortex les plus sensibles aux effets thermiques sont celles de plus grande taille, c'est-à-dire correspondant à de petites fréquences ω_{diss}. Lorsque l'on sonde le système à une fréquence supérieure à ω_{diss}, le système apparaît donc supraconducteur, c'est-à-dire avec une rigidité de phase finie, même au-delà de T_{KBT}. Les études en fréquence permettent d'accéder à la mesure de cette rigidité de phase T_θ, reliée à la densité superfluide n_s par :

$$k_B T_\theta(\omega) = \hbar\omega \frac{G_2}{G_Q} = \frac{n_s(\omega) e^2 \hbar d}{m G_Q} \tag{5.12}$$

où G_2 est la partie imaginaire de la conductance, $G_Q = \frac{4e^2}{h}$ le quantum de conductance pour les paires de Cooper, et $n_s(\omega)$ la densité superfluide à la fréquence ω.

Ainsi, à mesure que la fréquence augmente, on s'attend à ce que T_θ augmente. C'est ce qui a été expérimentalement observé pour des films d'InO_x amorphes par des mesures de réflectométrie micro-onde dans la gamme 0.2 GHz - 15 GHz (fig. (5.13)) [Liu et al., 2011].

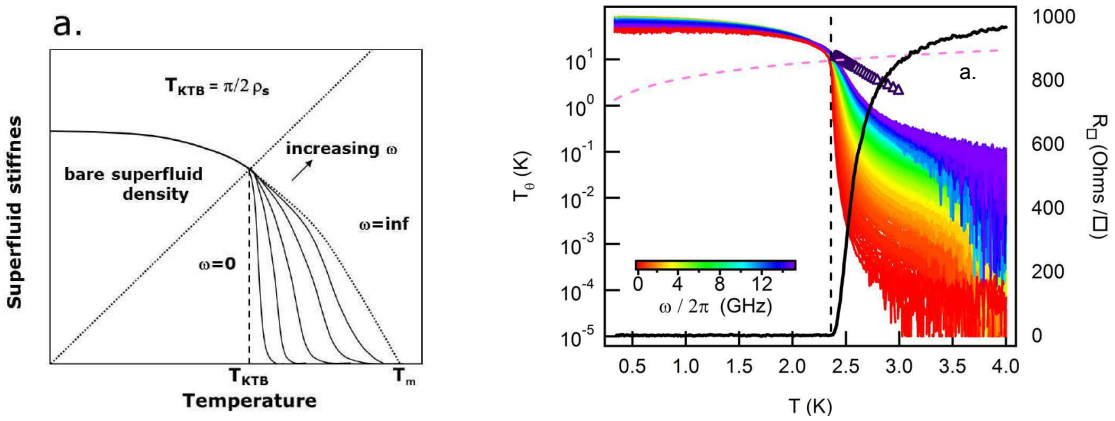

Figure 5.13 – a. Évolution théorique qualitative de la rigidité superfluide en fonction de la température à différente fréquence [Armitage, 2011].b. Rigidité de phase en fonction de la température pour des fréquences de 0.2 GHz - 15 GHz pour des films d'InO_x de 30 nm d'épaisseur [Liu et al., 2011].

Des mesures d'inductance mutuelle sur des films de NbN à 50 kHz [Mondal et al., 2011a, Yong et al., 2013] ont par ailleurs récemment montré que la transition BKT était robuste, même au voisinage de la Transition Supraconducteur-Isolant[2].

5.4 Transition supraconducteur-isolant

Si la littérature sur l'électrodynamique des supraconducteurs conventionnels ou à haute température critique est relativement abondante, il n'y a encore que peu de mesures concernant directement la Transition Supraconducteur-Isolant (TSI). Dans les sections précédentes, nous avons montré des résultats encore assez disparates sur les films de supraconducteurs désordonnés dans la limite bidimensionnelle : des systèmes, tels que TiN ou MoGe semblent pouvoir globalement être décrits par un modèle de Mattis-Bardeen, dont ils ne dévient qu'au voisinage de la température critique, du fait des fluctuations supraconductrices. Les fluctuations classiques, de type Aslamazov-Larkin et Maki-Thompson, ou de type « Berezinskii-Kosterlitz-Thouless », doivent alors être prises en compte, comme c'est le cas pour le NbN ou l'InO_x. Cependant, sans que cela en diminue l'intérêt, la plupart de ces résultats ont été obtenus sur des films où le désordre était certes important, mais qui se situaient relativement loin de la TSI. De plus en plus d'expériences s'attachent désormais à étudier les spécificités de la TSI. Sans prétention d'exhaustivité, nous en mentionnons ici quelques résultats remarquables.

5.4.1 Effets des fluctuations mésoscopiques

Grâce à des mesures de résonateurs dans la gamme des micro-ondes [Driessen et al., 2012], Driessen et al. ont mesuré l'écart de la densité superfluide - indirectement mesurée par la fréquence de résonance du circuit - par rapport aux prédictions de la théorie de Mattis-Bardeen (figure (5.14)). Ils interprètent cet écart, d'autant plus important que l'on est à haute température, par un élargissement de la densité d'états électroniques issu de fluctuations mésoscopiques, inhérentes aux systèmes désordonnés [Skvortsov and Feigel'man, 2005].

[2]La transition BKT est visible même au voisinage de la TSI, bien que l'énergie du cœur de vortex soit corrélée à l'énergie du gap supraconducteur, et non à la densité superfluide, comme prédit par la théorie BKT. En effet, au voisinage de la TSI, ces deux énergies sont distinctes [Ghosal et al., 1998].

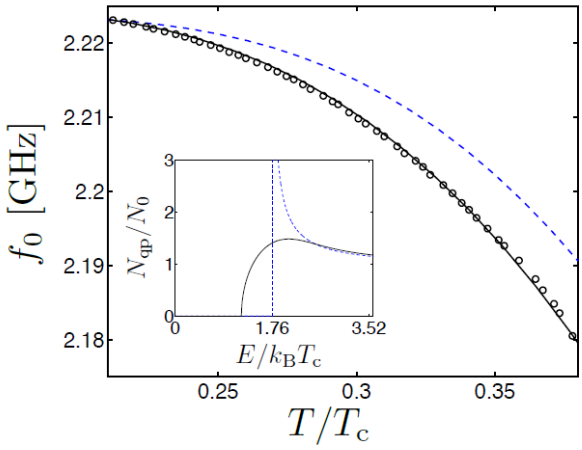

Figure 5.14 – Fréquence de résonance en fonction de la température pour un film de TiN (d = 6 nm, T_c = 1.5 K). La courbe en pointillé représente les prédictions de la théorie de Mattis-Bardeen. La courbe pleine montre ce que l'on attend si on prend en compte un élargissement de la densité d'état telle que représentée dans l'insert [Driessen et al., 2012].

5.4.2 Effets des interactions coulombiennes

Des expériences récentes sur des films d'InO_x ont par ailleurs démontré l'importance des interactions coulombiennes pour la TSI. En effet, Sherman et al. ont conduit des expériences complémentaires d'effet tunnel macroscopique et de mesure de la conductivité dans la gamme du THz, sur des films de 25 à 35 nm d'épaisseur, proches de la TSI, avec et sans plan d'écrantage [Sherman et al., 2014]. Ils ont ainsi pu montré que, dans le cas des jonctions tunnel, la proximité de la contre-électrode induisait toujours la mesure d'un gap supraconducteur, mesuré par les mesures THz uniquement dans le cas où le film d'InO_x était écranté par une grille d'aluminium déposée à proximité (d = 2 nm) (fig. (5.15)). Ces expériences tendent à montrer que l'écrantage joue un rôle clé dans la TSI, tout au moins pour ce système.

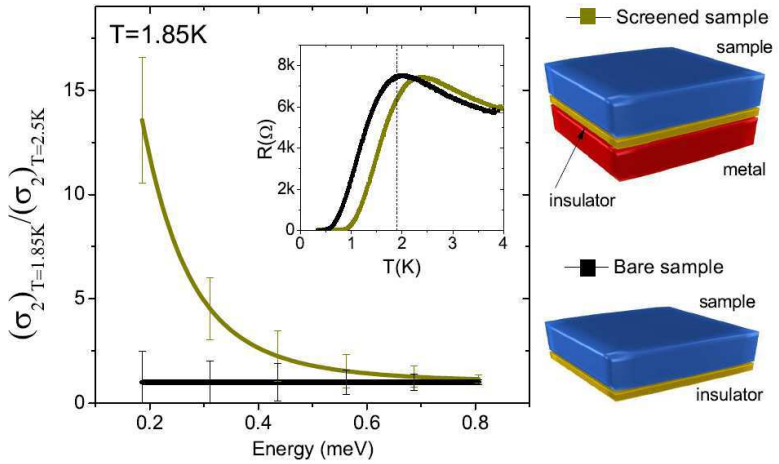

Figure 5.15 – Partie imaginaire σ_2 de la conductivité mesurée à T = 1.85 K, normalisée par la valeur à T = 2.1 K, pour un échantillon d'InO_x simple (noir) et pour le même échantillon, écranté par un plan d'aluminium (jaune) [Sherman et al., 2014].

5.4.3 Persistance de paires de Cooper dans l'état isolant

Les mesures de spectroscopie micro-onde en cavité par Crane et al. [Crane et al., 2007b] ont montré la persistance d'une rigidité superfluide, même du côté isolant de la TSI (fig. (5.16)). Ceci signe la présence de paires de Cooper condensées, mais non cohérentes dans cet état.

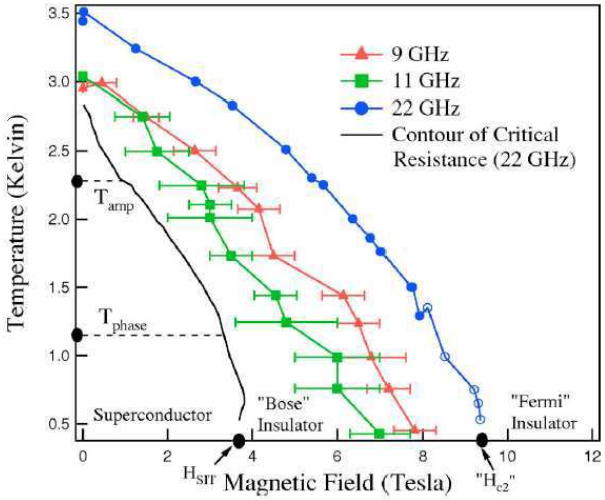

Figure 5.16 – Diagramme de phase (T, B) pour la TSI induite par un champ magnétique dans des films minces d'InO_x . L'évolution en champ de la résistance critique à la transition R_c est donnée en noir. À champ magnétique B fixé, les points de couleur correspondent à la température à laquelle la rigidité de phase devient nulle [Crane et al., 2007b].

5.4.4 État métallique intermédiaire

Très récemment, le groupe de Peter Armitage a montré que, pour une TSI induite par le champ magnétique, la rigidité superfluide s'annulait à un champ inférieur à celui qui induit un état isolant pour les mesures de transport [Liu et al., 2013] (fig. (5.17)). Ils interprètent ce résultat comme une indication d'un possible état métallique sous champ magnétique, intermédiaire entre l'état supraconducteur et l'état isolant, où des fluctuations supraconductrices persistent à fréquence finie, sans réelle cohérence de phase. Ces expériences démontrent, en tout cas, tout l'intérêt des mesures en fréquence qui peuvent sonder les excitations persistantes et ainsi apporter un éclairage pour les expériences de transport DC.

5.5 Situation de notre travail

Dans les sections précédentes, nous avons mis en exergue quelques résultats relatifs à l'électrodynamique des films minces supraconducteurs, obtenus grâce à différentes méthodes expérimentales. Ci-dessous, nous listons succinctement les forces et les difficultés inhérentes à chaque technique, en lien avec cette problématique :

Longueur de pénétration magnétique

⊕ Ces mesures présentent une grande sensibilité et ne nécessitent pas l'utilisation de calibration.

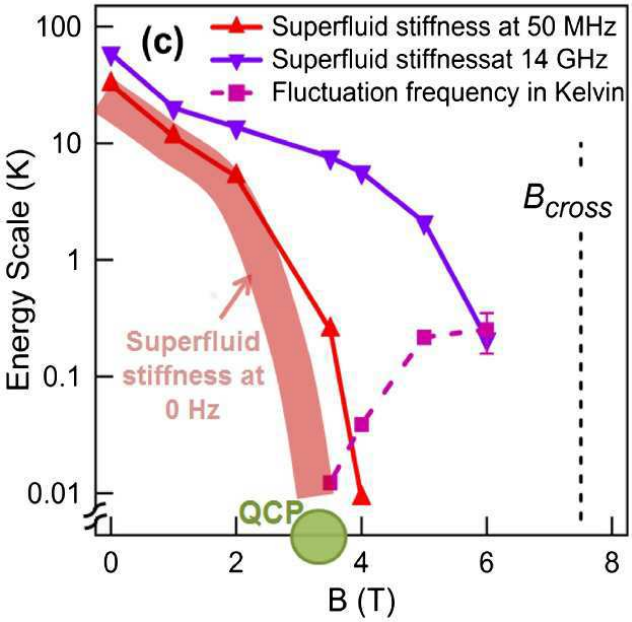

Figure 5.17 – Diagramme de phase (T, B) pour la TSI induite par un champ magnétique dans des films minces d'InO_x. L'état isolant est présent, à $T = 0$ au-delà du champ $B_{cross} \simeq 7.5$ T. La rigidité superfluide à basse fréquence s'annule à plus bas champ $B \simeq 3.5$ T [Liu et al., 2013].

⊖ Les mesures de pénétration magnétique se limitent à une gamme restreinte en fréquence, et opèrent à basse fréquence, typiquement, entre 10 et 100 kHz.

Mesures GHz large bande

⊕ Ces mesures sont large bande et permettent de sonder une gamme importante de temps caractéristiques.

⊖ Les mesures de réflectométrie sont tributaires de la qualité de la calibration, notamment à basse température. Jusqu'à présent, ces mesures ont été limitées à des températures supérieures à 0.3 K.

Résonateur GHz

⊕ Ces mesures présentent une grande sensibilité et ne nécessitent pas l'utilisation de calibration.

⊖ Les résonateurs ne travaillent qu'à fréquences fixées et sur une plage réduite de fréquence (fixée par le facteur de qualité). Par ailleurs, ils ne peuvent fonctionner que lorsque la densité superfluide est suffisamment grande, c'est-à-dire pour $T < T_c$. On ne peut donc pas sonder, avec cette technique, les abords de la TSI. Enfin, l'extraction des paramètres caractéristiques de l'échantillon dépend crucialement de la bonne connaissance de l'échantillon et de sa modélisation électrocinétique.

THz

⊕ Cette mesure large bande semble moins tributaire de la calibration du système que les mesures de réflectométrie GHz.

⊖ Cependant, une bonne connaissance de la réponse du substrat est nécessaire [Pracht et al., 2012]. De plus, du fait de l'encombrement spatial de l'appareillage, cette technique ne permet pas d'accéder aux très basses températures où les effets quantiques deviennent prépondérants. On ne peut donc pas s'approcher très près de la TSI.

Notre travail sur la mesure de la conductivité GHz à très basse température s'inscrit donc dans ce contexte. Nous avons souhaité développer cette technique afin d'avoir accès, notamment, à :

- La dynamique de la transition de phase et aux lois d'échelle associées
- Une mesure de la densité superfluide du système, notamment au voisinage de la TSI
- Et, plus généralement, à la dynamique des excitations du système.

Notre système d'intérêt, les films minces de a-Nb_xSi_{1-x}, étant supraconducteurs avec une température critique relativement basse de l'ordre de quelques centaines de mK, voire moins, nous avons choisi la gamme du GHz comme étant celle qui nous permettrait, à terme, de traverser la limite quantique ($\hbar\omega \simeq k_B T_c$). Nous souhaitions par ailleurs avoir accès à une large gamme en fréquence, ce qui imposait des mesures large bande. Nous nous sommes donc naturellement tournés vers les mesures de réflectométrie dans la gamme [100 MHz-2 GHz]. Comme nous l'avons déjà mentionné, la qualité de ces mesures dépend fortement de la maîtrise du processus de calibration. Une première étape, cruciale, consistait donc à établir et valider une méthode de calibration qui soit valable à très basse température. Cela a été un des buts majeurs de cette thèse. C'est cette démarche que nous allons décrire dans les prochains chapitres avant d'en donner un exemple d'application.

Chapitre 6

Dispositifs expérimentaux

Sommaire

6.1 Fabrication des échantillons pour les mesures micro-ondes 123

6.1.1 Contraintes sur le design et la synthèse des échantillons 123

6.1.2 Fabrication des échantillons 127

6.2 Réflectométrie micro-ondes à très basse température 129

6.2.1 Réflexion vs. Transmission 129

6.2.2 Dispositifs de mesure micro-ondes à basse température 131

Introduction

Nous allons présenter dans ce chapitre les techniques expérimentales développées lors de cette thèse, ayant pour but l'étude de la dynamique des films minces de a-Nb_xSi_{1-x}, à l'approche de la transition supraconducteur-isolant.

Nous présenterons tout d'abord le protocole de fabrication que nous avons développé pour la synthèse des échantillons spécifiquement dédiés à ces mesures. Nous décrirons ensuite la mise en place et la caractérisation du dispositif de mesure de réflectométrie que nous avons développé, permettant une détermination de l'impédance complexe $Z(\omega)$ des films de a-Nb_xSi_{1-x} dans la gamme des micro-ondes (quelques GHz) et à très basse température (T$<$ 100 mK).

6.1 Fabrication des échantillons pour les mesures micro-ondes

Les mesures d'impédance par réflectométrie que nous allons décrire par la suite nécessitent l'intégration de l'échantillon à mesurer dans un environnement micro-ondes macroscopique (câbles coaxiaux, amplificateur, etc.), d'impédance proche de l'impédance caractéristique $Z_0 = 50\ \Omega$. La désadaptation entre l'impédance Z de l'échantillon et Z_0 va induire une réflexion, dont la mesure nous permettra, après calibration du dispositif, une détermination de Z.

6.1.1 Contraintes sur le design et la synthèse des échantillons

6.1.1.1 Caractéristiques de la ligne de transmission

L'échantillon, de taille micrométrique, est connecté au dispositif de mesure micro-ondes par une ligne de transmission de type planaire [Pozar, 2009], dont nous allons préciser les caractéristiques générales.

Durant cette thèse, nous avons considéré les lignes de transmission de types « microstrip » et « coplanar waveguide » (CPW) (fig. (6.1)).

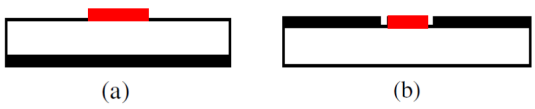

Figure 6.1 – Représentation en coupe des lignes de transmission : microstrip (a) et coplanar waveguide (b). Les zones rouges, noires et blanches correspondent respectivement au conducteur métallique central, aux plans de masse et au diélectrique.

La ligne de transmission « microstrip » est composée d'un conducteur central et d'un plan de masse, séparés par un substrat diélectrique (fig. (6.1 (a))). La piste conductrice centrale est donc entourée d'un diélectrique constitué de l'air d'une part et du substrat diélectrique d'autre part. L'inhomogénéité du milieu diélectrique environnant complique la description de la propagation électromagnétique dans ce type de ligne de transmission, qui est de type quasi - TEM [Pozar, 2009].

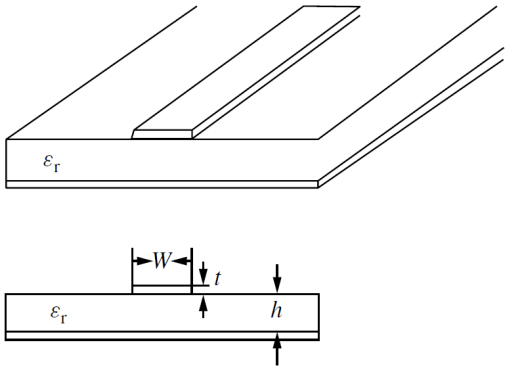

Figure 6.2 – Représentation schématique de la géométrie microstrip [Chen et al., 2004]. Les grandeurs reportées sont définies dans le texte.

La géométrie de type « coplanar waveguide » (CPW) est définie par une piste métallique médiane séparée par deux fentes étroites du plan de masse (fig. (6.1 (b))). Tous les conducteurs sont placés du même côté du substrat et sont donc coplanaires. Comme pour la géométrie microstrip, l'inhomogénéité du diélectrique induit une propagation d'ondes quasi - TEM. Pour le cas qui va nous intéresser spécifiquement dans la suite, la géométrie « microstrip », dans la gamme de fréquence que nous allons sondée, typiquement quelques GHz, et pour un substrat de faible épaisseur, nous pouvons considérer avec une bonne approximation que la propagation des ondes électromagnétiques est de type TEM : les lignes de champ sont alors essentiellement confinées entre le plan de masse sous le substrat et la piste conductrice à sa surface.

Des premiers tests ont été réalisés sur une géométrie de type CPW. L'existence de couplages trop importants entre le conducteur central et les plans de masses environnants nous a conduit à évoluer vers la géométrie de type microstrip. Nous allons donc considérer uniquement ce type de ligne de transmission à partir de maintenant.

6.1.1.2 Design de l'échantillon

Les mesures de réflectométrie que nous allons décrire par la suite nécessitent l'intégration d'un film de a-Nb_xSi_{1-x} au sein de la ligne de transmission microstrip, au niveau de la piste conductrice centrale (fig. (6.2)). Nous allons préciser dans ce paragraphe les contraintes que nous avons dû considérer pour le design des échantillons.

Choix du substrat Pour nos échantillons, nous avons choisi un substrat de saphir. Nous avons privilégié ce matériau aux céramiques de type TMM, car même si celles-ci présentent de bonnes caractéristiques micro-ondes, avec en particulier une faible absorption à haute fréquence, elles ne permettent pas une bonne thermalisation de l'échantillon à basse température ; par ailleurs, leur forte rugosité de surface rend leur utilisation prohibitive pour l'étude de films minces considérée dans ce travail.

Dimensions de la microstrip L'impédance caractéristique Z_0 de la ligne de transmission est fonction de la largeur du conducteur central W, de l'épaisseur h du substrat et de sa

constante diélectrique ϵ_r[1] (fig.(6.2)).

Afin d'obtenir une impédance caractéristique $Z_0 = 50\ \Omega$, nous avons déterminé les dimensions optimales de la microstrip en fonction de l'épaisseur h du substrat de saphir, par l'utilisation du logiciel de modélisation micro-ondes *Sonnet*. Pour un substrat d'épaisseur h =1 mm, nous déterminons ainsi une largeur de la piste $W = 800\ \mu$m, et pour $h = 500\ \mu$m, $W = 400\ \mu$m.

Les premiers échantillons ont été réalisés avec un substrat d'épaisseur h =1 mm. Afin de minimiser l'absorption de l'onde électromagnétique par le substrat diélectrique et de mieux confiner les lignes de champ, nous avons avons ensuite réduit son épaisseur à h =500 μm. Les quatre échantillons de la série STRF (tab. (6.1)) que nous allons considérer dans la suite sont donc définis par une piste centrale de 400 μm de largeur.

Intégration et géométrie du film de a-Nb$_x$Si$_{1-x}$ Comme nous le verrons dans la suite, l'échantillon mesuré en réflexion doit terminer la ligne de transmission. Les contraintes de fabrication par lithographie imposent cependant une longueur finie entre le bord du substrat et le film de a-Nb$_x$Si$_{1-x}$ déposé. Nous avons choisi une longueur de 1500 μm pour pouvoir confortablement connecter le bord de la ligne conductrice à la masse du porte-échantillon, par micro-soudure (fig. (6.3)).

La piste conductrice de la microstrip est fabriquée en or. Afin d'éviter la diffusion de l'or dans le film de a-Nb$_x$Si$_{1-x}$, il est nécessaire d'intercaler une électrode métallique entre le film et la piste en or. Le matériau choisit doit être bon conducteur pour ne pas absorber le signal micro-onde, non-oxydable pour que le contact Métal/NbSi soit ohmique, non-supraconducteur et non-magnétique pour que sa réponse ne perturbe pas la réponse du dispositif de mesure à basse température, et lors d'éventuelles mesures en champ magnétique. Ces contacts métalliques ont donc été synthétisés en platine (Pt). La géométrie de ces échantillons est représentée sur la figure (6.3). Le recouvrement Pt/NbSi est représenté plus précisément sur la figure (6.4).

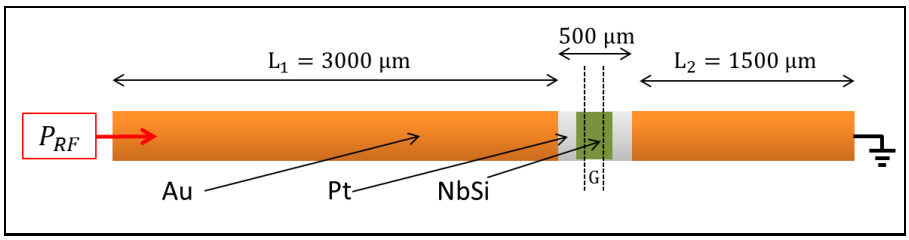

Figure 6.3 – Représentation schématique de la piste conductrice de la microstrip, avec le film de Nb$_x$Si$_{1-x}$ (vue du dessus).

Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, la méthode de calibration que nous avons développée nécessite une bonne sensibilité du système de mesure lorsque l'échantillon est à l'état normal. Par ailleurs, pour éviter des sauts de phase trop abrupts qui pourraient entacher la mesure d'une incertitude rédhibitoire, nous avons fait en sorte que l'échantillon ne dépasse jamais l'impédance de 50 Ω, qui représente un point singulier pour les mesures de

[1] Dans la limite où l'épaisseur t du conducteur est bien inférieure à l'épaisseur h du substrat, nous pouvons négliger cette longueur t dans la détermination de l'impédance caractéristique.

reflectométrie (cf sect. (6.2.1.2)). En conséquence, nous avons cherché à adapter l'impédance de l'échantillon à l'état normal au plus proche de l'impédance caractéristiques $Z_0 = 50\ \Omega$, par valeurs inférieures.

La géométrie microstrip choisie est particulièrement appropriée pour une telle adaptation d'impédance, puisque les dimensions de la ligne de transmission et du film de Nb_xSi_{1-x} peuvent être précisément ajustées en fonction de la résistivité du film.

Pour respecter cette condition d'adaptation d'impédance, la forte résistivité des films minces de a-Nb_xSi_{1-x} (chap. (3)) impose un rapport d'aspect $L/l \ll 1$, où L et l sont respectivement la longueur et la largeur du film. La largeur du film étant par ailleurs limitée par celle de la ligne microstrip, nous avons optimisé ce rapport d'aspect en modifiant l'espacement G entre les électrodes de platine, qui permet de modifier la longueur totale L du film de a-Nb_xSi_{1-x} (fig. (6.4))[2].

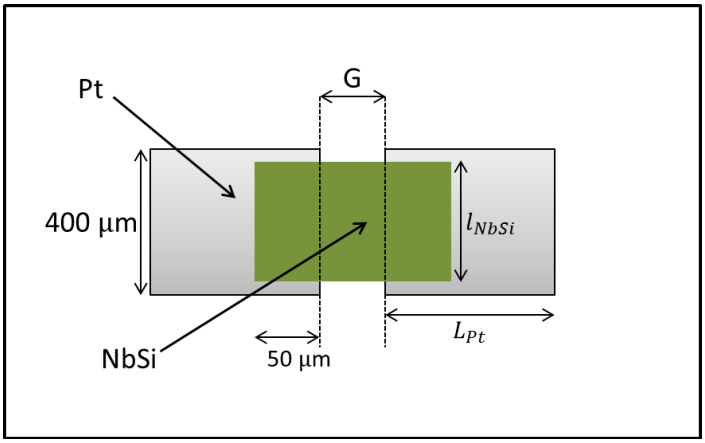

Figure 6.4 – Représentation schématique de la piste conductrice de la microstrip (vue du dessus).

Pour les différents échantillons de la série STRF étudiés lors de cette thèse, les caractéristiques géométriques correspondant à la figure (6.4) sont résumées dans le tableau (6.1).

Échantillon	L_{Pt} (μm)	G (μm)	l_{NbSi} (μm)
STRF 24	185	30	385
STRF 32	190	20	385
STRF 31	195	10	385
STRF 35	195	10	385

Table 6.1 – Dimensions des échantillons de la série STRF.

Les échantillons sont ensuite montés dans un porte-échantillon en cuivre fermé, et reliés par un connecteur de type SMA au circuit de mesure micro-onde. L'âme du connecteur est micro-soudée à l'une des extrémités de la ligne microstrip par plusieurs fils d'or de 25 μm, pour limiter la contribution de l'inductance géométrique des fils. L'autre extrémité est connectée au porte-échantillon en cuivre de la même manière.

[2]La longueur totale L du film de a-NbSi correspond au gap G plus 100 μm puisque nous avons choisi d'avoir 50 μm de recouvrement entre les électrodes de Pt et le film de a-NbSi.

6.1.2 Fabrication des échantillons

Les échantillons pour les mesures micro-ondes ont été fabriqués à la Centrale Technologique Universitaire de l'IEF pour les étapes de structuration et au CSNSM pour celles de dépôt de couches minces.

L'espacement G entre les deux contacts de platine, de l'ordre de la dizaine de microns, ne permet pas l'utilisation de masques mécaniques (fig. (6.3)). Les étapes de structuration ont donc été réalisées par lithographie optique.

Après un rappel des principes de photolithographie, nous allons décrire les grandes étapes de fabrication de ces échantillons. Les paramètres de ce procédé sont détaillés en annexe.

6.1.2.1 Techniques de structuration par lithographie optique

Lithographie optique

Après l'enrésinement du substrat avec une résine photosensible, une insolation UV à travers un masque modifie sélectivement la solubilité de la résine dans un développeur associé[3]. Le développement en solution humide permet ainsi la révélation du motif.

Une fois le motif transféré du masque à la résine, deux techniques nous permettent le transfert du motif de la résine vers un film métallique : le lift-off et la gravure. Le principe de chacune de ces deux techniques est résumé schématiquement sur la figure (6.5).

Lift-off

Une première possibilité consiste à lithographier une résine déposée directement sur le substrat, puis à évaporer une couche métallique sur la résine préalablement développée. La dissolution de la résine par voie humide supprime alors le métal au niveau des zones où la résine subsistait après développement.

Gravure

Un procédé de gravure débute par le dépôt du film métallique. La lithographie du motif à transférer permet une protection sélective du métal. Une gravure physique ou chimique permet l'attaque du métal non protégé, révélant ainsi le motif initial.

6.1.2.2 Étapes de fabrication pour la géométrie microstrip

Étape 1 : Plan de masse La première étape de fabrication consiste à déposer, sur l'une des faces du substrat de saphir[4], un film d'or (200 nm) avec une sous-couche d'accroche de titane (2 nm). Cette couche d'or constitue le plan de masse métallique de la géométrie microstrip.

Étape 2 : Contacts en platine Sur la face opposée, nous évaporons un film de platine (25 nm), avec une sous-couche d'accroche en titane (2 nm). Le film de platine est d'abord lithographié puis gravé. La gravure du platine par voie humide étant très difficile, nous avons

[3]Pour une résine positive, l'insolation rend soluble les parties insolées, formant ainsi une image positive du masque dans la résine. Pour une résine négative, c'est l'inverse.

[4]Substrat poli optique, de dimensions latérales $5 \times 7mm^2$ et d'épaisseurs 0.5 mm.

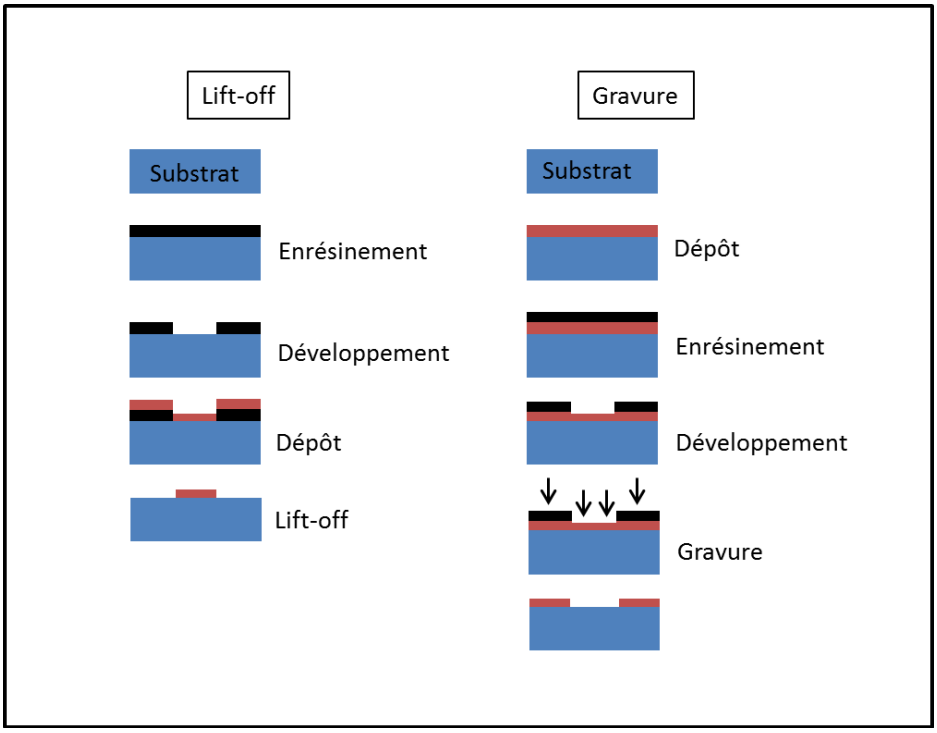

Figure 6.5 – Principe de structuration par lift-off et par gravure.

choisie une technique de gravure physique par IBE (Ion Beam Etching). Cette technique, utilisant un faisceau d'ions énergétiques, est particulièrement adaptée pour la gravure des métaux nobles peu réactifs tels que le platine. Le réglage de l'angle d'incidence du faisceau permet d'optimiser l'inclinaison des bords du film de Pt pour éviter les problèmes de contacts électriques avec le film de a-Nb_xSi_{1-x}[5].

La persistance de résine à l'interface Pt/NbSi pouvant être problématique pour nos mesures haute fréquence (capacités parasites, etc.), l'élimination de toute la résine après l'étape de gravure est particulièrement importante. Pour ce faire, nous avons associé une approche chimique par voie humide, avec la dissociation de la résine par un « resist remover », à une approche physique par un décapage via un plasma d'oxygène.

Étape 3 : Ligne en or Dans le prolongement des contacts en Pt, nous déposons une piste en or (200 nm) avec sous-couche d'accroche en titane (2 nm), de largeur 400 μm, structurée par la technique de lift-off.

Étape 4 : Film de a-Nb_xSi_{1-x} La structuration du film de a-Nb_xSi_{1-x} est réalisée par lift-off. L'évaporation du film de a-Nb_xSi_{1-x} suit le même protocole que celui décrit pour les échantillons de transport basse fréquence (chap. (2)). Comme pour ces échantillons, le film de a-Nb_xSi_{1-x} est protégé de l'oxydation par une couche de SiO (25 nm).

[5] Nous avons choisi un angle de 45° entre le bord du film de Pt et le substrat.

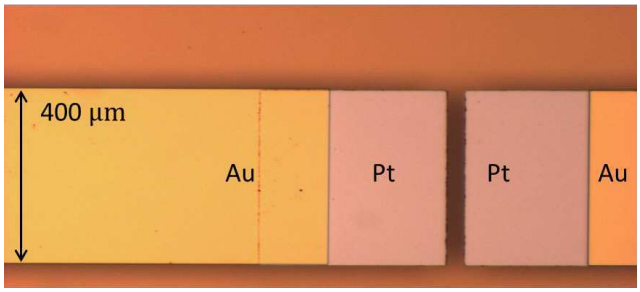

Figure 6.6 – Image optique après la gravure IBE du platine (étape 2) et le lift-off de l'or (étape 3).

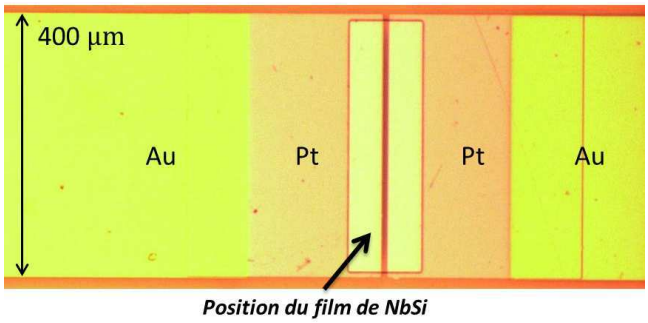

Figure 6.7 – Image optique de l'échantillon après la lithographie du NbSi (étape 4), avant le dépôt du film.

6.2 Réflectométrie micro-ondes à très basse température

La réponse électrodynamique d'un système, dans la gamme des micro-ondes, peut être obtenue par l'utilisation de deux types de techniques, dites résonantes ou non-résonantes. Si les techniques résonantes sont très sensibles, elles ne sondent toutefois le système qu'à des fréquences discrètes.

L'étude de la dynamique des films minces de a-NbSi à l'approche de la TSI que nous voulons mener nécessite de connaître la réponse du système sur une large gamme de fréquence. Pour cela, nous nous sommes donc intéressés aux techniques de mesure large bande non-résonantes.

6.2.1 Réflexion vs. Transmission

Différentes approches peuvent être considérées afin de déterminer la réponse électrodynamique d'un solide sur une large gamme fréquence. Dans la gamme de fréquence allant de quelques MHz à environ 50 GHz, la mesure de la désadaptation d'impédance d'un échantillon au sein d'une ligne de transmission permet une telle étude. Nous allons préciser les différentes configurations possibles.

6.2.1.1 Principes de mesure

a) Réflexion Une première configuration consiste à terminer la ligne de transmission, d'impédance caractéristique Z_0, par un échantillon d'impédance Z, supposé ponctuel ($L \ll \lambda$),

lui-même connecté à la masse (fig. (6.8 a)).

La désadaptation d'impédance lorsque $Z \neq Z_0$ induit une onde réfléchie. Cette réflexion est quantifiée par le coefficient complexe de réflexion Γ, qui traduit à la fois l'atténuation et le déphasage de l'onde électromagnétique, induits par la condition aux limites fixée par l'échantillon. Γ est donné par :

$$\Gamma(Z) = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \tag{6.1}$$

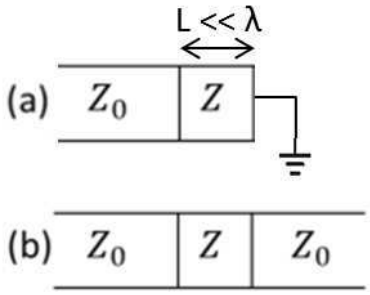

Figure 6.8 – Représentation schématique des deux configurations de mesure large bande : mesure en reflexion (a) ou en transmission (b) d'un échantillon d'impédance Z au sein d'une ligne de transmission d'impédance Z_0.

b) Transmission Une autre possibilité consiste à inclure l'échantillon au sein de la ligne de transmission et à mesurer la transmission de l'onde transmise par l'échantillon (fig. (6.8 b)). Le coefficient complexe de transmission T est relié à l'impédance Z de l'échantillon par l'équation :

$$T(Z) = \frac{2Z}{Z + Z_0} \tag{6.2}$$

6.2.1.2 Sensibilité

L'évolution de ces deux coefficients T et Γ en décibels est représentée en fonction de l'impédance Z de l'échantillon sur la figure (6.9), pour une impédance caractéristique $Z_0 = 50$ Ω.

Une faible variation d'impédance autour de Z = 50 Ω conduit à une importante variation de Γ, de même pour T à proximité de Z = 0 Ω. Chacune de ces deux techniques de mesure présente donc un maximum de sensibilité, pour Z = 0 Ω et Z = 50 Ω, respectivement pour la transmission et la réflexion.

Nous voulions considérer dans un premier temps les propriétés dynamique autour de la transition supraconductrice, dans le but de sonder notamment les différents régimes de fluctuations supraconductrices (paraconductivité, etc.). Nous avons donc opté pour des mesures en réflexion, afin de maximiser la sensibilité autour de l'état normal de nos échantillons.

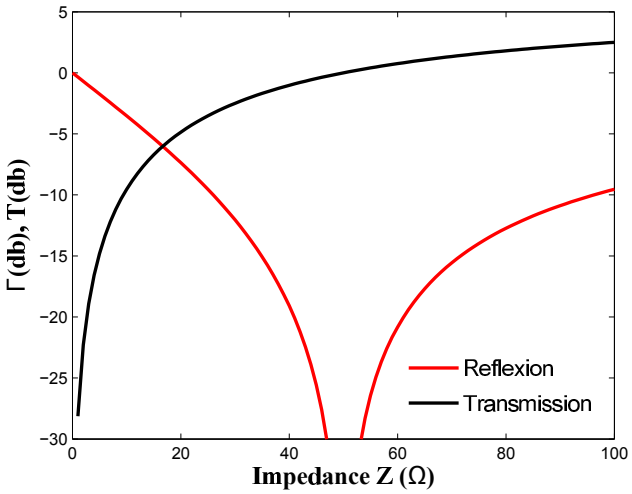

Figure 6.9 – Évolution des coefficients de réflexion (rouge) et de transmission (noir) en decibels en fonction de l'impédance Z. L'approche des singularités respectivement en Z = 50 Ω et Z = 0, définit le maximum de sensibilité de chacune de ces méthodes de mesure.

6.2.2 Dispositifs de mesure micro-ondes à basse température

Afin de pouvoir mesurer la dynamique de films de a-Nb_xSi_{1-x} à très basses températures, nous avons installé un dispositif de réflectométrie au sein d'un cryostat à dilution (T $\sim$ 20 mK).

Nous allons préciser les différentes contraintes que nous avons dû prendre en compte pour la mise en place d'un tel dispositif. Nous présenterons ensuite les différents éléments de ce montage, et leur caractérisation micro-ondes à température ambiante.

6.2.2.1 Contraintes expérimentales

Thermalisation des lignes micro-ondes Le câblage de lignes micro-ondes nécessite un contrôle particulier de l'apport de chaleur dû à ces lignes. En plus de l'apport de chaleur par conduction thermique via l'âme et la gaine de ces câbles coaxiaux, nous devons également considérer le rayonnement dû à la propagation des photons micro-ondes le long de ces câbles.

L'apport de chaleur par conduction a été minimisé par une détermination de la longueur appropriée des câbles coaxiaux entre chaque étage du cryostat. Nous avons veillé à l'optimisation du compromis entre cet apport de chaleur et l'atténuation du signal par les câbles coaxiaux, dépendante de la longueur de ceux-ci[6].

Pour la bande passante de notre dispositif (quelques GHz), le bruit thermique (T = 300 K) associé à des photons micro-ondes sur une résistance de 50 Ω est de $\Delta U \sim 10\ \mu V$, du même ordre de grandeur que l'excitation typique de nos échantillons dans le régime ohmique. Il est donc essentiel de thermaliser ces photons aux différents étages du cryostat, afin d'atténuer le rayonnement thermique provenant des étages hautes températures du cryostat. Pour cela, nous avons disposé le long de la ligne d'excitation - à chaque étage du cryostat - plusieurs

[6]Comme nous le verrons par la suite, l'atténuation typique de ces câbles est de l'ordre de -1 dB/m/GHz.

atténuateurs réduisant le bruit thermique des photons incidents, en réinjectant celui-ci à la température de thermalisation (fig. (6.15)).

Réflectométrie par coupleur directionnel L'atténuation du signal d'excitation est incompatible avec la détection du faible signal réfléchi par l'échantillon. Nous avons donc utilisé deux lignes micro-ondes distinctes, l'une pour l'excitation - que l'on peut donc atténuer autant que nécessaire - et l'autre pour la détection du signal réfléchi par l'échantillon, que l'on peut par conséquent amplifier.

Comme nous mesurons le signal réfléchi et non transmis par l'échantillon, l'utilisation d'un coupleur directionnel est nécessaire pour coupler ces deux lignes micro-ondes à l'échantillon. Un coupleur directionnel est représenté schématiquement sur la figure (6.10).

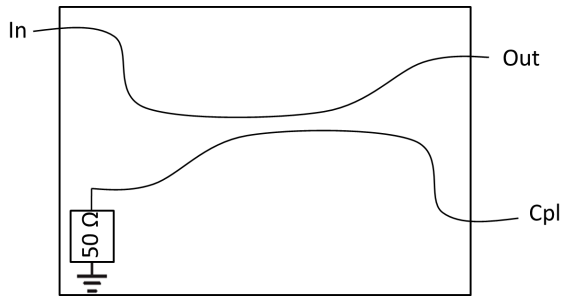

Figure 6.10 – Représentation schématique d'un coupleur directionnel.

Un coupleur directionnel est un système passif à quatre ports, composé de deux lignes de transmission couplées capacitivement : une ligne principale (ports In et Out) et une ligne secondaire (un port Cpl connecté à une résistance interne de 50 Ω) (fig. (6.10)). Il permet le couplage d'une puissance incidente au port In jusqu'aux ports Out et Cpl, respectivement via les facteurs de couplage I et C définis par :

$$C = -10\log\frac{P_{Cpl}}{P_{In}},\ I = -10\log\frac{P_{Out}}{P_{In}},\ D = -10\log\frac{P_{Cpl}}{P_{Out}} \tag{6.3}$$

où P_i est la puissance au port i. D traduit le couplage entre les ports Out et Cpl.

Le coupleur utilisé[7] pour les mesures que nous allons présenter dans la suite est caractérisé par une bande passante [0.1 MHz - 2 GHz]. La fréquence maximale de la bande passante de ce coupleur détermine la fréquence maximale de nos mesures. Nous avons choisi ce coupleur, travaillant à relativement basse fréquence, pour pouvoir établir une comparaison avec les mesures obtenues simultanément par la détection synchrone à très basse fréquence.

Pour le montage que nous allons décrire dans le paragraphe suivant, la ligne d'excitation, fortement atténuée, est connectée au port Cpl, l'échantillon au port In et la ligne de détection au port Out.

[7]Référence *minicircuit ZFDC-20-5+*. Pour ce coupleur, l'atténuation entre In et Out est de l'ordre de 1 dB, le couplage C entre In et Cpl de l'ordre de - 20 dB et $D \simeq$ - 30 dB.

Amplification Afin d'amplifier le signal réfléchi par l'échantillon, nous utilisons un amplificateur sur la ligne de détection.

Nous avons été contraint d'installer l'amplificateur cryogénique choisi pour ces mesures, à l'étage T $\simeq$ 70 K du cryostat, dit « Helium free ». En effet, l'amplificateur de type « high electron mobility transistor » (HEMT)[8] dissipe une puissance (P $\simeq$ 500 mW) supérieure à la puissance frigorifique disponible à l'étage T = 4 K de ce cryostat (P $\simeq$ 300 mW).

Il existe des amplificateurs cryogéniques dissipant moins, mais celui-ci présente une bonne stabilité du gain quelque soit l'impédance branchée en entrée. Cette caractéristique est particulièrement importante pour nos mesures de supraconducteurs, où la transition entre l'état normal et l'état supraconducteur désadapte fortement le dispositif de mesure.

Nous avons choisi de ne pas associer de circulateur à cet amplificateur. Si un circulateur permettrait de rejeter le bruit de l'amplificateur sur une résistance de 50 Ω et non sur l'échantillon, il nécessite un bon écrantage magnétique - difficile à réaliser - lors d'éventuelles mesures en champ magnétique. Par ailleurs, nous avons cherché à limiter le nombre d'éléments micro-onde impliqués dans le dispositif, chaque nouvel élément introduit pouvant être la cause d'une nouvelle désadaptation d'impédance, et donc être à l'origine d'ondes stationnaires.

Nous pouvons toutefois être confiant sur le fait que ce bruit réinjecté par l'amplificateur sur l'échantillon ne perturbe pas nos mesures :

- Nous avons estimé la puissance micro-onde injectée sur l'échantillon par l'amplificateur. Pour la bande passante de l'amplificateur, la puissance associée au bruit thermique (T $\sim$ 20 K[9]) sur une résistance de 50 Ω est de l'ordre de -80 dBm.

  Par ailleurs, la figure (6.11) montre l'évolution de la partie réelle de l'impédance $Re(Z)$[10] en fonction de la puissance micro-onde incidente sur l'échantillon, mesurée à l'état normal (T = 450 mK), pour l'échantillon STRF 24, l'amplificateur en fonctionnement. Nous voyons que le seuil de linéarité en puissance, autour de -80 dBm, est du même ordre de grandeur que notre estimation de la puissance associée au bruit de l'amplificateur. Si on considère que cette estimation a été obtenue sans prendre en compte l'atténuation des câbles et la désadaptation d'impédance de l'échantillon[11], il est donc raisonnable de penser que la puissance apportée par le bruit de l'amplificateur n'est pas suffisante pour induire un chauffage de nos échantillons.

- Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, les caractéristiques de transport à basse fréquence des échantillons STRF, mesurées en présence de cet amplificateur, sont cohérentes avec ce qui est attendu pour des films de a-Nb_xSi_{1-x} de même composition et épaisseur.

- Lors d'une expérience dédiée, nous avons mesuré les $R(T)$ à basse fréquence des échantillons STRF, sans l'amplificateur micro-ondes. Pour l'échantillon STRF 35, la com-

[8] Référence *Miteq AFS4-00100800-22-CR-4*. La bande passante de cet amplificateur est de [100 MHz - 8 GHz], son gain en tension de + 40 dB, et sa température de bruit T$\simeq 60K$.

[9] Il est usuel de considéré une température des photons émis par l'amplificateur de l'ordre de T $\sim$ 1/3 T_N, où T_N est la température de bruit de l'amplificateur.

[10] Pour cette caractérisation, $Re(Z)$ correspond à la valeur moyenne sur un spectre en fréquence.

[11] L'impédance de échantillon à l'état normal étant inférieure à 50 Ω, une partie de la puissance incidente est réfléchie par l'échantillon. Négliger cette désadaptation d'impédance revient donc à surestimer l'absorption des photons incidents sur l'échantillon.

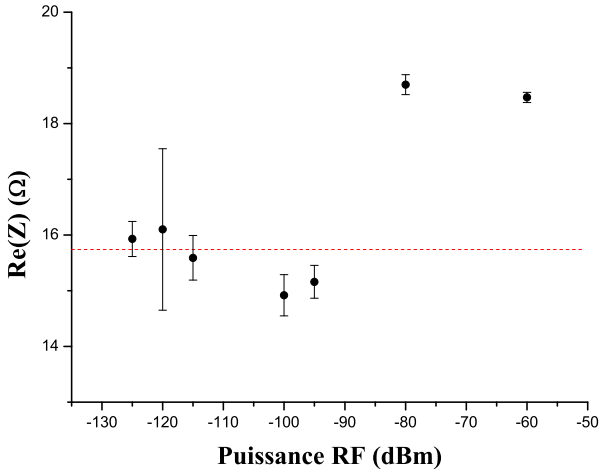

Figure 6.11 – Évolution de la partie réelle de l'impédance $Re(Z)$ en fonction de la puissance micro-ondes, pour l'échantillon STRF 24 à l'état normal (T=450 mK). La ligne pointillée rouge correspond à la résistance mesurée à 77 Hz sans puissance micro-onde injectée, i.e. correspondant au régime ohmique dans lequel nous nous sommes placés.

paraison du $R(T)$ - avec et sans amplificateur - est représentée sur la figure (6.12). Les différences observées entre ces deux mesures effectuées à quelques mois d'écart, et notamment une T_c accrue lors de la mesure *avec* amplificateur, ne peuvent s'expliquer simplement par un chauffage. En revanche, l'augmentation de la résistance normale R_n et la réduction de la température critique T_c observée lors de la seconde mesure sont cohérentes avec une évolution de l'échantillon avec le temps[12]. Nous pensons donc qu'un chauffage important induit par le bruit de l'amplificateur serait visible, et est donc peu probable.

- Enfin, nous verrons dans le chapitre suivant que les caractéristiques de transport à basses fréquences et à hautes fréquences forment un ensemble cohérent, notamment pour ce qui est de la supraconductivité.

6.2.2.2 Cryogénie

Les premières mesures ont été effectuées au Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay au sein de l'équipe « les Nanostructures à la Nanoseconde », dans un cryostat à dilution utilisant un bain d'hélium liquide. Le dispositif de mesure micro-ondes a ensuite été déplacé au CSNSM dans un cryostat à dilution sans bain d'hélium liquide, utilisant un tube pulsé comme source froide à T= 4 K (fig. 6.13). L'essentiel des mesures présentées ont donc été acquises avec l'installation du CSNSM.

Nous allons préciser le fonctionnement spécifique de ce cryostat, dit « Helium free » (fig. (6.13)), mais mentionnons d'emblée que l'absence de bain d'hélium liquide est particulièrement favorable aux mesures micro-ondes. Comme nous allons le voir par la suite, les

[12]Cette évolution n'a pas été observée pour les échantillons couramment utilisés pour les mesures de transport à basse fréquence. Nous l'avons attribuée à l'extrême sensibilité des échantillons "micro-ondes", du fait de leur taille micrométrique.

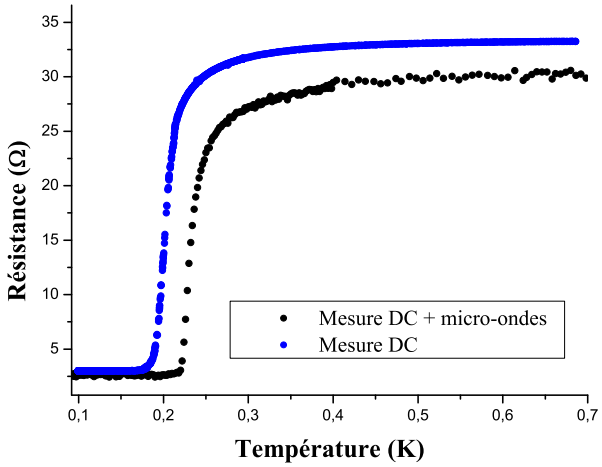

Figure 6.12 – Évolution en température de la résistance (basse fréquence) de l'échantillon STRF 35, mesuré simultanément avec la réponse micro-ondes (juin 2013) et lors d'une mesure à basse fréquence dédiée (septembre 2013). N.B. : La résistance résiduelle, de l'ordre de 2.5 Ω est due au fait que, dans nos mesures, la résistance n'est mesurée à quatre points par la détection synchrone qu'à partir du "T" de polarisation (fig. (6.15)).

mesures d'impédance sont très sensibles à tout changement du dispositif de mesure (température, serrage, etc.). Ce cryostat permet de s'affranchir en particulier du problème de niveau d'hélium, qui modifie l'atténuation des câbles. L'utilisation d'un cryostat « Helium free » est donc particulièrement adaptée à ce type de mesures.

Pré-refroidissement La principale caractéristique de ce cryostat est l'absence de bain d'hélium liquide, remplacé par un tube pulsé (« Pulse Tube Refrigerator » (PTR)). Le PTR fonctionne sur un principe de refroidissement thermo-acoustique, où un gaz ^{4}He est refroidi en suivant un cycle de Stirling. Le PTR utilise deux étages, l'un travaillant à T$\sim$ 60 K et l'autre à T$\sim$ 4 K.

Afin de diminuer le temps de refroidissement, le pré-refroidissement à T$\sim$ 4 K est effectué avec une circulation rapide du mélange ^{4}He/^{3}He, sans passer par l'impédance d'injection. Cette technique est particulièrement utile pour les cryostats sans bain d'Hélium, où le circuit de dilution n'est pas thermalisé à la source froide du PTR par un gaz d'échange. Pour cela, un circuit de pompage parallèle, appelé double bouilleur, permet de court-circuiter l'impédance d'injection et donc d'accélérer le temps de pré-refroidissement du cryostat. L'étude du fonctionnement détaillé de ce double bouilleur, schématisé sur la figure (6.14), n'est pas le sujet de ce travail et est détaillé par ailleurs dans la référence [Pari, 1990].

Régime de dilution Une fois les étages basse température du circuit de dilution (1 K et 20 mK) thermalisés à T$\sim$ 4 K, la circulation du mélange passe de ce mode "rapide" à un mode "normal", où le mélange est injecté par l'impédance principale et pompé via le bouilleur, comme habituellement dans un cryostat à dilution standard. Le double bouilleur est également pompé afin d'éviter la remontée du film de Rollin dans les tuyaux correspondants.

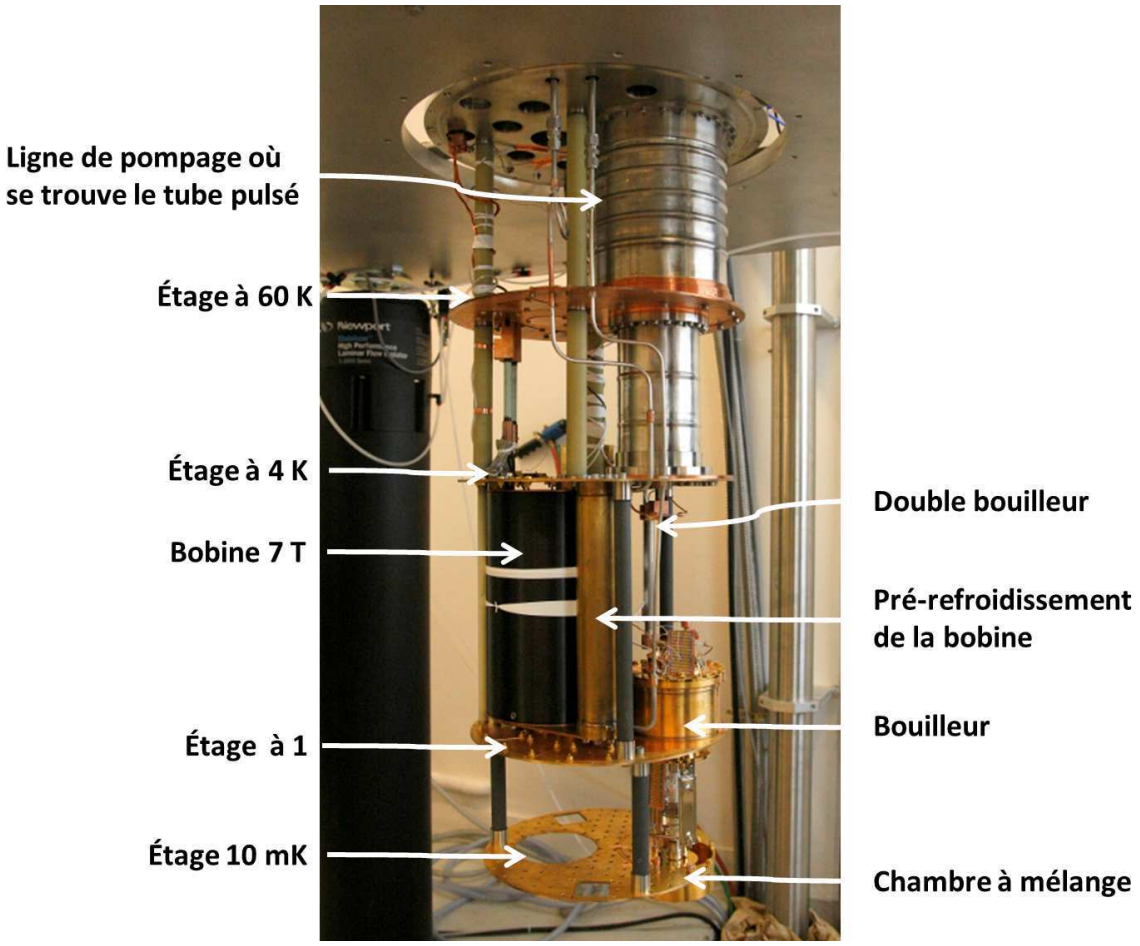

Figure 6.13 – Photographie du cryostat, dit « Helium Free », par Anne-Sophie Pari.

L'unité de dilution fonctionne alors de la même manière que pour un cryostat à dilution disposant d'un bain d'hélium liquide. Nous en avons décrit le principe de fonctionnement dans le chapitre (2).

6.2.2.3 Installation et caractérisation du montage

Les contraintes expérimentales que nous avons précédemment décrites nous ont conduits à mettre en place le dispositif de mesure, dont une représentation schématique est donnée sur la figure (6.15).

Câblage La circuiterie micro-ondes a été réalisée à partir de câbles coaxiaux[13]. Pour une longueur de câble typique de 50 cm, la figure (6.16) montre l'atténuation de la transmission en fonction de la fréquence. On retiendra la valeur typique de -1.3 dB/m à 1 GHz. Par ailleurs, nous pouvons remarquer la dépendance de la transmission avec la fréquence du type $T_{dB} \simeq a - b\sqrt{f}$, comme attendue pour l'effet de peau. Notons que cette atténuation diminue avec la température, ce qui a notamment pour effet de modifier la réponse fréquentielle du

[13] Conducteurs interne (diamètre 2.19 mm) et externe en « silver plated stainless steel ».

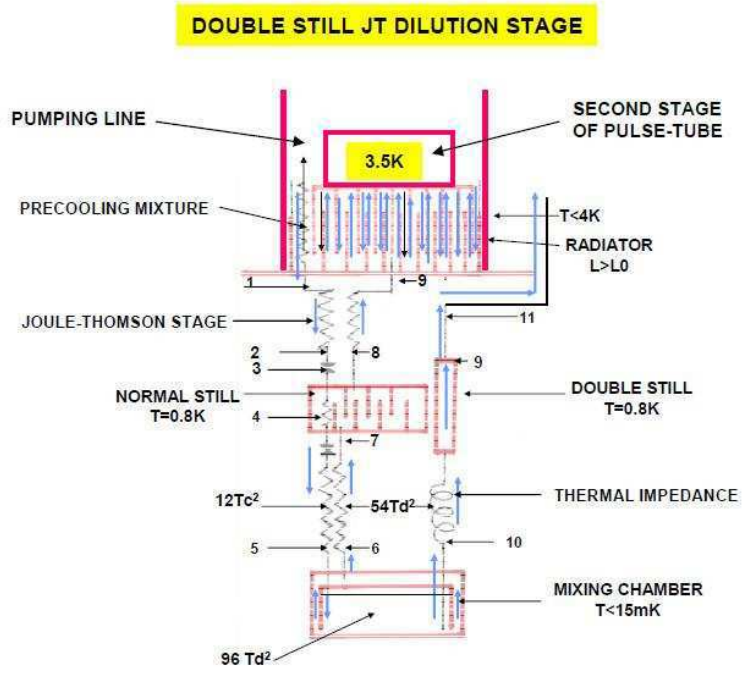

Figure 6.14 – Schéma de fonctionnement du cryostat Helium Free [Pari, 1990].

dispositif à basse température.

Comme nous l'avons dit précédemment, la circuiterie micro-onde se décompose en deux lignes, l'une servant à l'injection de la puissance micro-onde et l'autre à la détection du signal réfléchi par l'échantillon. Ces deux lignes de mesures sont couplées à l'échantillon par un coupleur directionnel. Nous avons ajouté un « T » de polarisation sur l'étage à 20 mK afin de pouvoir mesurer simultanément l'impédance de l'échantillon à basse fréquence par une détection synchrone (f = 77 Hz).

Nous allons présenter les caractéristiques de ce dispositif, telles que mesurées par l'analyseur de réseau vectoriel (VNA) *Rhodes & Schwartz ZVB*[14], utilisé pour ces mesures.

Ligne d'injection La réponse en transmission de la ligne d'injection, définie entre le port d'excitation du VNA et la position de l'échantillon (fig. 6.15), en fonction de la fréquence est donnée en amplitude sur la figure (6.17) et en phase sur la figure (6.18).

À basse fréquence, le signal incident est atténué de -40 dB, correspondant à la somme de l'atténuation du coupleur et des atténuateurs. À plus haute fréquence, la transmission diminue par l'effet de peau dans les câbles coaxiaux. Le déphasage dû à la propagation le long du câble est compensé par un délai $\tau \simeq 40$ ns[15], calculé par le VNA. Cette propagation prise en compte, la phase est relativement constante et faible (quelques degrés), comme attendu (fig. (6.18)).

[14]de bande passante [150 kHz - 8 GHz]. Le VNA permet de générer une onde électromagnétique micro-onde et de mesurer la réflexion de cette onde.

[15]Ce temps de propagation est cohérent avec la longueur de la ligne, de plusieurs mètres.

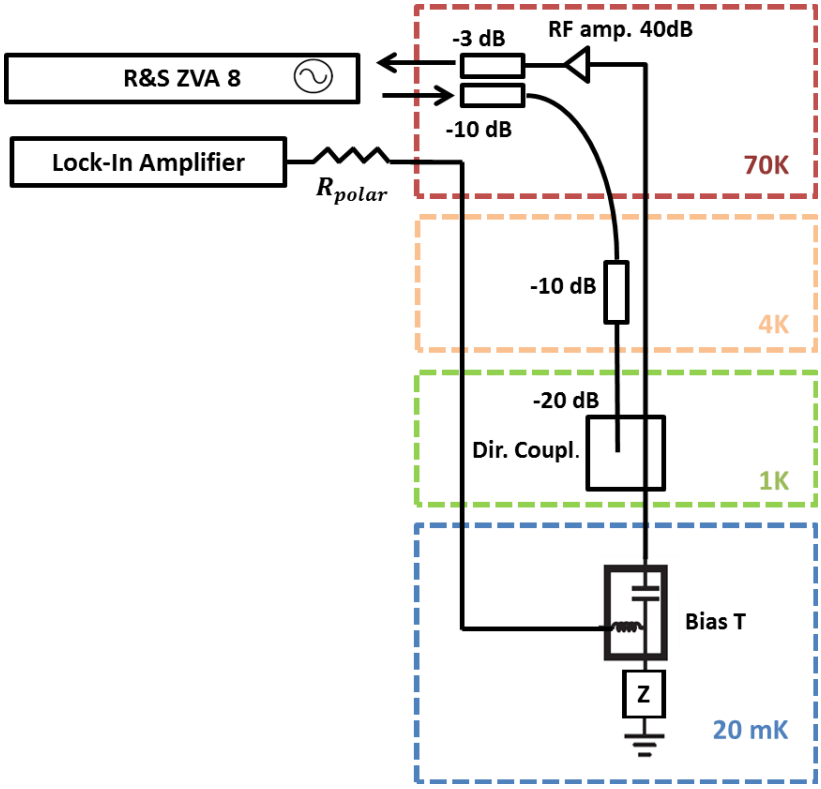

Figure 6.15 – Représentation schématique du dispositif de mesure de reflectométrie micro-onde et de transport à basse fréquence, installé au sein d'un cryostat Hélium free.

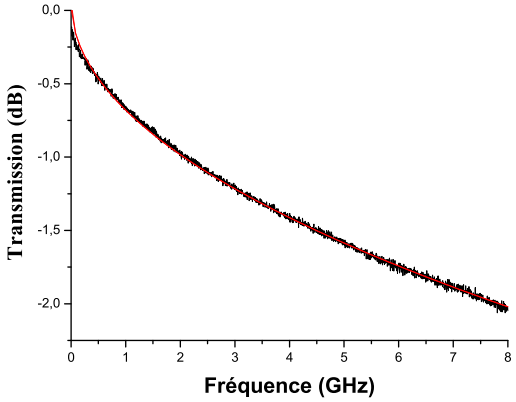

Figure 6.16 – Évolution de l'amplitude de la transmission (dB) en fonction de la fréquence pour le câble coaxial entre les étages 4 K et 1 K (L=50 cm). La courbe rouge correspond à un ajustement $T_{dB} \simeq a - b\sqrt{f}$.

Cette première caractérisation permet de déterminer la puissance micro-onde incidente sur l'échantillon, connaissant la puissance délivrée par le VNA. Par exemple, pour une puissance d'excitation typique à l'entrée du VNA de P = -80 dBm[16], l'excitation au niveau de l'échan-

[16]Cette unité correspond au rapport en décibels entre la puissance mesurée et un milliwatt, calculée à

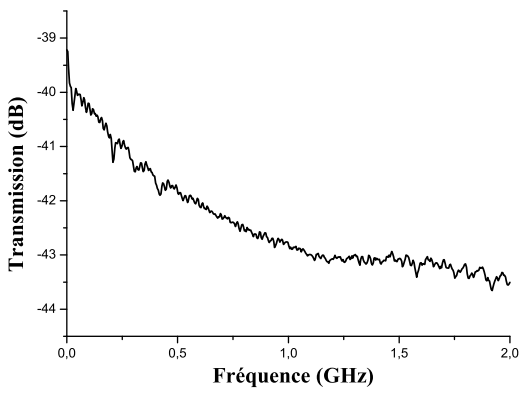

Figure 6.17 – Évolution de l'amplitude de la transmission (dB) en fonction de la fréquence sur la ligne d'injection du signal micro-onde, à température ambiante.

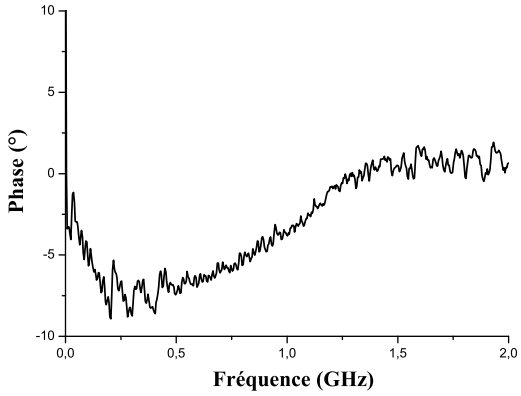

Figure 6.18 – Évolution de la phase (°) du coefficient de transmission en fonction de la fréquence sur la ligne d'injection du signal micro-onde, à température ambiante, une fois le déphasage induit par la propagation pris en compte.

tillon sera P $\sim$ -120 dBm, soit une puissance P = 1 fW. Pour chaque échantillon, nous avons vérifié que nous étions bien dans le régime ohmique en variant cette puissance d'excitation (fig. (6.11)).

Ligne de détection La réponse de la ligne de détection, définie entre la position de l'échantillon et le port de détection du VNA (fig. 6.15), en fonction de la fréquence est représentée sur les figures (6.19) et (6.20), respectivement pour l'amplitude et la phase de la transmission.

Afin de protéger l'amplificateur cryogénique et le VNA d'une trop forte puissance à l'entrée, nous avons - spécifiquement pour ce test - utilisé un montage avec une série d'atténuateurs, qui diffère du montage utilisé pour les mesures à basse température. Nous ne discuterons donc pas la valeur précise de l'atténuation ainsi mesurée.

La coupure à basse fréquence (f $\sim$ 100 MHz) qui est visible sur l'amplitude de la transmission est introduite par la bande passante de l'amplificateur. L'évolution de la phase de la transmission présente également une coupure, à plus haute fréquence (f $\sim$ 250 MHz) qui est également due à la réponse de l'amplificateur. Nous considérons dans la suite les mesures sur la bande passante [250 MHz - 2 GHz], où la phase est relativement constante ($\pm$ 5°).

Réflexion du dispositif La figure (6.21) montre l'amplitude du coefficient de réflexion en fonction de la fréquence, lorsque le dispositif de mesure est terminé par un court-circuit, un circuit ouvert et par une résistance adaptée de 50 Ω. Pour cette dernière résistance, le signal réfléchi est bien inférieur au signal incident, comme le montre le très faible niveau de réflexion. En effet, une atténuation de -20 dB correspond à une diminution d'un facteur 10 de l'amplitude de l'onde incidente. Pour le court-circuit et le circuit-ouvert, le signal réfléchi est beaucoup plus important. La diminution du niveau de réflexion $\Gamma \sim$ à -15 dB à haute

partir de l'expression suivante : dBm = 10 $log(P_{mW})$, où P_{mW} est la puissance en milliwatt.

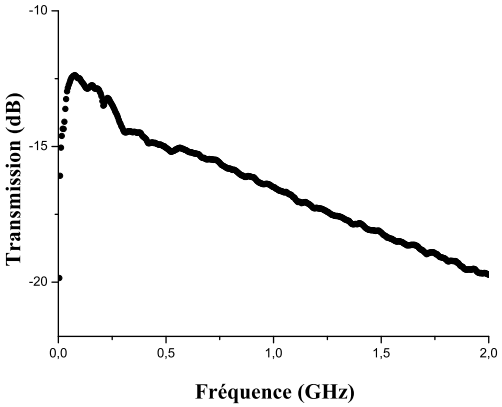

Figure 6.19 – Évolution de l'amplitude du coefficient de transmission (dB) de la ligne de détection en fonction de la fréquence, à température ambiante.

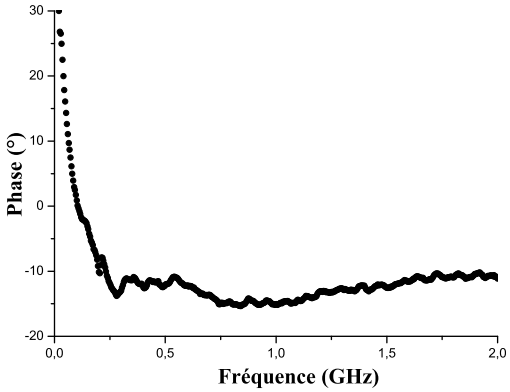

Figure 6.20 – Évolution de la phase (°) du coefficient de transmission de la ligne de détection en fonction de la fréquence, à température ambiante.

fréquence, pour ces deux mesures, est due aux pertes dans les câbles.

Pour ces trois éléments, nous observons des oscillations en fréquence de la réflexion, qui traduisent l'existence d'interférences. Ces interférences sont dues à l'existence d'ondes stationnaires, produites par des réflexions multiples dues à l'imperfection du dispositif (connecteurs imparfaits, etc.). Nous voyons également que les signaux réfléchis par le court-circuit et le circuit ouvert diffèrent d'une réflexion parfaite (0 dB), qui serait attendue pour un dispositif parfaitement adapté et sans atténuation. La procédure de calibration que nous allons décrire par la suite a pour but d'absorber ces imperfections du dispositif.

Par ailleurs, nous voyons sur la figure (6.22) que les signaux réfléchis par le court-circuit et le circuit ouvert sont en opposition de phase, comme il est attendu pour des coefficients de réflexion théoriques $\Gamma_{c.c} = -1$ et $\Gamma_o = 1$.

Comme nous l'avons vu dans cette dernière section, la réponse fréquentielle du dispositif de mesure est, en elle-même, particulièrement complexe du fait des caractéristiques des différents éléments insérés dans le circuit. Une mesure « directe » du signal réfléchi par l'échantillon ne permet donc pas une détermination absolue de la réponse de l'échantillon ainsi mesurée.

La procédure de calibration que nous avons développée vise ainsi à s'affranchir complètement de la réponse du dispositif pour obtenir, avec une bonne fiabilité, les caractéristiques électrodynamiques de l'échantillon. C'est ce que nous allons décrire dans le prochain chapitre.

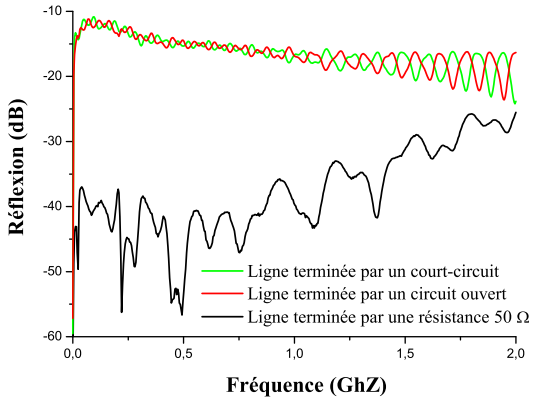

Figure 6.21 – Évolution de l'amplitude du coefficient de réflexion (dB) en fonction de la fréquence pour une résistance de 50 Ω adaptée, un circuit ouvert et un court-circuit terminant le dispositif de mesure, à température ambiante.

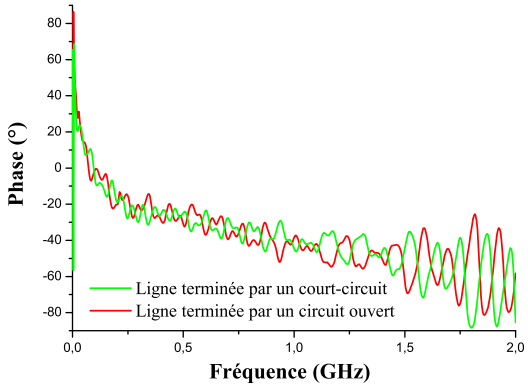

Figure 6.22 – Évolution de la phase (°) du coefficient de réflexion en fonction de la fréquence pour un circuit ouvert et un court circuit terminant le dispositif de mesure, à température ambiante, corrigée des effets de propagations.

Chapitre 7

Calibration du dispositif de mesure

Sommaire

7.1 Caractéristiques générales des échantillons 143
7.1.1 Caractéristiques de transport à basse fréquence des films de Nb_xSi_{1-x} 143
7.1.2 Effet de proximité à l'interface Pt/NbSi 144
7.1.3 Modélisation électro-cinétique des échantillons 146
7.2 Principe de la calibration 150
7.2.1 Idée générale 150
7.2.2 Modélisation du dispositif de réflectométrie 150
7.3 Calibration à température ambiante 152
7.4 Calibration à basse température 154
7.4.1 Évolution de la réponse du dispositif de mesure avec la température 154
7.4.2 Procédure de calibration « standard » 154
7.4.3 Procédure de calibration utilisant l'échantillon comme référence(s) . 155
7.5 Résultats de la calibration 160
7.5.1 Résultats pour l'échantillon STRF 35 160
7.5.2 Autres échantillons 167
7.6 Conclusions et perspectives 170
7.6.1 Conclusions 170
7.6.2 Perspectives 171

Introduction

Nous avons vu dans le chapitre précédent que l'évolution de la réponse du dispositif de mesure avec les conditions expérimentales impose que celui-ci soit préalablement calibré afin de pouvoir extraire la réponse de l'échantillon mesuré.

Établir une méthode de calibration fiable pour ces mesures de reflectométrie, sur une large gamme de fréquences et à très basse température, afin d'extraire une mesure *absolue* de l'impédance complexe du système considéré représente un défi expérimental.

Les méthodes employées jusqu'ici dans le domaine de la transition supraconducteur-isolant sont, on l'a vu, soit des méthodes sondant le système à des fréquences discrètes, ne permettant pas une détermination de la réponse électrodynamique sur une large bande de fréquence, soit des mesures micro-ondes large bande à relativement haute température (T $\sim$ 300 mK), qui ne permettent pas encore d'étudier le régime quantique ($\hbar\omega >> k_B T$) à très basse température, au voisinage de la transition supraconducteur-isolant (chap. (5)).

Dans cette thèse, nous avons tenté d'apporter une nouvelle approche, afin de pouvoir déterminer l'impédance complexe de films minces supraconducteurs, à des températures de l'ordre de la dizaine de millikelvins, sur une gamme de fréquence continue, s'étalant de 250 MHz à 2 GHz.

La méthode de calibration que nous avons développée est basée sur un ensemble d'hypothèses relatives à la réponse électrodynamique des échantillons. Nous présenterons donc tout d'abord les caractéristiques générales de transport de ces échantillons, telles que mesurées à basses fréquences. Nous détaillerons ensuite le principe et le développement de la procédure de calibration que nous avons mise au point. Nous finirons par l'application de cette calibration aux mesures réalisées lors de cette thèse.

7.1 Caractéristiques générales des échantillons

Les caractéristiques de la série d'échantillons STRF considérés dans cette partie, sont résumées dans le tableau (7.1).

Échantillon	Épaisseur (nm)	Composition x (%)	R_n (T = 4 K)	T_c (K)	$L_s(0)$ ($nH/\square$)
STRF 24	50	15	290	0.425	0.9
STRF 32	20	15	852	0.27	4.4
STRF 31	12.5	17	892	0.5	2.5
STRF 35	12.5	15	1020	0.23	6

Table 7.1 – Caractéristiques des quatre films de a-Nb_xSi_{1-x} de la série d'échantillons STRF. L'inductance cinétique $L_s(T = 0)$ est évaluée par l'équation (7.1). Comme ces échantillons sont suffisamment loin de la TSI, nous avons pris comme définition de la température critique T_c, la température pour laquelle $R_\square = R_n/2$, où R_n est la résistance par carré à l'état normal.

7.1.1 Caractéristiques de transport à basse fréquence des films de Nb_xSi_{1-x}

La figure (7.1) montre l'évolution en température de la résistance par carré $R_\square$ pour chacun de ces échantillons. À partir de ces courbes, nous avons extrait la température critique T_c et

la résistance à l'état normal R_n. Pour chacun de ces échantillons, ces valeurs sont résumées dans le tableau (7.1).

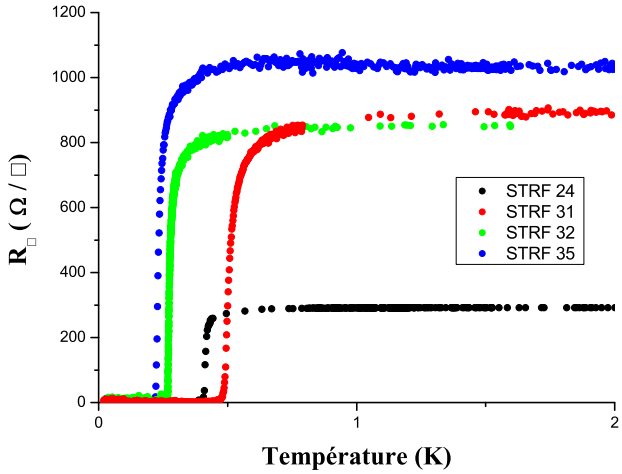

Figure 7.1 – Évolution de la résistance par carré en fonction de la température pour les 4 films de la série STRF (tab (7.1)).

Afin de vérifier la qualité de ces échantillons, nous avons comparé l'évolution de la température critique T_c en fonction de la résistance par carré R_n, avec celles des séries CKJ 1-2 et 3, précédemment mesurées au sein du groupe [Marrache-Kikuchi, 2006], de compositions respectives $x = 15\%$ et $x = 17\%$ (fig. (7.2)). L'évolution de $T_c(R_\square)$ pour les échantillons STRF 24, 32 et 35 est cohérente avec la composition nominale $x = 15\%$. Le film STRF 31 est cohérent avec une composition en niobium plus importante, que l'on peut estimer de l'ordre de $x \sim 17\%$. Les mesures de transport à basse fréquence confirment donc les compositions nominales des films.

Comme nous le verrons par la suite, la méthode de calibration développée nécessite une hypothèse sur la réponse inductive à l'état supraconducteur des échantillons mesurés. Nous avons donc évalué l'inductance cinétique par carré à température nulle $L_s(0)$ via la relation BCS, obtenue dans la limite « sale » (éq. (7.1)). Pour les échantillons de la série STRF, ces valeurs sont résumées dans le tableau (7.1).

$$L_s(0) = \frac{\hbar R_n}{\pi \Delta_0} \tag{7.1}$$

où Δ_0 est le gap supraconducteur à température nulle, donné par $\Delta_0 = 1.76\ k_B T_c$.

7.1.2 Effet de proximité à l'interface Pt/NbSi

Nous avons vu dans le chapitre précédent que les contraintes sur la synthèse des échantillons STRF ont imposé une interface métallique Pt/NbSi au sein de la ligne de transmission.

Afin de caractériser les propriétés de cette interface, notamment du point de vue de la supraconductivité du Nb_xSi_{1-x}, nous avons réalisé une expérience dédiée à l'étude des

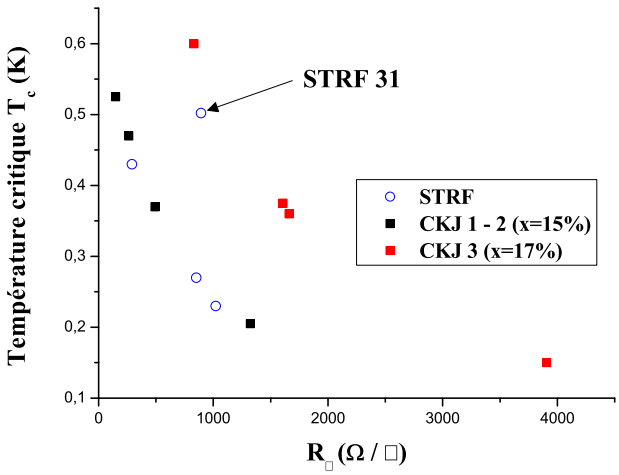

Figure 7.2 – Évolution de la température critique T_c en fonction de la résistance par carré pour les 4 films de la série STRF (tab(7.1)), en comparaison des séries CKJ 1-2 (x = 15%) et CKJ 3 (x = 17%) déjà mesurées au sein du groupe [Marrache-Kikuchi, 2006].

propriétés de transport à basse fréquence de la bi-couche Pt/NbSi, en fonction de l'épaisseur du film de Nb_xSi_{1-x}.

La géométrie de ces échantillons est celle des échantillons étudiés dans la partie (II) et détaillée dans le chapitre (2). La partie droite de l'échantillon est constituée du seul film de NbSi, la partie gauche de la bi-couche NbSi/Pt, permettant ainsi une étude directe de l'influence du film métallique de Pt[1].

Afin de reproduire au plus près la situation de la série STRF, nous avons évaporé quatre films de a-Nb_xSi_{1-x}, de composition $x = 15\%$, de différentes épaisseurs comprises entre 10 et 50 nm. L'épaisseur du film de platine, recouvrant la partie gauche de l'échantillon, est de d_{Pt}=25 nm, comme pour les échantillons STRF.

La figure (7.3) montre l'évolution de la résistance avec la température, pour ces quatre films, recouverts de platine (b) ou non (a).

Alors que les quatre films de Nb_xSi_{1-x} non-recouverts de Pt sont supraconducteurs, comme attendu d'après les précédentes études effectuées pour $x = 15\%$ [Marrache-Kikuchi, 2006], nous voyons qu'en proximité avec le platine seulement deux films le sont encore. Plus précisément, nous avons représenté sur la figure (7.4) l'évolution de la température critique en fonction de l'inverse de l'épaisseur de Nb_xSi_{1-x}, avec ou sans platine.

Bien que ces données soient insuffisantes pour établir une étude complète de l'effet de proximité sur le Nb_xSi_{1-x}, nous pouvons remarquer que les films de Nb_xSi_{1-x} en proximité avec le platine sont caractérisés par une température critique fortement réduite par rapport à celle des films de a-Nb_xSi_{1-x} correspondants. Cette réduction des propriétés supraconductrices du film de a-Nb_xSi_{1-x} par le platine peut s'interpréter par un effet de proximité inverse.

Nous voyons également que l'effet de l'épaisseur sur la destruction de la supraconduc-

[1] Le film de a-Nb_xSi_{1-x} des côtés gauche et droit a été synthétisé au cours de la même évaporation.

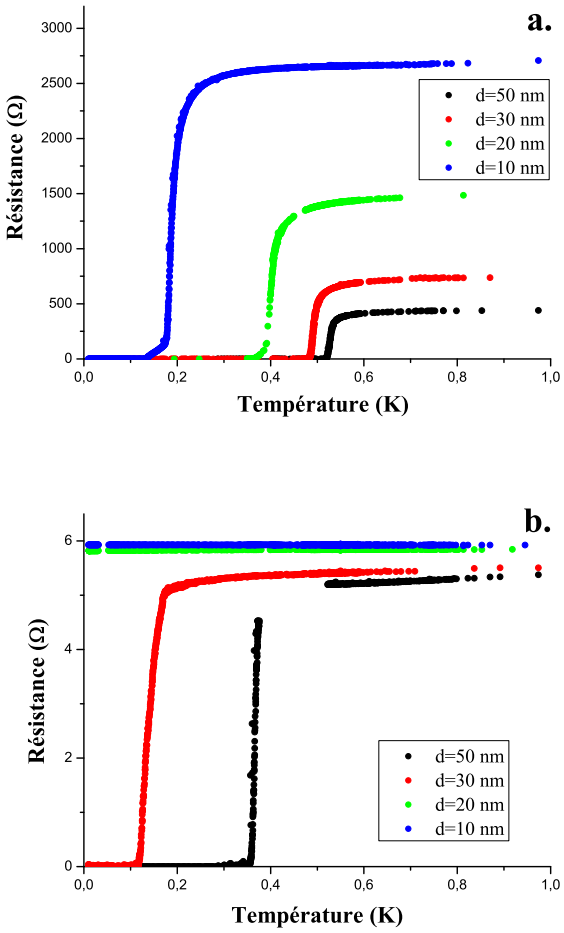

Figure 7.3 – Évolution de la résistance avec la température pour différents films de $Nb_{15}Si_{85}$ d'épaisseurs d comprises entre 10 et 50 nm, dans le cas de films de NbSi (a) et de bi-couches NbSi/Pt (d_{Pt} =25 nm) (b).

tivité est plus important pour les bi-couches que pour les simples films de a-Nb_xSi_{1-x}. En particulier, nous pouvons estimer une épaisseur critique d_c pour la destruction de la supraconductivité dans ces bi-couches, de l'ordre de $d_c \sim 25$ nm, plus importante que celle du film a-Nb_xSi_{1-x} seul, de l'ordre de 8 nm.

Nous reviendrons dans la suite sur cet effet de proximité, dont la prise en compte est nécessaire à la calibration, pour les échantillons STRF 24, 31 et 32.

Pour l'échantillon STRF 35, on s'attend donc à ce que la supraconductivité du Nb_xSi_{1-x} à l'interface Pt/NbSi soit détruite. Nous verrons que ceci est cohérent avec les mesures à hautes fréquences.

7.1.3 Modélisation électro-cinétique des échantillons

Nous allons consacrer ce paragraphe à la description de la réponse en réflexion de nos échantillons, telle qu'obtenue par une mesure en sortie immédiate du VNA, à température ambiante.

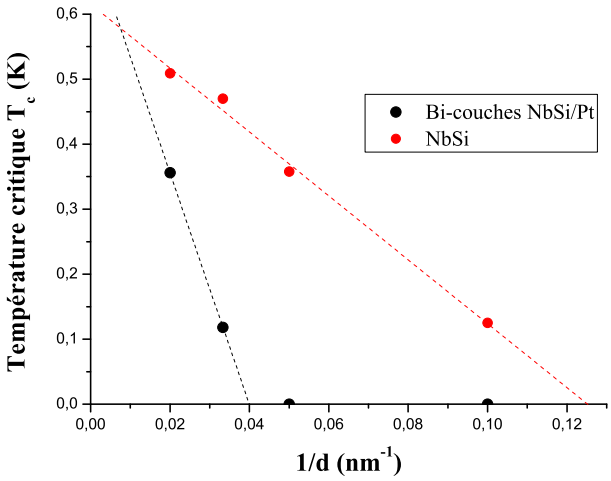

Figure 7.4 – Évolution de la température critique avec l'inverse de l'épaisseur d des films de Nb_xSi_{1-x}, dans le cas de films de NbSi et de bi-couches NbSi/Pt (d_{Pt}=25 nm). Les droites en pointillés représentent des guides pour les yeux.

L'échantillon *(le film de NbSi d'impédance Z au sein de la ligne microstrip)* peut être modélisé par le circuit représenté sur la figure (7.5). L'onde électromagnétique arrivant sur l'échantillon est partiellement réfléchie, du fait de la désadaptation d'impédance induite par le film. L'onde transmise se propage sur la longueur L_2 avant d'être totalement réfléchie par le plan de masse. Elle peut être, à nouveau, soit transmise soit réfléchie au niveau du film. Les ondes stationnaires ainsi créées se superposent. L'ensemble { film, "L_2" } constitue alors un interféromètre de Fabry-Pérot.

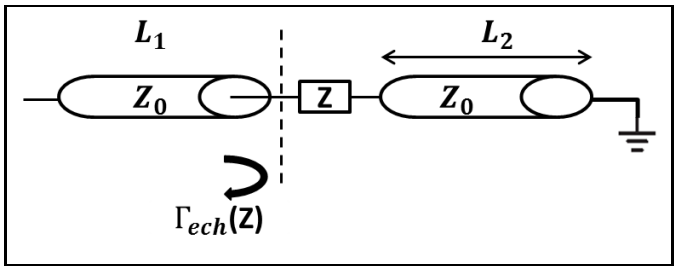

Figure 7.5 – Représentation schématique de la ligne de transmission microstrip, d'impédance caractéristique Z_0 avec l'échantillon d'impédance Z. La Longueur L_1 traduit la longueur de la ligne de transmission avant l'échantillon et la longueur L_2 celle entre l'échantillon et le plan de masse.

Le calcul du coefficient de réflexion $\Gamma_{ech}(Z)$ de l'échantillon, constitué de cet interféromètre de Fabry-Pérot, entre le plan de référence défini par la ligne en pointillés sur la figure (7.5) et le plan de masse, donne (annexe (B)) :

$$\Gamma_{ech}(Z) = \frac{Z(1+e^{2i\phi}) - 2Z_0e^{2i\phi}}{Z(1+e^{2i\phi}) + 2Z_0} = \frac{Z_{tot} - Z_0}{Z_{tot} + Z_0} \tag{7.2}$$

où Z et Z_0 sont respectivement l'impédance du film et l'impédance caractéristique de la ligne de transmission. $\phi = \omega L_2/\tilde{c}$ est la phase associée à la propagation de l'onde électromagnétique sur la longueur L_2 après l'échantillon, avec ω la pulsation de l'onde et $\tilde{c}$ sa vitesse de propagation au sein de la ligne microstrip. Z_{tot} est l'impédance équivalente de cet interféromètre de Fabry-Pérot.

La figure (7.6) représente l'évolution en fonction de la fréquence de l'impédance complexe Z_{tot}, obtenue par la mesure de la réflexion en sortie de VNA, pour l'échantillon STRF 24.

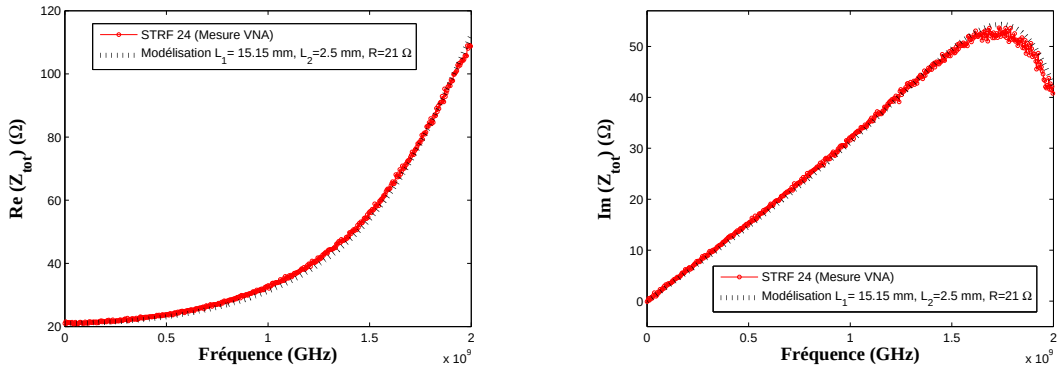

Figure 7.6 – Évolution de l'impédance complexe, Re(Z_{tot}) (a) et Im(Z_{tot}) (b), en fonction de la fréquence, pour l'échantillon STRF24 (courbe rouge). Les courbes noires en pointillés représentent la modélisation électrocinétique de l'échantillon, décrite dans le texte.

À basse fréquence (f $\rightarrow$ 0), la partie réelle de l'impédance ReZ_{tot} approche continument la valeur mesurée à très basse fréquence par la détection synchrone à 77 Hz (R = 21.6 Ω), et la partie imaginaire ImZ_{tot} tend vers 0. Lorsque la fréquence augmente, nous observons à la fois une augmentation de ReZ_{tot} et de ImZ_{tot}, que nous interprétons comme l'effet du Fabry-Pérot décrit ci-dessus.

Nous avons superposé à ces mesures le résultat de l'ajustement du coefficient de réflexion Γ_{ech} par l'équation (7.2). Nous avons pour cela considéré un terme supplémentaire lié à la propagation de l'onde sur une longueur L_1 avant l'échantillon (connecteur SMA, ligne de transmission avant l'échantillon, etc.). La valeur de Z entrant dans l'équation (7.2) est optimisée autour de la valeur de la résistance mesurée à basse fréquence, L_1 et L_2 sont ajustées pour décrire au mieux la mesure.

Nous voyons un très bon accord entre la mesure et cette modélisation. Quantitativement, la longueur L_2 (L_2 = 2.5 mm) obtenue par ajustement est également acceptable en comparaison de la longueur de 1500 μm définie par la géométrie de l'échantillon STRF 24, entre le film et le bord du substrat (fig. (6.3)). En effet, à cette longueur, nous devons également ajouter la longueur du fil de bonding en or connectant le plan de masse, d'environ 1 mm. Une longueur L_1 (L_1 = 15.15 mm) - entre le film de NbSi et l'entrée du VNA - de l'ordre du cm est également acceptable.

Une fois déterminées les caractéristiques géométriques L_1 et L_2 de l'échantillon par cette modélisation, nous pouvons réaliser l'opération inverse, à savoir extraire l'impédance complexe Z du film de a-Nb_xSi_{1-x} à partir de la mesure de coefficient de réflexion Γ_{ech}. La

figure (7.7) présente les résultats de l'inversion de l'équation (7.2) à partir des mesures effectuées directement en sortie de VNA. Nous voyons que la partie réelle coïncide ($\pm$ 0.3 Ω) avec la résistance mesurée par la détection synchrone à basse fréquence (R = 21.6 Ω), et que la partie imaginaire est faible (0.5 $\pm$ 0.4 Ω) devant les inductances que nous allons mesurer, comme attendu pour un échantillon purement résistif à température ambiante.

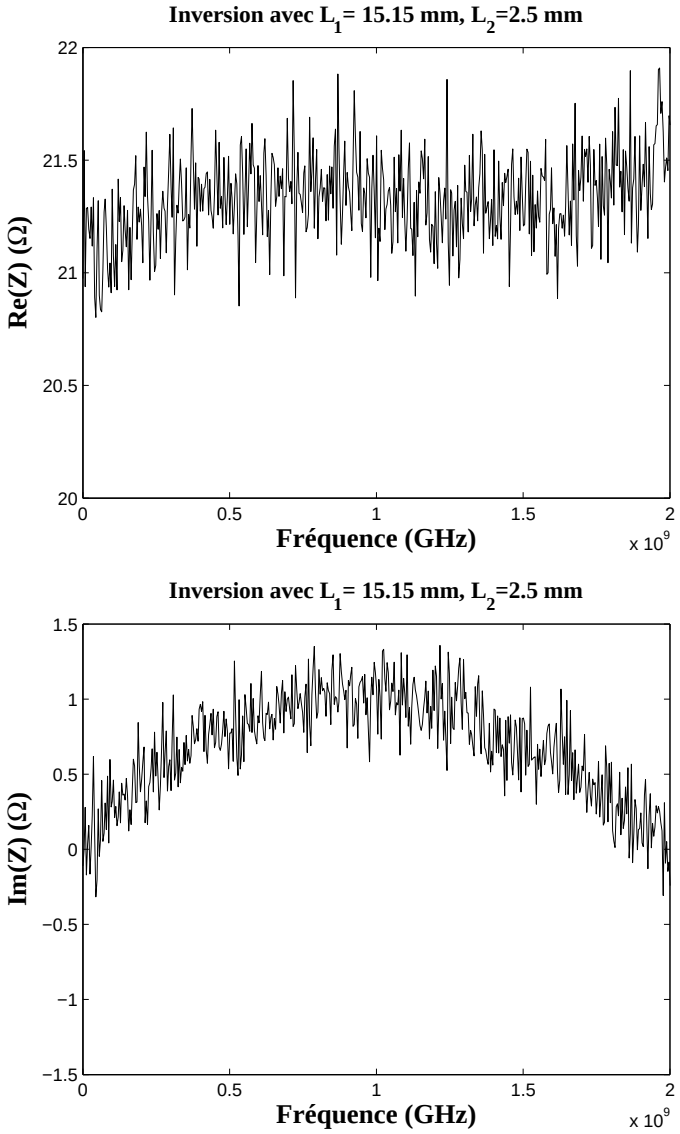

Figure 7.7 – Évolution de l'impédance complexe en fonction de la fréquence, Re(Z) (a) et Im(Z) (b), après inversion de l'équation (7.2) à partir de la mesure du coefficient de réflexion Γ_{ech} de l'échantillon STRF 24, obtenue directement en sortie de VNA.

Nous avons vérifié que les résultats de cette modélisation appliquée à chacun des échantillons STRF correspondaient à leurs paramètres géométriques. La coïncidence de la mesure à basse fréquence (détection synchrone) avec le résultat de l'inversion de l'équation (7.2) valide donc le fait que nous avons une bonne connaissance électrocinétique de l'échantillon. Ceci permet notamment d'exclure d'éventuels artefacts liés à sa fabrication, tels que les capacités

parasites par exemple[2]. Par ailleurs, l'absence de capacités géométriques est cohérente avec les modélisations de notre géométrie effectuées via le logiciel de simulation électromagnétique Sonnet.

À température ambiante, la réponse en fréquence de nos échantillons se décrit donc bien par une simple résistance et des effets propagatifs modélisés par l'équation (7.2). **Nous verrons dans la suite que la procédure de calibration que nous avons développée permet de s'affranchir de ces effets d'interférences.**

7.2 Principe de la calibration

7.2.1 Idée générale

Nous allons introduire dans cette section les coefficients d'erreur complexes, traduisant les changements d'amplitude et de phase de l'onde électromagnétique au sein du dispositif de mesure. Ces coefficients d'erreur, que la calibration a pour but de déterminer, vont relier le coefficient de réflexion mesuré Γ_M, fonction de la réponse du dispositif et de l'échantillon, au coefficient de réflexion Γ_{ech} provenant uniquement de l'échantillon terminant le dispositif. La connaissance des coefficients d'erreur permet alors d'extraire Γ_{ech} à partir de la mesure Γ_M.

7.2.2 Modélisation du dispositif de réflectométrie

Nous modélisons le dispositif de mesure par un système à trois ports. Deux ports décrivent l'entrée et la sortie de l'analyseur de réseau vectoriel (VNA), notés (1) pour l'excitation RF, (2) pour la détection sur le schéma de la figure (7.8). Le troisième port correspond à un échantillon d'impédance Z, que nous supposons ponctuel.

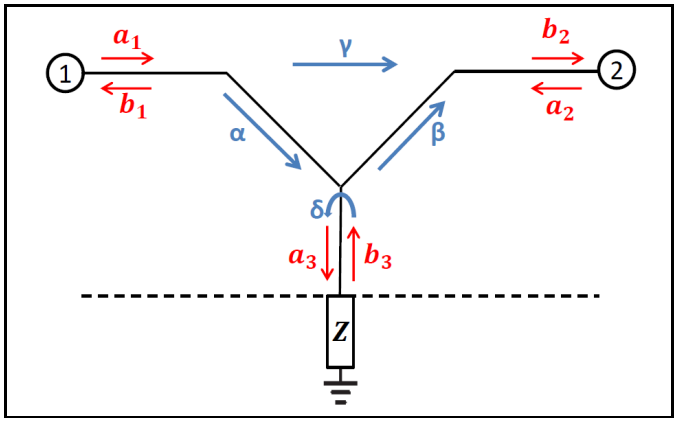

Figure 7.8 – Modélisation du dispositif de mesure par un système à 3 ports : l'excitation RF (1), la détection (2) et l'échantillon d'impédance Z. Les amplitudes a_i et b_i décrivent les amplitudes incidentes et réfléchies en chacun de ces ports.

[2]En particulier, nous pouvons exclure l'existence de capacités en parallèle supérieures à 0.1 pF et en série inférieures à 1 nF. De telles capacités parasites auraient pu apparaître lors des étapes de fabrication, par exemple du fait de résidus de résine après lithographie.

Quatre coefficients d'erreur complexes α, β, γ, et δ, permettent de relier les amplitudes complexes de l'onde électromagnétique entre ces différents ports. Ces coefficients dépendent de la fréquence et des conditions expérimentales, comme par exemple la température. Nous appelons a_i et b_i, respectivement l'amplitude des ondes incidentes et réfléchies au port i[3].

α décrit la transmission de la ligne d'excitation, β celle de la ligne de détection et γ le couplage parasite entre ces deux voies, dû principalement aux imperfections du coupleur directionnel. Le terme δ prend en compte la désadaptation de la ligne menant au port (3), à l'origine d'un terme d'interférences au niveau de l'échantillon.

L'équation (7.3), dont la dérivation est détaillée dans l'annexe (C), relie le coefficient de réflexion mesuré Γ_M, défini par le ratio $\Gamma_M = b_2/a_1$, au coefficient de réflexion de l'échantillon $\Gamma_{ech} = b_3/a_3$.

$$\Gamma_M = \gamma + \frac{\tilde{\alpha}\Gamma_{ech}}{1 - \Gamma_{ech}\delta} \tag{7.3}$$

avec $\tilde{\alpha} = \alpha\beta$.

Le coefficient de réflexion de l'échantillon Γ_{ech} est par ailleurs relié à son impédance Z, par la relation suivante :

$$\Gamma_{ech} = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \tag{7.4}$$

Pour des conditions expérimentales fixées (température, serrage des connecteurs, etc.), cette relation montre que la détermination des coefficients d'erreur $\tilde{\alpha}$, γ et δ nécessite la mesure de trois références, i.e. trois échantillons dont le coefficient de réflexion $(\Gamma_{ech})_i$, fonction de leur impédance complexe Z_i, est connu.

Une fois ces coefficients déterminés, on estime que l'on connaît la réponse du dispositif de mesure, jusqu'au niveau du plan de référence, défini par la ligne en pointillés sur la figure (7.8)[4]. C'est la calibration. La mesure subséquente de Γ_M et l'inversion de équation (7.3) nous donne alors l'impédance Z d'un échantillon quelconque, positionné au niveau du plan de référence de la calibration.

Une telle calibration est aisée à température ambiante, où nous disposons de références commerciales étalonnées. Aux températures cryogéniques où nous travaillons, cette tâche est beaucoup plus complexe. **Il est effectivement important de noter que les caractéristiques micro-ondes du dispositif sont très sensibles aux conditions expérimentales, comme par exemple le serrage des connecteurs et les gradients de température, et ne peuvent donc être parfaitement reproduites d'une expérience à l'autre.**

Nous détaillerons dans la suite la méthode de calibration développée lors de cette thèse, qui permet de s'affranchir de la mesure à basse température d'étalons successifs.

L'idée générale est la suivante : à basse température, nous allons utiliser trois points en température T_1, T_2 et T_3, où nous faisons une hypothèse raisonnable sur les propriétés physiques de nos échantillons, permettant de déduire leur impédance $Z(T_1)$, $Z(T_2)$ et $Z(T_3)$,

[3] L'adaptation d'impédance des deux ports du VNA permet de négliger les termes b_1 et a_2.

[4] Ceci suppose donc que l'échantillon mesuré termine effectivement le dispositif ainsi calibré, i.e. qu'il est directement connecté au plan de masse.

que l'on reliera aux coefficients de réflexion mesurés à ces températures. L'obtention des coefficients d'erreur par cette méthode permet ensuite la détermination de l'impédance complexe des échantillons pour une température quelconque, dans la gamme de température où le système est stable, typiquement $T \lesssim 4$ K (T_1, T_2 et $T_3 \leq 4$ K) (cf. sect. (7.4.1)).

Pour vérifier le bien-fondé de cette démarche, nous avons fait une calibration « standard » avec la mesure successive de trois références à basse température, correspondant à un circuit-ouvert, un court-circuit et une résistance de 50 Ω adaptée [Liu et al., 2011, Mondal et al., 2013]. Nous présenterons les résultats issus de cette calibration. Cependant, afin d'illustrer la mise en application d'une calibration « standard », nous allons tout d'abord détailler un premier test qui consiste à calibrer le dispositif à température ambiante.

7.3 Calibration à température ambiante

Comme nous l'avons déjà mentionné, nous disposons d'un kit de calibration fourni avec l'analyseur de réseau vectoriel. Ce kit contient trois références, correspondant à un circuit ouvert ($\Gamma_o \sim 1$), un court-circuit ($\Gamma_s \sim -1$) et à une résistance 50 Ω ($\Gamma_{50} \sim 0$).

Pour de telles références, les coefficients d'erreur γ, $\tilde{\alpha}$ et δ, précédemment introduits, peuvent être simplifiés. Ils sont alors donnés par :

$$\gamma = \Gamma_{M,50} \tag{7.5}$$

$$\tilde{\alpha} = 2\frac{(\Gamma_{M,50} - \Gamma_{M,s})(\Gamma_{M,o} - \Gamma_{M,50})}{(\Gamma_{M,o} - \Gamma_{M,s})} \tag{7.6}$$

$$\delta = 1 + 2\left(\frac{\Gamma_{M,s} - \Gamma_{M,50}}{\Gamma_{M,o} - \Gamma_{M,s}}\right) \tag{7.7}$$

où $\Gamma_{M,o}$, $\Gamma_{M,s}$ et $\Gamma_{M,50}$ sont les coefficients de réflexion mesurés, correspondant respectivement au circuit ouvert, au court-circuit et à la résistance de 50 Ω, placés au plan de référence de la calibration (fig. 7.8).

À partir de ces coefficients de réflexion mesurés, nous déterminons les coefficients d'erreur γ, $\tilde{\alpha}$ et δ. Après l'inversion de l'équation (7.3), nous obtenons le coefficient de réflexion Γ_{ech} de l'échantillon.

Pour aller plus loin, les figures (7.9) et (7.10) montrent les résultats de l'application d'une telle procédure, à température ambiante, pour l'échantillon STRF 24[5], correspondant respectivement à l'amplitude (dB) et à la phase des coefficients de réflexion Γ_M et Γ_{ech}.

La comparaison de l'amplitude des coefficients de réflexion Γ_M et Γ_{ech} (fig. (7.9)) montre une réduction du niveau de réflexion après calibration : la calibration permet donc de s'affranchir de l'atténuation du dispositif. Nous voyons également que le coefficient de réflexion Γ_{ech} ne présente plus les modulations d'amplitude - périodiques - associées aux ondes stationnaires induites par les réflexions multiples de l'onde au sein du dispositif.

Pour la réponse en phase (fig. (7.10)), nous voyons que la calibration permet également de s'affranchir du déphasage imposée par la longueurs des câbles. Le déphasage résiduel

[5] L'échantillon STRF 24 est constitué du film de NbSi inséré dans la ligne microstrip.

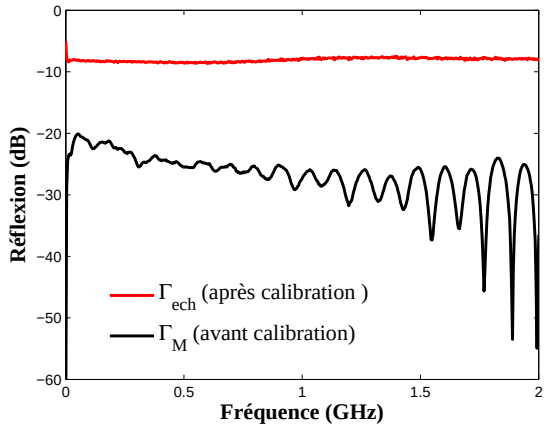

Figure 7.9 – Évolution de l'amplitude du coefficient de réflexion (dB) en fonction de la fréquence pour l'échantillon STRF 24, avant (Γ_M) et après (Γ_{ech}) application de la calibration, à température ambiante.

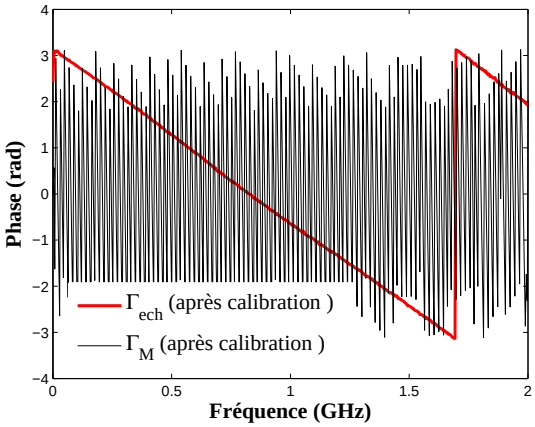

Figure 7.10 – Évolution de la phase du coefficient de réflexion (rad) en fonction de la fréquence pour l'échantillon STRF 24, avant (Γ_M) et après (Γ_{ech}) application de la calibration, à température ambiante.

de Γ_{ech} après la calibration est dû à l'interféromètre de Fabry-Pérot de l'échantillon (sous-sect. (7.2.2)).

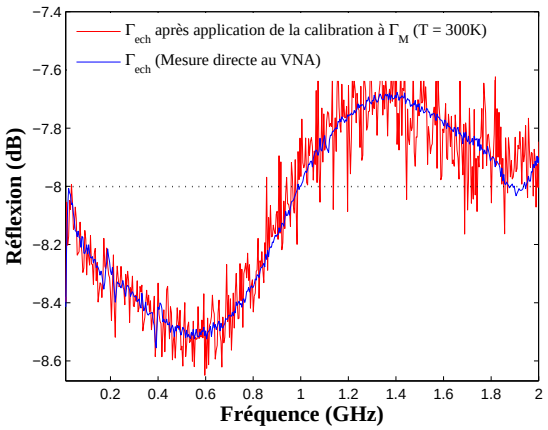

Figure 7.11 – Évolution de l'amplitude du coefficient de réflexion (dB) en fonction de la fréquence pour l'échantillon STRF 24, mesuré directement en bout de VNA et avec le dispositif de mesure (après application de la calibration), à température ambiante. La ligne horizontale en pointillés correspond au coefficient de réflexion théorique d'un échantillon purement résistif (R = 21.6 Ω), sans l'effet de Fabry-Pérot.

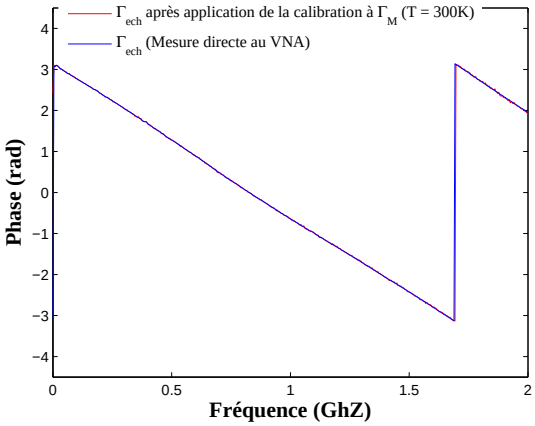

Figure 7.12 – Évolution de la phase du coefficient de réflexion (rad) en fonction de la fréquence pour l'échantillon STRF 24, mesuré directement en bout de VNA et avec le dispositif de mesure (après application de la calibration), à température ambiante.

Plus précisément, les figures (7.11) et (7.12) comparent l'évolution en fréquence du coefficient de réflexion Γ_{ech} du STRF 24, respectivement en amplitude (dB) et en phase, après calibration, à celui obtenu par une mesure à la sortie de VNA (sans le dispositif de mesure).

Cette comparaison montre, pour l'amplitude comme pour la phase du coefficient de réflexion, que la calibration **à température ambiante**, permet de s'affranchir de la dépendance en fréquence du dispositif de mesure et de retrouver la réponse de l'échantillon, telle que mesurée directement à la sortie du VNA. La calibration est donc satisfaisante.

7.4 Calibration à basse température

7.4.1 Évolution de la réponse du dispositif de mesure avec la température

Nous avons représenté sur la figure (7.13) l'évolution de l'amplitude du coefficient de réflexion en fonction de la fréquence, pour un court-circuit terminant le dispositif de mesure, mesuré à température ambiante et à T = 4 K. Nous voyons que la réflexion mesurée à basse température est plus importante, du fait de l'atténuation des câbles coaxiaux qui diminue avec la température.

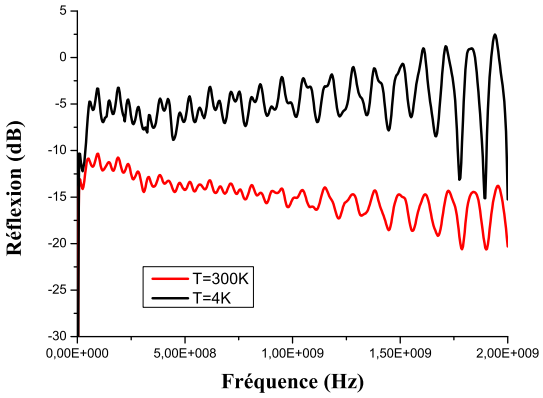

Figure 7.13 – Évolution en fréquence de l'amplitude du coefficient de réflexion (dB) d'un court-circuit terminant le dispositif de mesure, à T = 300 K et T = 4K.

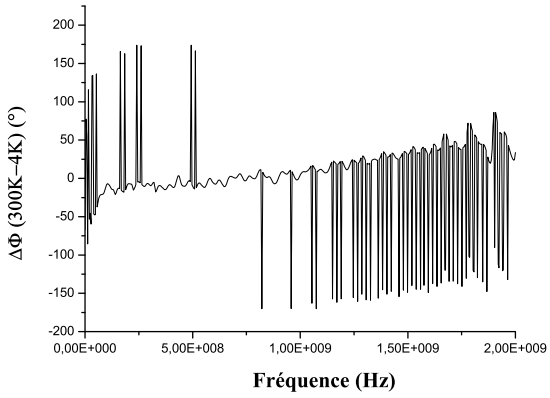

Figure 7.14 – Évolution en fréquence de la différence de phase du coefficient de réflexion (dB) d'un court-circuit terminant le dispositif de mesure, entre T = 300 K et T = 4K.

La figure (7.14) montre la différence de phase du coefficient de réflexion en fonction de la fréquence, entre T = 300 K et T = 4 K. Le déphasage observé peut être dû aux effets de contraction mécanique au niveau des câbles et du coupleur ainsi qu'à la contraction du téflon dans les câbles coaxiaux.

Par ailleurs, nous avons vérifié que pour une température $T \leq 4K$, la réponse du dispositif ne changeait pas avec la température[6]. Pour la procédure de calibration basée sur la réponse de l'échantillon, nous pourrons donc utiliser comme références des mesures à des températures différentes, mais inférieures à T = 4 K.

7.4.2 Procédure de calibration « standard »

De la même manière que pour la calibration à température ambiante, présentée dans la section (7.3), nous avons tenté d'utiliser un court-circuit, un circuit ouvert et une résistance de

[6] Variation de 1% en relatif sur l'amplitude de la réflexion et de l'ordre de 1° en valeur absolue de la phase.

50 Ω comme références pour calibrer le dispositif à basse température. Nous allons montrer que cette méthode de calibration n'est pas satisfaisante, ce qui nous a conduit au développement de la méthode de calibration utilisant la réponse de l'échantillon à trois différentes températures.

À partir de la mesure à basse température des coefficients de réflexion $\Gamma_{M,50}$, $\Gamma_{M,o}$ et $\Gamma_{M,s}$, lors de trois refroidissement successifs, nous avons déterminé les trois coefficients d'erreur décrivant la réponse en fréquence du dispositif.

Après l'inversion de l'équation (7.3), nous obtenons le coefficient de réflexion Γ_{ech} de l'échantillon au sein de la microstrip. L'inversion de l'équation (7.2), décrivant les effets d'interférences liés à la microstrip, permet ensuite l'extraction de l'impédance complexe du film de a-Nb_xSi_{1-x}.

La figure (7.15) montre le résultat ainsi obtenu pour l'échantillon STRF 35, avec les paramètres géométriques de la microstrip déterminés à température ambiante. Nous avons tracé d'une part l'évolution en température de la partie réelle de l'impédance Z, à différentes fréquences, et d'autre part celle de la partie imaginaire.

Pour la partie réelle $Re(Z)$, nous voyons que cette évolution suit celle de la résistance mesurée à très basse fréquence par la détection synchrone, avec un offset dépendant de la fréquence.

Pour la partie imaginaire $Im(Z)$, nous observons un maximum pour une température qui correspond à la température critique, déterminée par les mesures à basse fréquence. Nous pensons que ce signal est associé à l'apparition d'une inductance cinétique finie des paires de Cooper pour $T \leq T_c$. Cependant, comme pour la partie réelle, l'évolution de $Im(Z)$ montre un offset, notamment pour $T > T_c$, qui croît avec la fréquence.

Nous pensons que les contraintes thermiques à basse température, et en particulier la contraction du diélectrique du connecteur SMA - reliant l'échantillon au circuit de mesure - sont susceptibles d'introduire une désadaptation d'impédance non prise en compte dans cette méthode de calibration, introduisant une mauvaise référence de phase après calibration. De ce point de vue, cette méthode de calibration n'est pas satisfaisante à très basse température.

7.4.3 Procédure de calibration utilisant l'échantillon comme référence(s)

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe (7.2.2), obtenir le coefficient de réflexion de l'échantillon Γ_{ech} à partir du coefficient de réflexion Γ_M mesuré nécessite la mesure préalable de trois échantillons-étalon pour lesquels $(\Gamma_{ech})_i$ sont connus. Usuellement, comme nous l'avons vu, on prend comme références les "standards" court-circuit (Γ_{ech} = -1), circuit ouvert ($\Gamma_{ech} = 1$) et résistance de 50 Ω ($\Gamma_{ech} = 0$). Idéalement, ces références sont mesurées dans les mêmes conditions expérimentales. Or, à basse température, nous avons vu que les contraintes thermiques, notamment, ne sont pas suffisamment reproductibles pour permettre une telle calibration nécessitant des refroidissements successifs du dispositif.

Pour s'affranchir de ce problème spécifique aux basses températures, Booth et al. ont par exemple proposé, pour des échantillons supraconducteurs, d'utiliser deux standards à température ambiante (circuit ouvert et résistance de 50 Ω) et l'échantillon lui-même, à l'état supraconducteur, comme court-circuit de référence [Booth et al., 1994]. Ceci sous-tend que la dépendance en température du dispositif est essentiellement déterminée par ce point mesuré à basse température.

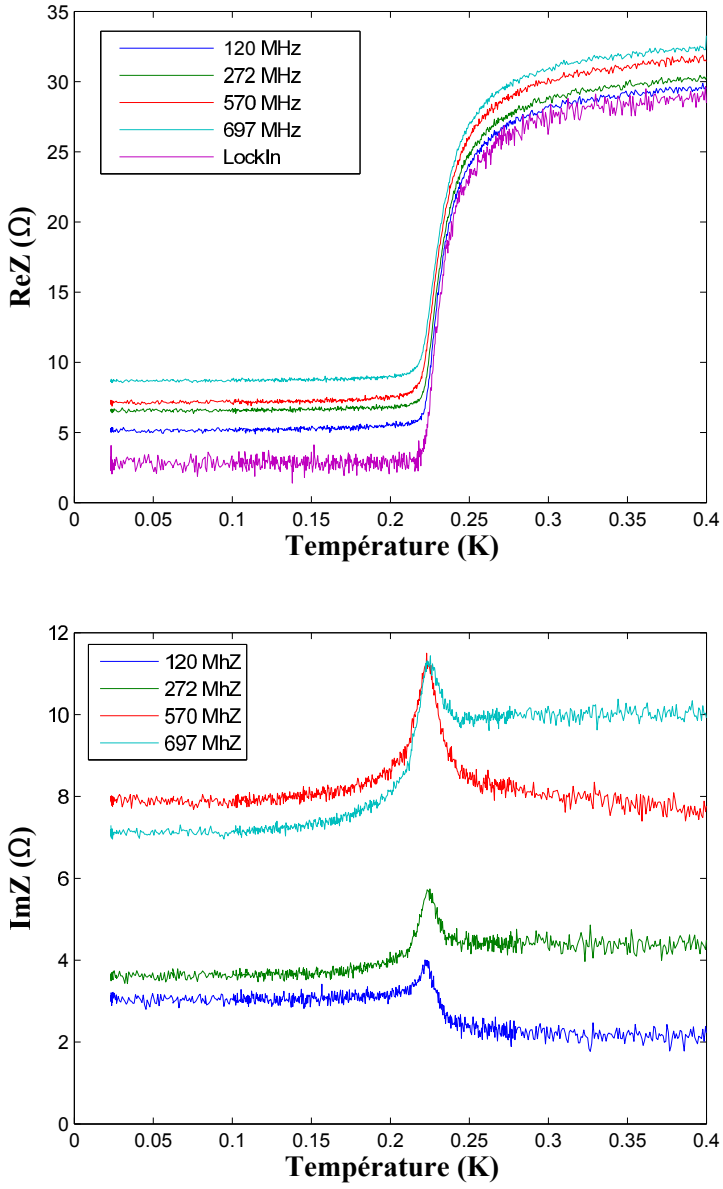

Figure 7.15 – Évolution de l'impédance complexe (Re(Z) et Im(Z)) en fonction de la température, à différentes fréquences, pour l'échantillon STRF 35, après application de la calibration « standard ».

7.4.3.1 Principe général

Notre pouvons étendre cette démarche en remarquant que les coefficients d'erreur caractérisant le dispositif de mesure peuvent être déterminés à partir de n'importe quelles mesures de trois Γ_{ech} connus. **Nous avons donc établi une méthode de calibration complète du dispositif à basse température à partir de l'échantillon lui-même, mesuré à trois températures distinctes.** Ceci, en revanche, nécessite une hypothèse sur le coefficient de réflexion Γ_{ech} de l'échantillon aux trois températures choisies comme références.

Parmi les trois références choisies, deux correspondent à l'échantillon à l'état normal et une à l'échantillon à l'état supraconducteur. En ces trois points, nous *imposons* donc une valeur de l'impédance $Z(\omega)$.

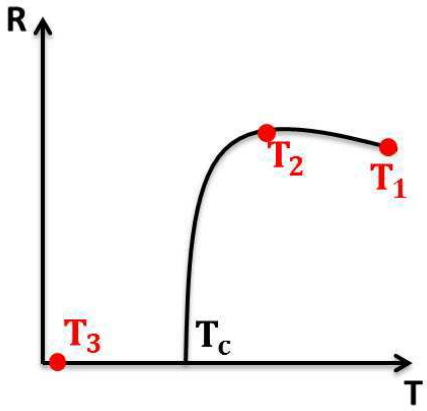

Figure 7.16 – Représentation schématique du choix des points de calibration T_1, T_2 et T_3 autour de la transition supraconductrice des échantillons mesurés.

Point de calibration 1 Le premier point de calibration est choisi à l'état normal ($T = T_1$ (fig. (7.16))), loin de la transition supraconductrice, typiquement $T \sim 2\ T_c$. Nous faisons alors l'hypothèse d'une réponse purement résistive de l'échantillon, où l'impédance $Z(T_1)$ est donnée par $Z(T_1) = R_1$, avec R_1 la résistance mesurée à basse fréquence par la détection synchrone.

Point de calibration 2 Le deuxième point de calibration est également choisi à l'état normal ($T = T_2$), plus proche de la transition supraconductrice cette fois. Nous imposons une impédance $Z(T_2) = R_2$, avec R_2 également donnée par la mesure via la détection synchrone. Nous avons vérifié que le résultat de la calibration ne dépend pas, en première approximation, de la position de ce point à T_2 :

- à partir des estimations des corrections de paraconductivité de type Aslamazov-Larkin attendues pour $T > T_c$ et dans la gamme de fréquence sondée, nous avons choisi T_2 pour pouvoir négliger la dépendance en fréquence de $Z(T_2)$.
- en variant l'écart $\Delta T = T_2 - T_1$. Un écart minimum ($\Delta R \sim 2\Omega$) est nécessaire pour optimiser le rapport signal sur bruit de la calibration. Au-delà, le résultat après calibration est essentiellement inchangé. L'adaptation de l'impédance de nos échantillons

autour de 50 Ω, à l'état normal, nous permet d'avoir une grande sensibilité et rend possible le choix de ce point de calibration relativement proche de T_1. L'écart typique ΔT choisi est de 100 mK.

Un exemple de ces vérifications est détaillé pour l'échantillon STRF 35 dans l'annexe (E). Par ailleurs, à terme, nous pourrions également calibrer le dispositif en remplaçant le point à T_2 par un point à plus basse température ($T < T_c$), pour lequel on retrouve une réponse purement résistive à l'état normal grâce à l'application d'un courant $I > I_c$, où I_c est le courant critique.

Point de calibration 3 Le troisième point de calibration est choisi à l'état supraconducteur, à une température très inférieure à la température critique.

La méthode de calibration traitant l'impédance Z_3=Z(T_3) comme une résistance nulle est relativement naturelle pour un supraconducteur conventionnel non désordonné, où l'inductance cinétique des électrons supraconducteurs peut être négligée. C'est la méthode appliquée par Booth et al. sur des cuprates [Booth et al., 1994].

Son application pour un supraconducteur désordonné comme le système que nous étudions est plus complexe, en particulier à cause de l'inductance cinétique que l'on ne peut plus alors, a priori, négliger (chap (5)).

La détermination de l'impédance complexe Z_3 est une étape clé de cette méthode de calibration, dans la mesure où la réponse électrodynamique de l'échantillon à l'état supraconducteur - que nous cherchons à déterminer - nous est inconnue.

À partir d'un choix raisonnable de Z_3, nous montrerons que les résultats physiques issus de la calibration sont non seulement robustes mais également globalement cohérents avec la réponse physique attendue.

Nous avons donc calibré en imposant, à $T = T_3$, une impédance $Z_3 = jL_0\omega$, où L_0 est la valeur de l'inductance à $T = 0$ estimée dans le cadre de la théorie BCS (éq. (7.1))[7]. Nous verrons qu'une variation raisonnable de la valeur de cette inductance ne modifie pas qualitativement les résultats obtenus.

Notons par ailleurs que des mesures de longueur de pénétration ont montré que, dans un système analogue (a-Mo_xGe_{1-x}), cette estimation BCS de l'inductance était une bonne approximation de la valeur mesurée à basse température ($T < 0.9\ T_c$) [Turneaure et al., 2000] (chap. (5)).

L'établissement de cette nouvelle méthode de calibration constituant la première étape - cruciale - d'une étude des propriétés dynamiques à l'approche de la TSI, elle a constituée le cœur de ce travail de thèse.

7.4.3.2 Définition des plans de calibration

À la sous-section (7.1.3), nous avons montré que le film de NbSi était inséré dans un interféromètre de Fabry-Pérot dû à la géométrie de l'échantillon. Nous allons montrer que, grâce à la calibration développée, la prise en compte de ces effets d'interférences revient à modifier les plans de références effectifs de la calibration.

[7] Nous négligeons la correction en température de Ls(T) estimée à quelques pourcents à $T = T_3$.

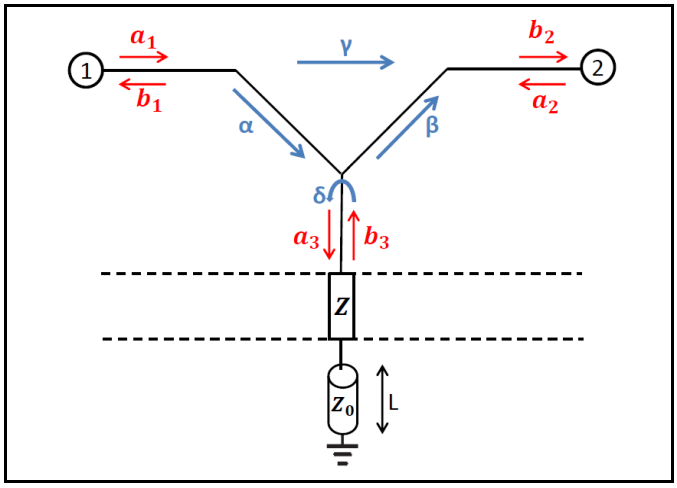

Figure 7.17 – Modélisation du dispositif de mesure par un système à 3 ports : l'excitation et la détection micro-onde et l'échantillon d'impédance Z. Les amplitudes a_i et b_i décrivent les amplitudes incidente et réfléchie en chacun de ces ports.

Suivant la même démarche que pour la calibration exposée dans la section (7.2), nous avons redéfini les coefficients d'erreurs en prenant en compte l'effet du Fabry-Pérot et obtenu la correction de l'effet du dispositif de mesure sur Γ_M, permettant alors la détermination directe Z du film de a-NbSi (annexe (D)).

En considérant trois points de calibration d'impédances Z_1, Z_2 Z_3 dont les coefficients de réflexion $\Gamma_{ech,i}$ sont définis par l'équation (7.2) et non plus par l'équation (7.4), nous obtenons l'impédance Z d'un film positionné entre les deux plans de références de la calibration schématisés sur la figure (7.17) :

$$Z = \frac{\Gamma_{M2}\Gamma_{M3}Z_1B + \Gamma_M(Z_1\Gamma_{M1}B + Z_3\Gamma_{M3}A + Z_2\Gamma_{M2}C) + \Gamma_{M1}(Z_3\Gamma_{M2}A + Z_2\Gamma_{M3}C)}{\Gamma_{M2}\Gamma_{M3}B + \Gamma_{M1}(Z_1(\Gamma_{M2} - \Gamma_{M3}) - Z_2\Gamma_{M2} + Z_3\Gamma_{M3}) + \Gamma_M(Z_1\Gamma_{M3} + Z_2\Gamma_{M1} - Z_2\Gamma_{M3} - Z_3\Gamma_{M1} + \Gamma_{M2}C)} \tag{7.8}$$

où $A = (Z_1 - Z_2)$, $B = (Z_2 - Z_3)$, et $C = (Z_3 - Z_1)$.

Cette expression ne dépend plus de L. Ceci montre que, à condition que les trois références considérées subissent le même Fabry-Pérot que le film - ce qui est le cas ici - la méthode de calibration permet de s'affranchir d'éventuels effets propagatifs. Elle est donc équivalente à la méthode définie à la section (7.2), avec des plans de références déplacés aux bornes du film, comme schématisé sur la figure (7.17).

Cette méthode de calibration utilisant directement les mesures de l'échantillon est donc particulièrement intéressante dans la mesure où seule la connaissance de l'impédance de l'échantillon à trois températures distinctes est nécessaire, indépendamment de son environnement micro-onde, et en particulier des caractéristiques géométriques précises de la ligne de transmission.

7.5 Résultats de la calibration

Afin de valider la méthode de calibration que nous avons décrite ci-dessus, nous l'avons appliquée à l'échantillon STRF 35. Nous allons, dans cette section, détailler les résultats obtenus et les comparer qualitativement aux prédictions théoriques.

Dans un second temps, et beaucoup plus brièvement, nous mentionnerons les résultats obtenus pour les autres films.

7.5.1 Résultats pour l'échantillon STRF 35

Pour l'échantillon STRF 35, de température critique $T_c = 230$ mK (tab. (7.1)), les résultats que nous allons décrire sont issus d'une calibration où les points de référence à T_1, T_2 et T_3 sont définis respectivement à 400 mK, 270 mK et 25 mK.[8]

Comme nous l'avons dit dans le paragraphe précédent, l'hypothèse de calibration la plus sensible concerne l'état supraconducteur à T_3 ($T_3 \ll T_c$). Pour ce dernier point, rappelons que nous imposons une réponse purement inductive de l'échantillon, telle que prévue par la théorie BCS dans la limite "sale" (ici $L_s(T_3) = 6$ nH/□).

7.5.1.1 Évolution de l'impédance $Z(T, \omega)$

Dépendance en température

L'évolution en température de l'impédance complexe Z, obtenue après cette calibration, est représentée sur la figure (7.18), à différentes fréquences. Nous avons superposé l'évolution en température de la partie réelle de l'impédance $Re(Z)$ à celle de la résistance mesurée à basse fréquence (77 Hz) via la détection synchrone.

À l'état normal, la partie imaginaire de l'impédance $Im(Z)$ est nulle. À la transition supraconductrice, déterminée indépendamment par la mesure à basse fréquence, nous observons un maximum de $Im(Z)$, comme également observé lors de l'application de la calibration "standard" (sous-sect. (7.4.2)), dont l'amplitude augmente lorsque la fréquence augmente. Nous interprétons cette première observation comme la manifestation de l'apparition d'une densité superfluide finie pour $T = T_c$. Il est attendu en effet que l'inductance cinétique des paires de Cooper - inversement proportionnelle à la densité superfluide - diverge à T_c et qu'elle décroît ensuite lorsque la température diminue. Rappelons que l'hypothèse de calibration formulée à l'état supraconducteur ne considère une réponse inductive que pour $T = T_3$. La signature inductive obtenue quelque soit la température $T < T_c$, et en particulier la divergence de $Im(Z)$ à T_c, ne peut pas être un artefact de la méthode de calibration.

Par ailleurs, l'évolution de $Re(Z)$ coïncide avec celle de la résistance à 77 Hz à l'état normal, et ce, quelle que soit la fréquence. Dans la transition supraconductrice, nous voyons apparaître une dépendance en fréquence de $Re(Z)$: plus la fréquence augmente, plus $Re(Z)$ augmente. Cette dépendance en fréquence ne peut s'interpréter par une description électrocinétique ne faisant intervenir qu'une inductance. Nous allons décrire plus en détails cette évolution dans la suite.

[8] Le choix du point de calibration à T_2 est discuté pour cet échantillon dans l'annexe (E).

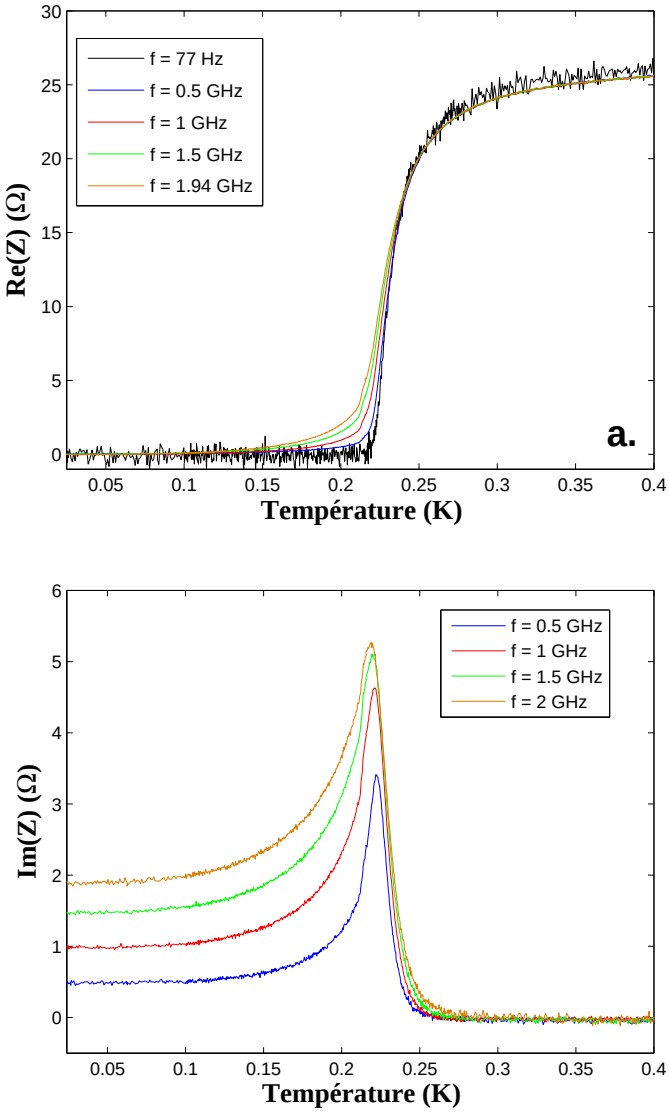

Figure 7.18 – Évolution en température de l'impédance complexe, à différentes fréquences, pour l'échantillon STRF 35. Les points de calibration sont choisis à $T_1 = 400$mK, $T_1 = 270$ mK et $T_3 = 25$ mK. Données moyennées sur une bande de fréquence $\Delta f \sim 120$ MHz.

Dépendance en fréquence

Nous avons représenté l'évolution en fréquence de l'impédance Z sur la figure (7.19), à différentes températures ($T < T_c$).

Nous avons superposé ces évolutions à une description électrocinétique de l'impédance complexe Z par un modèle à deux fluides, où Z est l'impédance d'un circuit RL en parallèle (chap. (5)). Rappelons que dans ce cadre, la résistance R décrit la réponse dissipative des quasi-particules et l'inductance L traduit la réponse non-dissipative des paires de Cooper.

Nous voyons que l'augmentation en fréquence de la partie réelle $Re(Z)$ comme de la partie imaginaire $Im(Z)$, est bien décrite par cette modélisation électrocinétique. En particulier, nous pouvons décrire toute l'évolution en fréquence de $Re(Z)$ et $Im(Z)$ par les *mêmes* paramètres R et L. Plus quantitativement, l'inductance L et la résistance R obtenues par cette modélisation coïncident respectivement avec les valeurs de $(G_2\omega)^{-1}$ et $1/G_1$, que nous montrerons dans le paragraphe suivant.

Nous avons représenté sur la figure (7.20) ces évolutions dans une représentation de Nyquist ($Im(Z)$ en fonction de $Re(Z)$), où nous retrouvons bien des arcs de cercle caractéristiques de la réponse d'un circuit RL. Le film supraconducteur se décrit donc, en première approche, par un circuit RL, comme attendu. Là encore, ce résultat ne peut pas être interprété comme le simple reflet des hypothèses de calibration.

Sensibilité

La figure (7.18) représente l'impédance après moyennage des données en fréquence ($\Delta f \sim$ 120 MHz), la résolution $(\Delta Z)_{moy}$ sur la détermination de Z est de $(\Delta Z)_{moy} \sim 0.1\Omega$. Puisque le signal que l'on cherche à mesurer est de quelques ohms, cette résolution est satisfaisante. Les figures (7.19) et (7.20) montrent l'évolution de l'impédance non-moyennée, pour se figurer une idée du bruit initial.

7.5.1.2 Évolution de la conductance $G(T, \omega)$

Nous allons reprendre dans ce paragraphe les précédents résultats en considérant non plus les évolutions de l'impédance Z, mais celles de la conductance $G = 1/Z$, plus usuelles pour la description de la réponse électrodynamique d'un supraconducteur (chap. (5)).

Dans une description simple de type "modèle à deux fluides", les parties réelle G_1 et imaginaire G_2 de la conductance sont distinctement reliées aux paramètres électrocinétiques R et L que nous avons précédemment introduits :

$$G = G_1 - iG_2 = \frac{1}{R} - i\frac{1}{L\omega} \tag{7.9}$$

L'évolution en température de G_2 est présentée figure (7.21). Conformément à ce qu'on attend, G_2 est nulle pour $T > T_c$ et croît lorsque l'on diminue la température. Notons que la valeur à basse température est imposée par l'hypothèse de calibration à T_3= 25 mK.

L'amplitude de G_2 diminue lorsque la fréquence augmente. On peut également observer cette dépendance sur la figure (7.22), où nous avons tracé l'évolution en fréquence de $G_2\omega \propto 1/L$. À chaque température, nous pouvons ainsi extraire la valeur de l'inductance cinétique correspondante. L'évolution de $L(T)$ est donnée sur la figure (7.23). Nous observons

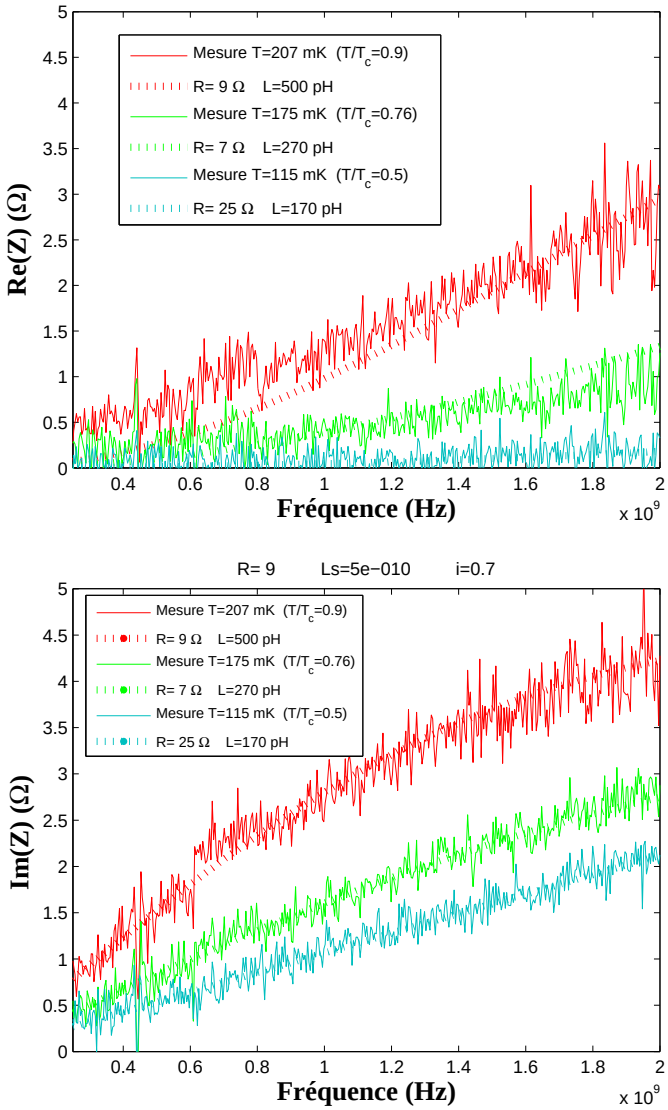

Figure 7.19 – Évolution en fréquence de l'impédance complexe Z à différentes températures. Les points de calibration sont choisis à $T_1 = 400$mK, $T_1 = 270$ mK et $T_3 = 25$ mK. Données non-moyennées.

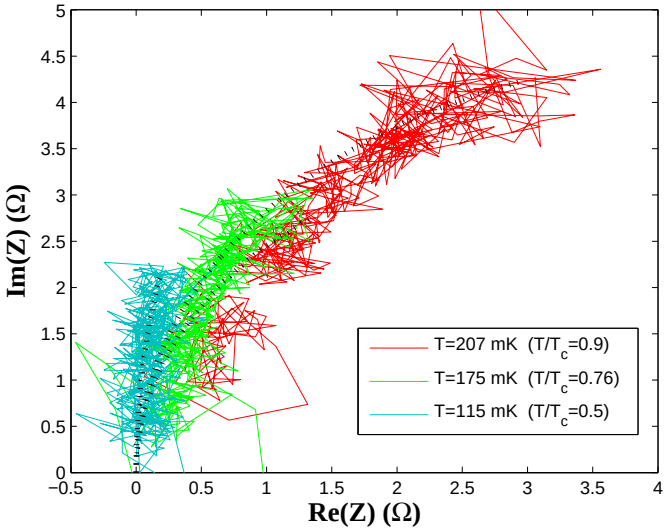

Figure 7.20 – Évolution de l'impédance complexe Z de l'échantillon STRF 35 dans un diagramme de Nyquist à différentes températures ($T < T_c$). Les pointillés représentent la modélisation par le circuit R//L équivalent, introduite sur la figure (7.18). Données non moyennées.

un bon accord avec la théorie BCS jusqu'à $T = 211$ mK ($T \sim 0.9\ T_c$). Au voisinage de la température critique, $L(T)$ s'annule plus rapidement que la prédiction BCS. Si une analyse quantitative est prématurée, notons toutefois qu'un tel comportement a déjà été observé dans des films minces désordonnées, tels que a-MoGe [Turneaure et al., 2000, Misra et al., 2013], NbN [Mondal et al., 2011b] et InO_x [Misra et al., 2013], et interprété dans ces systèmes comme une manifestation de la transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless.

En ce qui concerne la réponse dissipative, l'évolution en température de G_1 (fig. (7.21)) montre un maximum pour une température $T \sim 0.8\ T_c$. L'amplitude de ce maximum de G_1 décroît lorsque la fréquence augmente. À plus basse température, G_1 diminue pour finalement s'annuler.

Comme nous l'avons vu au chapitre (5), la théorie de Mattis-Bardeen, décrivant la réponse électrodynamique d'un supraconducteur conventionnel dans le cadre de la théorie BCS, prédit l'existence d'un "pic de cohérence" dans l'évolution de la conductance $G_1(T)$. Ce pic apparaît pour une température inférieure à la température critique, de l'ordre de $0.8\ T_c$ et son amplitude décroît lorsque la fréquence augmente. Ces différentes caractéristiques coïncident donc avec la description qualitative que nous pouvons établir à partir des résultats de la figure (7.21).

L'existence de ce pic de cohérence ne dépend pas du choix précis des hypothèses de calibration et en particulier de la valeur de l'inductance cinétique L_0 imposée à basse température (annexe (E) et fig. (7.25)). En revanche, l'amplitude et la position en température de ce pic en dépendent, ce qui ne nous permet pas une description quantitative de ses caractéristiques. À terme, nous pensons qu'un raffinement des hypothèses de calibration nous permettra une telle description.

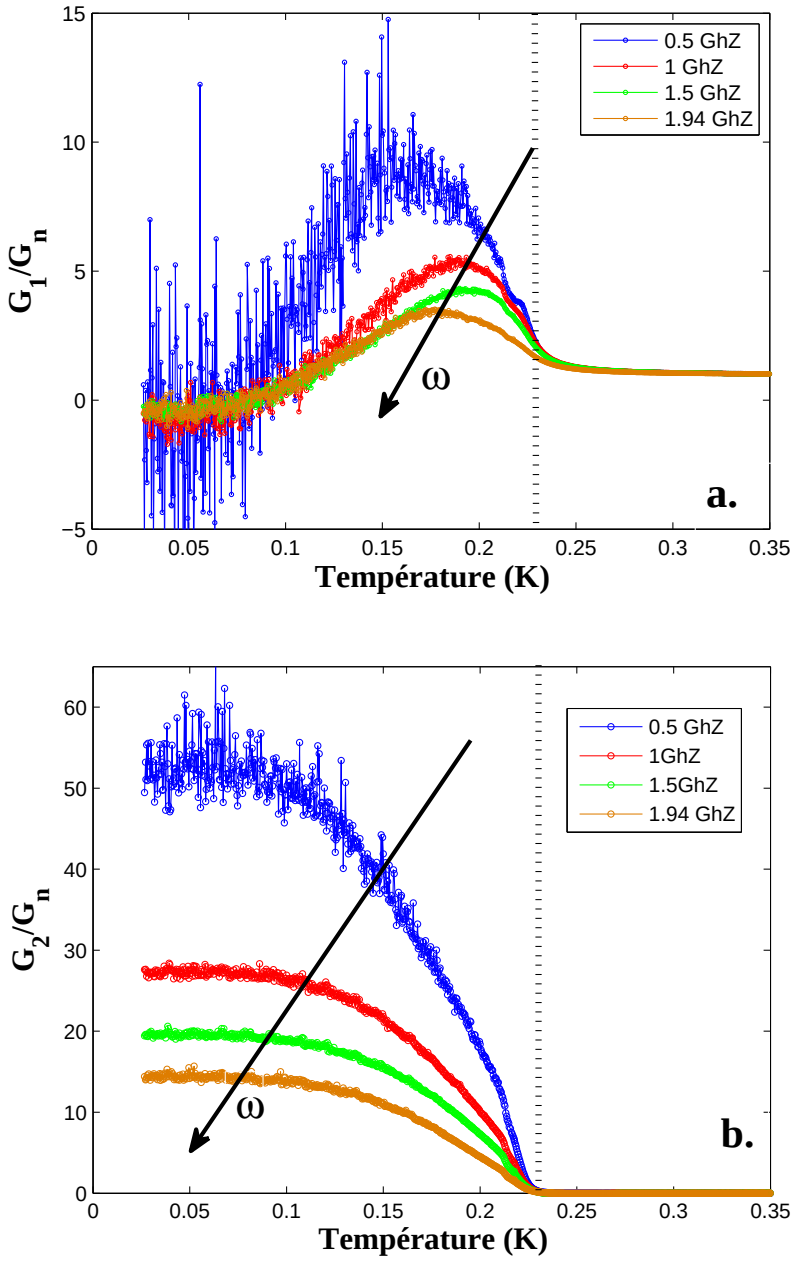

Figure 7.21 – Évolution de la conductance complexe G, normalisée par sa valeur à l'état normal (G_1 = Re(G) (a) et G_2 = Im(G) (b)) en fonction de la température, à différentes fréquences. La droite verticale correspond à la température à $R_n/2$, où R_n est la résistance à l'état normal.

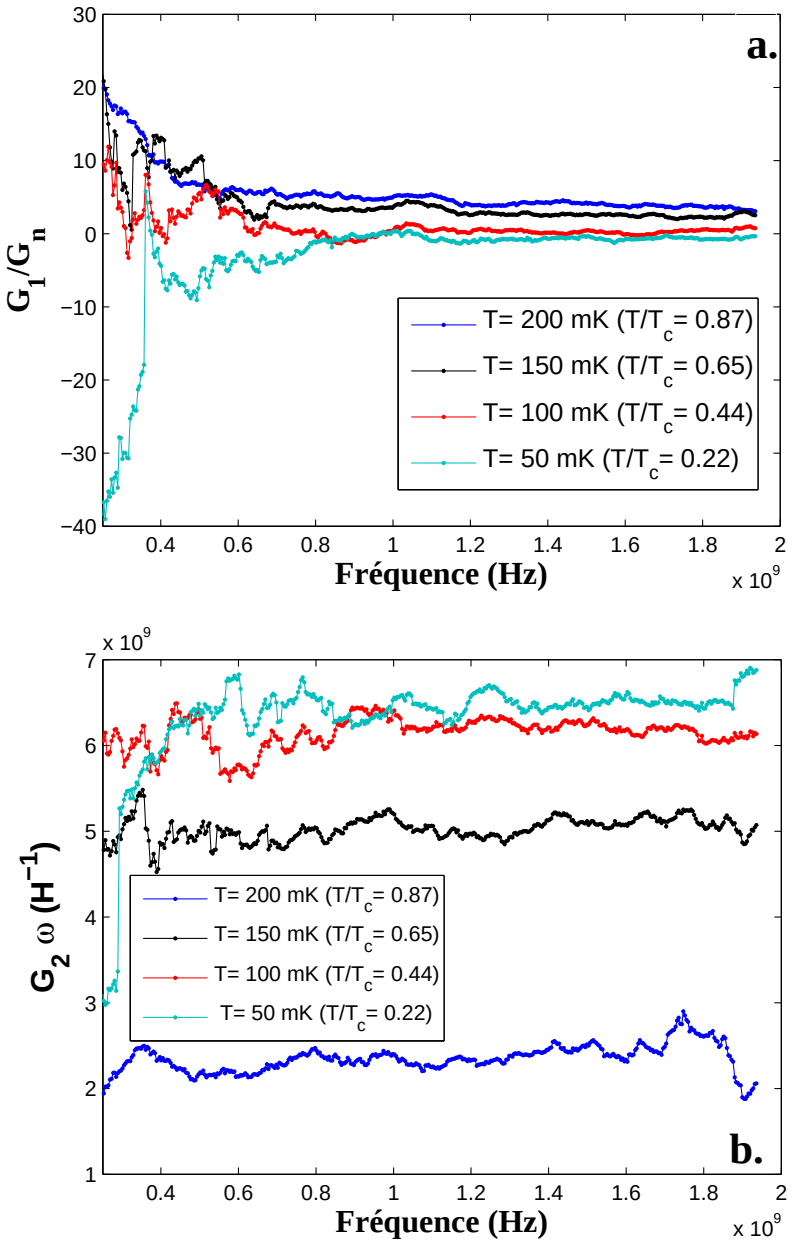

Figure 7.22 – Évolution en fréquence de la conductance G_1 (a) et du produit $G_2\omega \propto 1/L$ (b) à différentes températures.

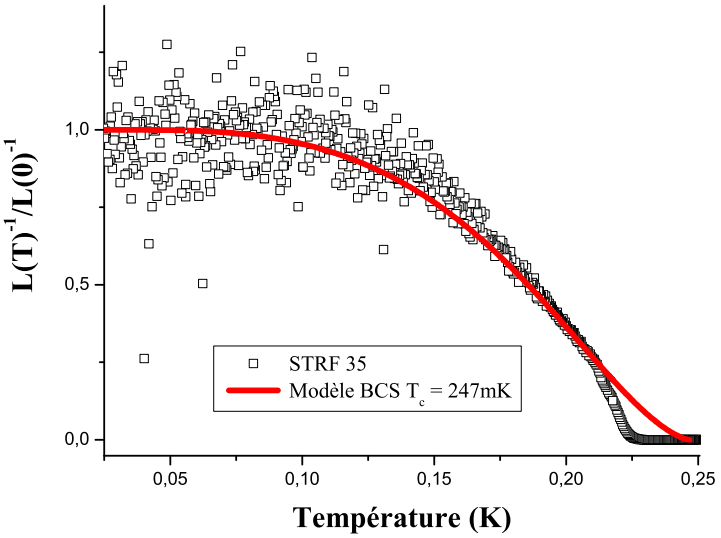

Figure 7.23 – Évolution en température de l'inductance cinétique L_S, normalisée par la valeur imposée à T_3, extraite de la dépendance en fréquence de G_2. La courbe rouge correspond à un ajustement de l'évolution en température par la théorie BCS avec T_c= 247 mK, ce qui correspond à une inductance $L_s(0)$= 5.6 nH/□, tout à fait comparable à l'inductance imposée à T = T_3 par notre calibration.

Cependant, qualitativement, nous observons $(G_1/G_n)_{max} \propto \log 1/\omega$ comme prédit par la théorie de Mattis-Bardeen (éq. (5.11), fig. (7.24)). L'amplitude de ce pic est néanmoins plus importante que celle prédite par la théorie de Mattis-Bardeen. Il serait intéressant de voir si la théorie de Zimmermann (extension de la théorie de Mattis-Bardeen à une limite de plus fort désordre) [Zimmermann et al., 1991] permettrait une meilleur description de ces résultats.

7.5.2 Autres échantillons

Nous avons appliqué la même méthode de calibration pour les autres échantillons STRF (24, 31, et 32).

Un exemple de résultats obtenus est donné sur la figure (7.26), où la réponse électrodynamique est tracée sous la forme de $G_1(T)$ et $G_2(T)$ dans le cas de l'échantillon STRF 31.

On voit tout d'abord que les caractéristiques générales qui ont été décrites dans le paragraphe précédent se retrouvent également pour ce film :

- On obtient une réponse de l'échantillon variable en fréquence pour $T < T_c$.
- $G_1(T)$ présente un pic vers 0.7-0.8×T_c, conformément à ce que l'on peut attendre pour la position du pic de cohérence. Par ailleurs, l'amplitude de ce pic diminue à mesure que la fréquence augmente.
- $G_2(T)$ augmente avec la fréquence dans la limite des très basses températures.

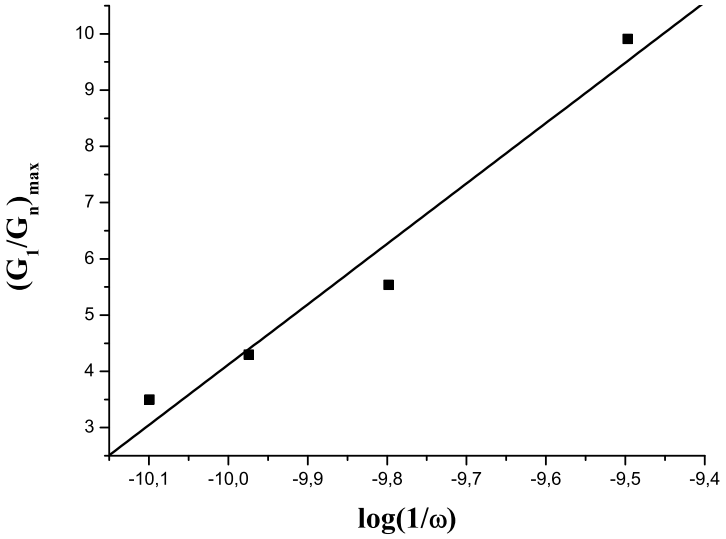

Figure 7.24 – Évolution du maximum du pic de cohérence en fonction de la fréquence, pour les différentes fréquences données sur la figure (7.21).

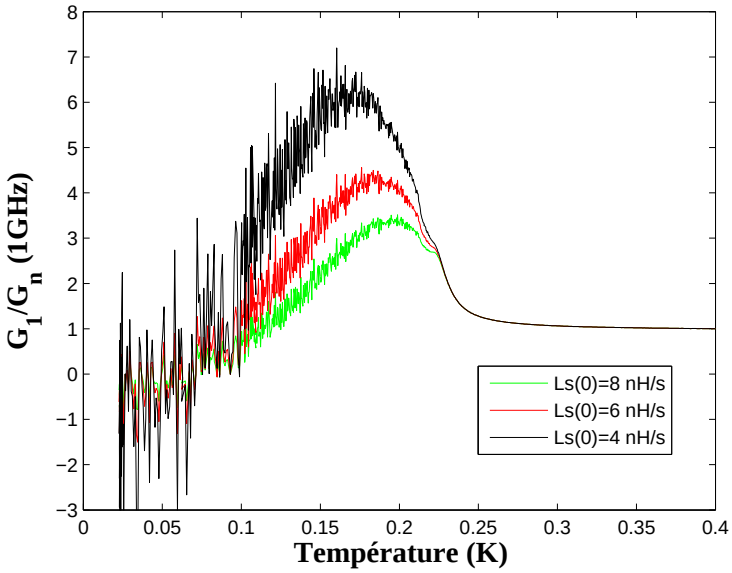

Figure 7.25 – Évolution de la partie réelle de la conductance G_1/G_n (f=1 GHz) en fonction de la température, pour l'échantillon STRF 35, et pour différentes valeurs de l'inductance cinétique Ls(0) imposée dans la calibration à basse température.

Cependant, il existe des incohérences dans ces résultats, en premier lieu desquels l'extrapolation à une valeur finie de $G_1(T)$ lorsque la température tend vers 0. Ceci est confirmé par le fait que nous n'arrivons pas à ajuster la réponse en fréquence de Z avec un circuit RL simple.

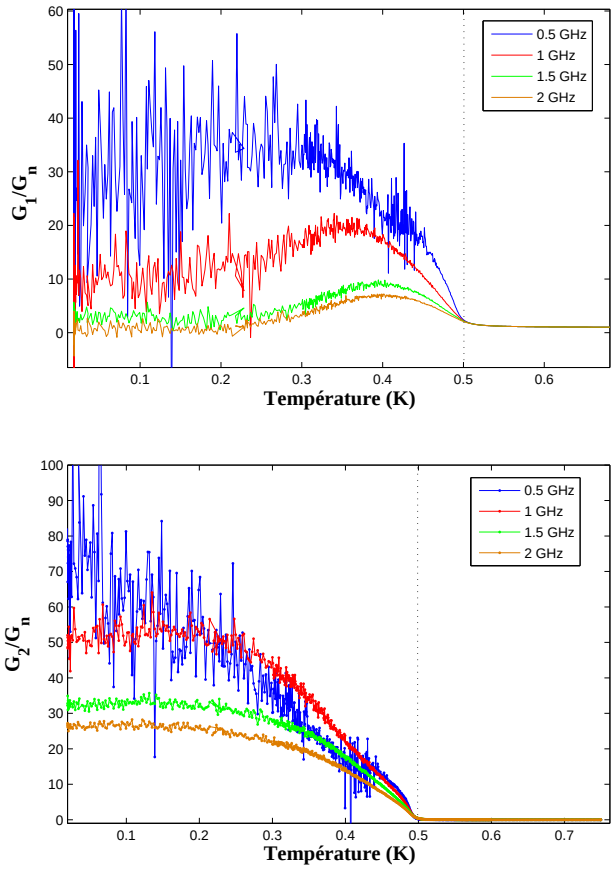

Figure 7.26 – Évolution de la conductivité impédance complexe Z, normalisée par la conductivité à l ($\sigma_1 = \mathrm{Re}(\sigma)$ et $\sigma_2 = \mathrm{Im}(\sigma)$) en fonction de la température, à différentes fréquences, pour l'échantillon STRF 31. La droite verticale correspond à la température où la résistance R est égale à $R_n/2$, avec R_n la résistance à l'état normal.

Ceci peut se comprendre par le fait que, pour ces échantillons, la modélisation électrocinétique introduite jusqu'à présent n'est pas complète. En effet, aux épaisseurs considérées, la supraconductivité dans le film de a-Nb_xSi_{1-x} en regard du platine n'est pas complètement supprimée. La prise en compte de l'effet de proximité à cette interface complique alors fortement la description des échantillons et les hypothèses nécessaires pour la calibration. Nous ne pouvons pas, entre autres, considérer que les propriétés supraconductrices sont uniformes dans tout l'échantillon.

Pour extraire les propriétés du film de a-Nb_xSi_{1-x} d'intérêt, il faudra, par la suite, a minima, les modéliser sous la forme schématisée sur la figure (7.27) : tout se passe en réalité comme si nous avions deux films de a-Nb_xSi_{1-x} avec des propriétés supraconductrices distinctes. Cette description complique le processus de calibration, mais nous pensons que nous pourrons néanmoins, à terme, en déduire la réponse fréquentielle de l'échantillon.

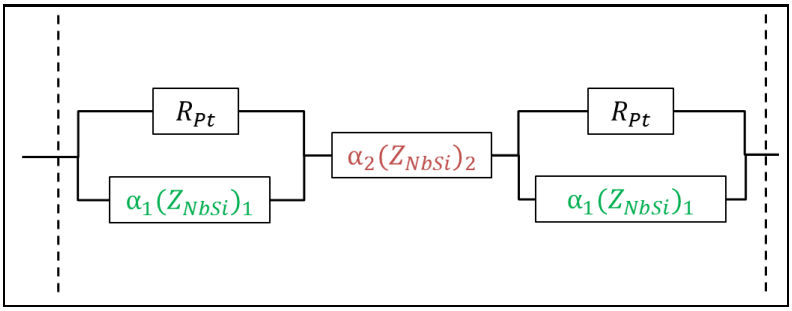

Figure 7.27 – Modélisation électrocinétique des échantillons tenant compte de l'effet de proximité avec le film de platine. Les coefficients α_1 et α_2 sont des facteurs géométriques, Z_1 et Z_2 sont les impédances par carré de films de a-NbSi distincts, R_{Pt} la résistance du film de platine. Les droites verticales en pointillés définissent les plans de référence de la calibration, précédemment introduits.

7.6 Conclusions et perspectives

7.6.1 Conclusions

Nous avons développé un dispositif de réflectométrie, fonctionnant à très basse température (T < 50 mK), sur une large gamme de fréquence (plusieurs GHz), et permettant la détermination de l'impédance complexe $Z(T, \omega)$ d'un échantillon.

L'avantage d'un tel dispositif réside dans son adaptabilité, tant en fréquence que pour différents types d'échantillons.

En effet, la gamme de fréquence accessible dépend uniquement des caractéristiques des éléments micro-onde du circuit (coupleur, amplificateur, etc.) qui peuvent être changés au gré des nécessités de l'expérience.

La géométrie que nous avons choisie pour les échantillons est également un point fort de l'expérience, dans la mesure où un simple ajustement de leurs dimensions permet une adaptation d'impédance, et donc une très bonne sensibilité de la mesure. Ceci se distingue de la géométrie de type Corbino habituellement utilisée pour les mesures d'impédance à haute fréquence, où la géométrie fixe des échantillons permet plus difficilement de réaliser cette condition d'adaptation d'impédance. Dans le cas qui nous intéresse, des échantillons proches de la TSI pourraient notamment être mesurés sans difficulté particulière.

Par ailleurs, nous avons développé une méthode originale de calibration et d'analyse de ces mesures. Celle-ci permet en effet de calibrer le dispositif de mesure in situ - à basse température - en utilisant l'échantillon lui-même comme référence. Comme nous l'avons vu, ceci permet une définition des plans de calibration au plus proche de l'échantillon, rendant la calibration très précise puisque l'on s'affranchit alors de tout l'environnement micro-onde de celui-ci. Le succès d'une telle calibration est toutefois contraint par la validité des hypothèses que nous devons effectuer sur la réponse électrodynamique des échantillons.

Nous avons appliqué ces développements à la mesure de la réponse électrodynamique de films minces supraconducteurs, l'objectif ultime étant de sonder, par la fréquence, la TSI.

Les résultats que nous avons présentés pour l'échantillon STRF 35 permettent une première validation des hypothèses de calibration et donc de la méthode développée. Si les détails quantitatifs de la réponse électrodynamique ainsi obtenue dépendent encore des hypothèses

de calibration, nous avons effectivement montré que ses caractéristiques générales sont robustes. Partant d'hypothèses de calibration simples, la réponse en fréquence des échantillons présentent des caractéristiques qui sont, non seulement cohérentes avec ces hypothèses initiales, mais vont au-delà du modèle injecté. Les résultats obtenus sont alors qualitativement compatibles avec ce qui a déjà été observé pour ce type de systèmes. Une analyse plus quantitative est néanmoins nécessaire afin de préciser les spécificités de notre système.

7.6.2 Perspectives

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que la qualité de la calibration dépend de la justesse des hypothèses introduites. Pour aller plus loin dans l'analyse, notamment quantitative, des résultats que nous avons obtenus, il nous semble nécessaire de raffiner les hypothèses décrivant la réponse de notre système aux températures de références. Ceci sera d'autant plus nécessaire que l'on sera proche de la TSI. Nous allons terminer ce chapitre en mentionnant différentes voies permettant d'appréhender ce problème, ainsi que des perspectives concernant les mesures gigahertz appliquées à l'étude de la TSI.

L'approche que nous avons considérée dans cette première étude a consisté à faire des hypothèses très simples sur la réponse électrodynamique de l'échantillon, en considérant une description électrocinétique en termes de résistance et d'inductance. On peut imaginer affiner cette description en formulant des hypothèses plus complexes, en lien par exemple avec les modèles théoriques décrivant la réponse électrodynamique de supraconducteurs désordonnés.

D'un point de vue plus expérimental, la mesure de résonateurs supraconducteurs en Nb_xSi_{1-x} permettrait une détermination de l'inductance cinétique des échantillons, pouvant ainsi contraindre fortement l'hypothèse sur l'état supraconducteur ($T = T_3$). Ces expériences permettraient alors de dépasser - le cas échéant - l'estimation BCS considérée lors de cette thèse. Notons toutefois que l'utilisation de résonateurs ne s'applique pas à des échantillons non-supraconducteurs.

Parallèlement au travail présenté dans ce manuscrit, le groupe travaille sur le développement d'un calibreur cryogénique, dont le but est de pouvoir mesurer successivement - **lors d'un unique refroidissement du dispositif** - trois références étalonnées et l'échantillon [Diener et al., 2013]. Il nous semble que l'approche développée est complémentaire de ce nouveau dispositif. En effet, les mesures utilisant ce calibreur permettraient d'obtenir la réponse $Z(\omega, T)$ de l'échantillon sans hypothèse préalable et sans limitation sur la nature (supraconductrice ou non) de l'échantillon. En particulier, elles permettraient de déterminer - sans ambiguïté - $Z(\omega, T_1)$, $Z(\omega, T_2)$ et $Z(\omega, T_3)$. En revanche, la technique de calibration utilisant l'échantillon comme référence présente l'avantage de s'affranchir de tout l'environnement micro-onde de l'échantillon, ce qui permet - a priori - une meilleure sensibilité, une fois les bonnes hypothèses de calibration introduites.

Ces différents éléments permettent donc d'être confiant sur le prolongement du travail initié lors de cette thèse, dans une limite de plus fort désordre, aux abords de la TSI. Une telle étude permettrait notamment d'aborder certaines des questions posées à la fin du chapitre (4), sur la nature des différents régimes physiques mis en évidence par les mesures de transport à basse fréquence. En particulier :

- **Existence de paires de Cooper incohérentes** - La mesure d'une densité superfluide $n_s(\omega)$ dans le régime Métal 1 permettrait de valider notre interprétation de ce

régime en termes de fluctuations supraconductrices. La détermination de $Z(\omega)$ dans le régime Métal 2 permettrait également de sonder l'existence d'éventuelles corrélations supraconductrices dans ce second régime dissipatif.

- **Nature des états supraconducteur et Métal 1** - En lien avec ce premier point, nous avons posé la question de l'existence d'inhomogénéités électroniques dans l'état supraconducteur, qui semblent persister dans le régime Métal 1. Si tel est le cas, on pourrait s'attendre à une réponse électrocinétique bien spécifique : pour des zones supraconductrices connectées par effet Josephson, on pourrait très naïvement imaginer *une réponse à la fois inductive et capacitive* alors que dans le cas de régions supraconductrices couplées par effet de proximité, on pourrait s'attendre plutôt à *une réponse inductive et résistive*. Par extension, cette distinction permettrait de s'intéresser à la la nature de la matrice - métallique ou isolante - du Métal 1.

- **Destruction de la transition Berezinski-Kosterlitz-Thouless (BKT)** - Si l'existence du régime Métal 1 est effectivement reliée à une réduction de la dimensionnalité effective du système, il est envisageable que la transition entre l'état supraconducteur et ce régime dissipatif coïncide avec l'annulation de la température critique de la transition BKT. Les études en fréquence permettraient alors de suivre l'affaiblissement de T_{BKT} jusqu'à son annulation.

- **Existence de fluctuations quantiques** - D'une façon plus générale, la question du rôle éventuel des fluctuations quantiques dans ces différentes régimes pourrait être mis en évidence, comme nous l'avons vu au chapitre (5), pour des fréquences telles que $\hbar\omega \gg k_B T$.

Conclusion

Durant cette thèse, nous nous sommes intéressés à la problématique de la Transition Supraconducteur-Isolant (TSI), dans le but de comprendre la destruction de la supraconductivité par le désordre dans les films minces très désordonnés.

Notre approche expérimentale a consisté à étudier, par des mesures de transport à très basse température, les propriétés de films minces amorphes de Nb_xSi_{1-x}. Nous avons d'une part effectué des mesures de résistance à basse fréquence et d'autre part initié des mesures dynamiques à haute fréquence dont le but final est d'obtenir l'impédance complexe $Z(\omega)$ du système à travers la TSI.

Concernant les mesures de transport à basse fréquence, nous avons mené une étude très fine de la destruction de la supraconductivité grâce à l'utilisation du recuit. Ce paramètre induit en effet une variation contrôlée et progressive du désordre microscopique de notre système. Nous avons ainsi mis en évidence deux régimes dissipatifs dans la limite $T \to 0$, en plus des états supraconducteur et isolant attendus théoriquement. L'établissement d'un ensemble de critères permettant une distinction quantitative des quatre régimes identifiés constitue un des résultats importants de cette thèse. À la lumière de ces critères, nous avons réanalysé un ensemble conséquent d'échantillons précédemment mesurés par le groupe. Nous avons alors pu établir le diagramme de phase des films minces de a-Nb_xSi_{1-x}, en fonction de leur épaisseur et leur niveau de désordre.

Parallèlement à cette étude des propriétés statiques, nous avons développé un dispositif de mesure de réflectométrie, fonctionnant dans la gamme des micro-ondes (quelques GHz) et à très basse température (T $\sim$ 20 mK), afin d'étudier la réponse dynamique des films minces de a-Nb_xSi_{1-x}. La calibration d'un tel dispositif étant cruciale pour la détermination de l'impédance complexe $Z(\omega)$ de ces films, une part importante de ce travail de thèse a été consacrée au développement d'une méthode de calibration, utilisant non pas la mesure de références externes comme il est habituel pour ce type de mesures, mais un ensemble d'hypothèses sur la réponse électrodynamique des échantillons. La méthode de calibration ainsi développée s'affranchit complètement de l'environnement micro-onde de l'échantillon. Nous pensons que les résultats obtenus lors de cette thèse permettent une première validation de cette démarche originale et constitue donc un premier pas vers la détermination de la réponse dynamique *absolue* du système à très basse température.

La perspective d'une étude dynamique - *par la connaissance de la valeur absolue de* $Z(\omega)$ - à travers la TSI est particulièrement enthousiasmante. En lien avec le diagramme de phase que nous avons établi par les mesures de transport à basse fréquence, la connaissance de l'impédance $Z(\omega)$ dans les différents régimes identifiés permettrait en effet de dépasser la description phénoménologique que nous avons considérée dans ce travail, et autoriserait une

approche plus "microscopique" de ces différents régimes.

Nous avons interprété l'existence du Métal 1 par la persistance de fluctuations supraconductrices incohérentes, résistant à la destruction de la supraconductivité globale. L'existence de fluctuations dans les régimes Métal 2 et Isolant peut être également envisagée. Les mesures dynamiques constituent un outil particulièrement adapté pour l'identification de telles fluctuations. En particulier, l'association des mesures statique et dynamique dans les deux limites suivantes nous paraît extrêmement intéressante :

- **la limite des films très minces** - le diagramme de phase semble montrer une extension plus importante du Métal 1 à faible épaisseur. On peut imaginer que le régime de fluctuations soit donc d'autant plus marqué pour les films les plus minces. La mise en évidence de différents régimes de fluctuations pourrait alors caractériser une possible transition Métal 1 - Isolant.

- **la limite de films très épais** - dans l'autre limite pour l'existence du Métal 1, la disparition de ces mêmes fluctuations pourrait être interprétée comme une transition directe Supraconducteur - Métal 2.

Par ailleurs, le prolongement de ces mesures, basse fréquence comme haute fréquence, en champ magnétique apporterait un éclairage supplémentaire sur les différents régimes identifiés lors de cette thèse. La comparaison des transitions induites par le désordre et par un champ magnétique permettrait notamment d'affiner la description en termes de fluctuations supraconductrices.

Enfin, considérer une approche dynamique par les techniques de mesure de bruit permettrait une caractérisation complémentaire de la nature microscopique des différentes phases, et en particulier du caractère fermionique ou bosonique des excitations en présence.

Annexe A

Fabrications des échantillons micro-ondes

Nous allons préciser le processus de fabrications des échantillons développé pour les mesures de reflectométrie micro-ondes.

Plan de masse en or

Nous déposons sur l'une des faces du substrat de saphir (face 1) un film d'or (200 nm) sur une sous-couche d'accroche de titane (2 nm), définissant le plan de masse.

Électrodes en platine

Après le dépôt d'un film de platine (25 nm) sur une sous-couche de titane (2 nm), les électrodes sont structurées par lithographie optique :

Lithographie optique

- Déshydratation de l'échantillon pendant 5 min à 115°
- Enrésinement face 2 (résine Shipley S1813)
- Recuit pendant 1 min à 110°
- Insolation avec masque sur aligneur MJB4 (soft contact) pendant 7 s
- Détourage : insolation pendant 30 s
- Développement pendant 20 s (Shipley MF319)

Gravure physique

Le film de platine est ensuite gravé par *Ion Beam Etching* (IBE) avec des ions argon (Angle de gravure 45°).

Après cette étape de gravure, les résidus de résine est supprimés par un bain d'acétone et un plasma oxygène (20 min, P=0.7 mbar, power=80%).

Ligne de transmission en or

Lithographie optique

- Déshydratation de l'échantillon pendant 5 min à 115°
- Enrésinement face 2 (résine AZ 5214)
- Recuit pendant 55 s à 110°
- Insolation avec masque sur aligneur MJB4 (soft contact) 7 s
- Recuit d'inversion (2 min à 120°)
- Insolation avec aligneur MJB4 sans masque
- Développement (AZ developper / ODI (1 :1) pendant 25 s)
- Détourage humique à l'acétone, séchage à l'isopropanol

Évaporation Ti/Au (2/200 nm)

Lift-Off

- Plasma oxygène (5 min, P=0.7 mbar, power=80%))
- Lift-Off
- Nettoyage de la résine avec un bain d'AZ remover (10min), et un plasma oxygène (20 min, P=0.7 mbar, power=80%)

Film de NbSi

Lithographie optique

- Déshydratation de l'échantillon pendant 5 min à 115°
- Enrésinement face 2 (résine AZ 5214)
- Recuit pendant 55 s à 110°
- Insolation avec masque sur aligneur MJB4 (soft contact) 7s
- Recuit d'inversion (2 min à 120°)
- Insolation sur aligneur MJB4 sans masque
- Développement (AZ developper / ODI (1 :1) pendant 25s)
- Plasma oxygène (5 min, P=0.7 mbar, power=80%)

Evaporation du film de NbSi

- Évaporation du film de NbSi
- Évaporation d'une sur-couche de SiO (25 nm) pour protection du film contre l'oxydation

Lift-off

Annexe B

Calcul du Fabry-Pérot de l'échantillon

Définitions des matrices S et T

Les matrices de diffusion S et de transfert T peuvent être définies pour un nombre quelconque de ports. Nous allons nous restreindre aux systèmes à deux ports.

Figure B.1 – Représentation d'un système à deux ports.

où les amplitudes complexes incidentes a_i et réfléchies b_i sont définies par :

$$a1 = \frac{V_1^+}{\sqrt{Z_0}} = I_1^+\sqrt{Z_0}, a2 = \frac{V_2^+}{\sqrt{Z_0}} = I_2^+\sqrt{Z_0} \tag{B.1}$$

$$b1 = \frac{V_1^-}{\sqrt{Z_0}} = I_1^-\sqrt{Z_0}, b2 = \frac{V_2^-}{\sqrt{Z_0}} = I_2^-\sqrt{Z_0} \tag{B.2}$$

I_i et V_i sont les courants et potentiels incidents et réfléchis au port i, Z_0 est l'impédance caractéristique du système.

Matrice S

La matrice de diffusion S permet de relier les amplitudes des ondes réfléchies $\begin{pmatrix} b_1 \\ b_2 \end{pmatrix}$ à celles des ondes incidentes $\begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix}$:

$$\begin{pmatrix} b_1 \\ b_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix} \tag{B.3}$$

Matrice T

La matrice de transfert T permet de relier les amplitudes $\begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix}$ des ondes incidente et réfléchie au port (1) à celles $\begin{pmatrix} a_2 \\ b_2 \end{pmatrix}$ du port (2) :

$$\begin{pmatrix} b_1 \\ a_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_2 \\ b_2 \end{pmatrix} \tag{B.4}$$

Passages S $\rightleftarrows$ T

Relation de passage S $\rightarrow$ T

$$T_{11}=\frac{-det(S)}{S_{21}}$$
$$T_{12}=\frac{S_{11}}{S_{21}}$$
$$T_{21}=\frac{-S_{22}}{S_{21}}$$
$$T_{22}=\frac{1}{S_{21}}$$

Relation de passage T $\rightarrow$ S

$$S_{11} = T_{12}/T_{22}$$
$$S_{12} = det(T)/T_{22}$$
$$S_{21} = 1/T_{22}$$
$$S_{22} = -T_{21}/T_{22}$$

Quelques matrices usuelles

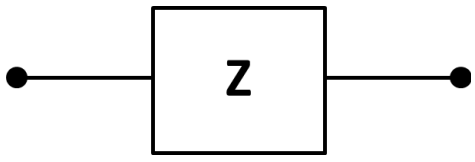

Figure B.2 – Élément d'impédance Z.

Pour un élément d'impédance Z, les matrices S et T sont données par :

$$S = \begin{pmatrix} Z/(Z+2Z_0) & 2Z_0/(2Z_0+Z) \\ 2Z_0/(2Z_0+Z) & Z/(Z+2Z_0) \end{pmatrix} \tag{B.5}$$

$$T = \begin{pmatrix} 1 - \dfrac{Z}{2Z_0} & \dfrac{Z}{2Z_0} \\ -\dfrac{Z}{2Z_0} & 1 + \dfrac{Z}{2Z_0} \end{pmatrix} \tag{B.6}$$

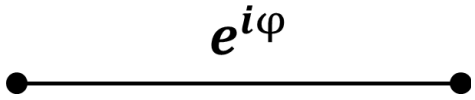

Figure B.3 – Élément introduisant un déphasage ϕ.

Pour un élément introduisant un déphasage ϕ, les matrices S et T sont données par :

$$S = \begin{pmatrix} 0 & e^{i\phi} \\ e^{i\phi} & 0 \end{pmatrix} \tag{B.7}$$

$$T = \begin{pmatrix} e^{i\phi} & 0 \\ 0 & e^{-i\phi} \end{pmatrix} \tag{B.8}$$

Application : détermination du coefficient de réflexion d'un Fabry-Pérot

Nous avons vu au chapitre (7) que l'échantillon au bout de la ligne de transmission est, en réalité, constitué de l'ensemble film de a-Nb_xSi_{1-x}, ligne de longueur L_2, ainsi que schématisé sur la figure (B.4). Grâce aux matrices de transfert précédemment décrites, nous allons pouvoir déterminer le coefficient de réflexion équivalent Γ_{ech} de cet interféromètre de Fabry-Pérot en fonction de l'impédance Z du film.

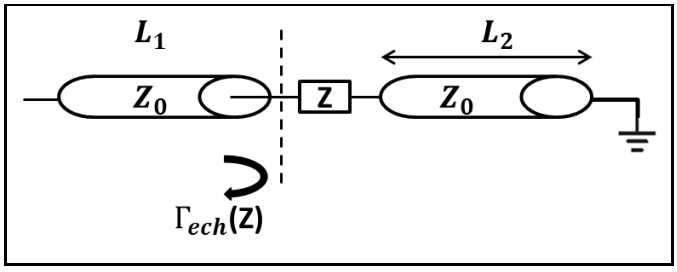

Figure B.4 – Modélisation du dispositif de mesure par un système à 3 ports : l'excitation RF (1), la détection (2) et l'échantillon d'impédance Z. Les amplitudes a_i et b_i décrivent les amplitudes incidentes et réfléchies en chacun de ces ports.

La matrice de transfert correspondant à l'ensemble de l'échantillon est telle que :

$$T = T_{film} \times T_{L_2} = \begin{pmatrix} 1 - \dfrac{Z}{2Z_0} & \dfrac{Z}{2Z_0} \\ -\dfrac{Z}{2Z_0} & 1 + \dfrac{Z}{2Z_0} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\phi} & 0 \\ 0 & e^{-i\phi} \end{pmatrix} \tag{B.9}$$

$$= \begin{pmatrix} \left(1 - \dfrac{Z}{2Z_0}\right) e^{i\phi} & \dfrac{Z}{2Z_0} e^{-i\phi} \\ -\dfrac{Z}{2Z_0} e^{i\phi} & \left(1 + \dfrac{Z}{2Z_0}\right) e^{-i\phi} \end{pmatrix} \tag{B.10}$$

On a alors le coefficient de réflexion en prenant en compte la condition de réflexion totale ($b_2 = -a_2$) sur le plan de masse après le conducteur L_2 (équation 7.2) :

$$\Gamma_{ech} = \frac{e^{i\phi}\left(1 - Z/(2Z_0)\right) - Ze^{-i\phi}/(2Z_0)}{-Ze^{i\phi}/(2Z_0) - e^{-i\phi}\left(1 + Z/(2Z_0)\right)} \tag{B.11}$$

$$\boldsymbol{\Gamma_{ech}} = \frac{\boldsymbol{Z\left(1 + e^{2i\phi}\right) - 2Z_0 e^{i\phi}}}{\boldsymbol{Z\left(1 + e^{2i\phi}\right) + 2Z_0}} \tag{B.12}$$

Annexe C

Modélisation du dispositif de réflectométrie et calibration

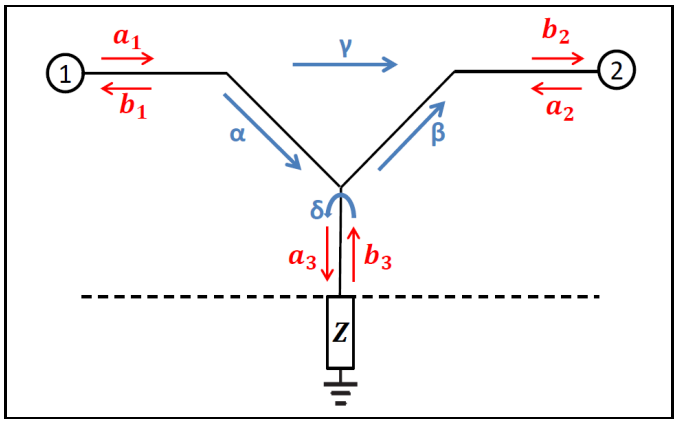

Figure C.1 – Modélisation du dispositif de mesure par un système à 3 ports : l'excitation RF (1), la détection (2) et l'échantillon d'impédance Z. Les amplitudes a_i et b_i décrivent les amplitudes incidentes et réfléchies en chacun de ces ports.

Expression du coefficient de réflexion mesuré en fonction du coefficient de l'échantillon

Partant de la modélisation du dispositif de mesure à 3 ports, et en supposant que les deux ports du VNA sont adaptés, de telle sorte que l'on peut négliger b_1 et a_2, on peut écrire les relations entre les différentes amplitudes :

$$\begin{cases} a_3 &= \delta b_3 + \alpha a_1 \\ b_2 &= \gamma a_1 + \beta b_3 \end{cases}$$

En introduisant $\Gamma_M = \frac{b_2}{a_1}$ et $\Gamma_{ech} = \frac{b_3}{a_3}$, on obtient :

$$\begin{cases} \frac{a_3}{a_1} &= \delta \Gamma_{ech} \frac{a_3}{a_1} + \alpha \\ \Gamma_M &= \gamma + \beta \Gamma_{ech} \frac{a_3}{a_1} \end{cases}$$

D'où, l'équation (7.3) :

$$\Gamma_M = \gamma + \frac{\beta\alpha}{1-\Gamma_{ech}\delta}\Gamma_{ech}$$

$$\boldsymbol{\Gamma_M = \gamma + \frac{\widetilde{\alpha}\Gamma_{ech}}{1-\Gamma_{ech}\delta}}$$

avec $\widetilde{\alpha} = \alpha\beta$.

Calibration

On peut alors appliquer cette relation aux trois références. Ceux-ci ont des coefficients de réflexion théoriques Γ_1, Γ_2 et Γ_3 et correspondent aux coefficients de réflexion mesurés $\Gamma_{M,1}$, $\Gamma_{M,2}$ et $\Gamma_{M,3}$ respectivement :

$$\begin{cases} \Gamma_{M,1} = \gamma + \frac{\widetilde{\alpha}\Gamma_1}{1-\Gamma_1\delta} \\ \Gamma_{M,2} = \gamma + \frac{\widetilde{\alpha}\Gamma_2}{1-\Gamma_2\delta} \\ \Gamma_{M,3} = \gamma + \frac{\widetilde{\alpha}\Gamma_3}{1-\Gamma_3\delta} \end{cases}$$

La résolution de ce système donne :

$$\begin{cases} \widetilde{\alpha} = \frac{\Gamma_{M,1}-\Gamma_{M,2}}{\Gamma_1-\Gamma_2}\ \frac{(\Gamma_1-\Gamma_3)(\Gamma_2-\Gamma_3+A\Gamma_1-A\Gamma_2)}{(A\Gamma_1-\Gamma_3)^2} \\ \gamma = \Gamma_{M,3} + \frac{\Gamma_3(\Gamma_{M,1}-\Gamma_{M,2})(\Gamma_2-\Gamma_3+A\Gamma_1-A\Gamma_2)}{A(\Gamma_1-\Gamma_2)(A\Gamma_1-\Gamma_3)} \\ \delta = \frac{A-1}{A\Gamma_1-\Gamma_3} \end{cases}$$

où on a posé :

$$A = \frac{\Gamma_{M,1}-\Gamma_{M,2}}{\Gamma_{M,2}-\Gamma_{M,3}}\ \frac{\Gamma_2-\Gamma_3}{\Gamma_1-\Gamma_2}$$

Annexe D

Calibration prenant en compte les interférences (Fabry-Pérot)

Nous avons vu (section (7.2.2) et annexe (C)) qu'un système micro-onde pouvait être calibré si on connaît les coefficients de réflexion associés à trois références distinctes. Cependant, dans le cas de la méthode de calibration que nous avons développée, les références ne sont pas en bout de ligne du dispositif, mais insérées au sein d'une ligne microstrip. Ceci induit des réflexions multiples de l'onde entre l'échantillon et la masse, comme au sein d'un interféromètre de Fabry-Pérot. Nous avons décrit cet effet en (7.1.3).

Pour extraire la réponse d'un échantillon dans ces conditions, comme nous l'avons expliqué dans le paragraphe (7.4.3.2), il faut alors combiner les équations (7.2) et (7.3), pour obtenir l'équation (7.8). La résolution analytique n'étant pas directe, nous avons résolu ce systèmes d'équations par un programme Mathematica que nous donnons ci-après. **L'expression de l'impédance Z de l'échantillon est donnée par la dernière ligne du programme. On voit que son expression ne dépend plus de ϕ. La calibration par trois références subissant les mêmes effets d'interférence que l'échantillon permet de s'affranchir complètement des effets d'interférence.**

La correspondance entre les notations du programme et les notations du manuscrit sont les suivantes :

Manuscrit	Programme Mathematica
$\Gamma_{M,1}$	gammaM1
$\Gamma_{M,2}$	gammaM2
$\Gamma_{M,3}$	gammaM3
$\Gamma_{ech,1}$	Y1
$\Gamma_{ech,2}$	Y2
$\Gamma_{ech,3}$	Y3
Γ_{ech}	gammaFP
$\Gamma = \frac{Z-Z_0}{Z+Z_0}$	gammaSimple
Z	Zsimple

```
In[1]:= Solve[X1 == (gammaM1 - gamma) / (alphaT + delta * (gammaM1 - gamma)) &&
          X2 == (gammaM2 - gamma) / (alphaT + delta * (gammaM2 - gamma)) &&
          X3 == (gammaM3 - gamma) / (alphaT + delta * (gammaM3 - gamma)), {alphaT, gamma, delta}]

Out[1]= {{alphaT →
           -((gammaM2 - gammaM3) (gammaM1^2 - gammaM1 gammaM2 - gammaM1 gammaM3 + gammaM2 gammaM3)
               (X2 - X3) (X1^2 - X1 X2 - X1 X3 + X2 X3)) /
             (-gammaM1^2 X1^2 X2^2 + 2 gammaM1 gammaM2 X1^2 X2^2 - gammaM2^2 X1^2 X2^2 +
               2 gammaM1^2 X1^2 X2 X3 - 2 gammaM1 gammaM2 X1^2 X2 X3 - 2 gammaM1 gammaM3 X1^2 X2 X3 +
               2 gammaM2 gammaM3 X1^2 X2 X3 - 2 gammaM1 gammaM2 X1 X2^2 X3 + 2 gammaM2^2 X1 X2^2 X3 +
               2 gammaM1 gammaM3 X1 X2^2 X3 - 2 gammaM2 gammaM3 X1 X2^2 X3 - gammaM1^2 X1^2 X3^2 +
               2 gammaM1 gammaM3 X1^2 X3^2 - gammaM3^2 X1^2 X3^2 + 2 gammaM1 gammaM2 X1 X2 X3^2 -
               2 gammaM1 gammaM3 X1 X2 X3^2 - 2 gammaM2 gammaM3 X1 X2 X3^2 + 2 gammaM3^2 X1 X2 X3^2 -
               gammaM2^2 X2^2 X3^2 + 2 gammaM2 gammaM3 X2^2 X3^2 - gammaM3^2 X2^2 X3^2),
         gamma → (gammaM1 gammaM3 X1 X2 - gammaM2 gammaM3 X1 X2 - gammaM1 gammaM2 X1 X3 +
             gammaM2 gammaM3 X1 X3 + gammaM1 gammaM2 X2 X3 - gammaM1 gammaM3 X2 X3) /
           (gammaM1 X1 X2 - gammaM2 X1 X2 - gammaM1 X1 X3 + gammaM3 X1 X3 +
             gammaM2 X2 X3 - gammaM3 X2 X3),
         delta → (gammaM2 X1 - gammaM3 X1 - gammaM1 X2 + gammaM3 X2 + gammaM1 X3 - gammaM2 X3) /
           (-gammaM1 X1 X2 + gammaM2 X1 X2 + gammaM1 X1 X3 -
             gammaM3 X1 X3 - gammaM2 X2 X3 + gammaM3 X2 X3)}}

In[2]:= Simplify[
          -((gammaM2 - gammaM3) (gammaM1^2 - gammaM1 gammaM2 - gammaM1 gammaM3 + gammaM2 gammaM3)
              (X2 - X3) (X1^2 - X1 X2 - X1 X3 + X2 X3)) /
            (-gammaM1^2 X1^2 X2^2 + 2 gammaM1 gammaM2 X1^2 X2^2 - gammaM2^2 X1^2 X2^2 +
              2 gammaM1^2 X1^2 X2 X3 - 2 gammaM1 gammaM2 X1^2 X2 X3 - 2 gammaM1 gammaM3 X1^2 X2 X3 +
              2 gammaM2 gammaM3 X1^2 X2 X3 - 2 gammaM1 gammaM2 X1 X2^2 X3 + 2 gammaM2^2 X1 X2^2 X3 +
              2 gammaM1 gammaM3 X1 X2^2 X3 - 2 gammaM2 gammaM3 X1 X2^2 X3 - gammaM1^2 X1^2 X3^2 +
              2 gammaM1 gammaM3 X1^2 X3^2 - gammaM3^2 X1^2 X3^2 + 2 gammaM1 gammaM2 X1 X2 X3^2 -
              2 gammaM1 gammaM3 X1 X2 X3^2 - 2 gammaM2 gammaM3 X1 X2 X3^2 + 2 gammaM3^2 X1 X2 X3^2 -
              gammaM2^2 X2^2 X3^2 + 2 gammaM2 gammaM3 X2^2 X3^2 - gammaM3^2 X2^2 X3^2)]

Out[2]= ((gammaM1 - gammaM2) (gammaM1 - gammaM3) (gammaM2 - gammaM3) (X1 - X2) (X1 - X3) (X2 - X3)) /
         (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3))^2

In[3]:= Simplify[(gammaM1 gammaM3 X1 X2 - gammaM2 gammaM3 X1 X2 - gammaM1 gammaM2 X1 X3 +
            gammaM2 gammaM3 X1 X3 + gammaM1 gammaM2 X2 X3 - gammaM1 gammaM3 X2 X3) / (gammaM1 X1 X2 -
            gammaM2 X1 X2 - gammaM1 X1 X3 + gammaM3 X1 X3 + gammaM2 X2 X3 - gammaM3 X2 X3)]

Out[3]= (gammaM2 gammaM3 X1 (-X2 + X3) + gammaM1 (gammaM3 X2 (X1 - X3) + gammaM2 (-X1 + X2) X3)) /
         (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3))

In[4]:= Simplify[(gammaM2 X1 - gammaM3 X1 - gammaM1 X2 + gammaM3 X2 + gammaM1 X3 - gammaM2 X3) /
          (-gammaM1 X1 X2 + gammaM2 X1 X2 + gammaM1 X1 X3 -
            gammaM3 X1 X3 - gammaM2 X2 X3 + gammaM3 X2 X3)]

Out[4]= (gammaM3 (X1 - X2) + gammaM1 (X2 - X3) + gammaM2 (-X1 + X3)) /
         (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3))

In[7]:= alpha1 = ((gammaM1 - gammaM2) (gammaM1 - gammaM3) (gammaM2 - gammaM3) (X1 - X2) (X1 - X3)
            (X2 - X3)) / (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3))^2;

In[8]:= gamma1 =
          (gammaM2 gammaM3 X1 (-X2 + X3) + gammaM1 (gammaM3 X2 (X1 - X3) + gammaM2 (-X1 + X2) X3)) /
           (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3));
```

In[11]:=
```
delta1 = (gammaM3 (X1 - X2) + gammaM1 (X2 - X3) + gammaM2 (-X1 + X3)) /
    (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3));
Simplify[(gammaM - gamma1) / (alpha1 + delta1 * (gammaM - gamma1))]
```

Out[12]=
```
(gammaM2 gammaM3 X1 (X2 - X3) +
   gammaM (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3)) +
   gammaM1 (gammaM2 (X1 - X2) X3 + gammaM3 X2 (-X1 + X3))) /
 (gammaM2 gammaM3 (X2 - X3) + gammaM1 (gammaM2 X1 - gammaM3 X1 - gammaM2 X2 + gammaM3 X3) +
   gammaM (gammaM3 X1 + gammaM1 X2 - gammaM3 X2 - gammaM1 X3 + gammaM2 (-X1 + X3)))
```

In[13]:=
```
Simplify[(gammaM2 gammaM3 X1 (X2 - X3) +
    gammaM (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3)) +
    gammaM1 (gammaM2 (X1 - X2) X3 + gammaM3 X2 (-X1 + X3))) /
  (gammaM2 gammaM3 (X2 - X3) + gammaM1 (gammaM2 X1 - gammaM3 X1 - gammaM2 X2 + gammaM3 X3) +
    gammaM (gammaM3 X1 + gammaM1 X2 - gammaM3 X2 - gammaM1 X3 + gammaM2 (-X1 + X3)))]
```

Out[13]=
```
(gammaM2 gammaM3 X1 (X2 - X3) +
   gammaM (gammaM1 X1 (X2 - X3) + gammaM3 (X1 - X2) X3 + gammaM2 X2 (-X1 + X3)) +
   gammaM1 (gammaM2 (X1 - X2) X3 + gammaM3 X2 (-X1 + X3))) /
 (gammaM2 gammaM3 (X2 - X3) + gammaM1 (gammaM2 X1 - gammaM3 X1 - gammaM2 X2 + gammaM3 X3) +
   gammaM (gammaM3 X1 + gammaM1 X2 - gammaM3 X2 - gammaM1 X3 + gammaM2 (-X1 + X3)))
```

In[15]:=
```
Y1 = (Z1 * (1 + Exp[2 I * phi]) - 2 * Z0 * Exp[2 I * phi]) / (Z1 * (1 + Exp[2 I * phi]) + 2 * Z0)
```

Out[15]=
$$\frac{-2\,e^{2\,i\,phi}\,Z0 + \left(1 + e^{2\,i\,phi}\right) Z1}{2\,Z0 + \left(1 + e^{2\,i\,phi}\right) Z1}$$

In[16]:=
```
Y2 = (Z2 * (1 + Exp[2 I * phi]) - 2 * Z0 * Exp[2 I * phi]) / (Z2 * (1 + Exp[2 I * phi]) + 2 * Z0);
```

In[14]:=
```
Y3 = (Z3 * (1 + Exp[2 I * phi]) - 2 * Z0 * Exp[2 I * phi]) / (Z3 * (1 + Exp[2 I * phi]) + 2 * Z0);
```

In[17]:=
```
Simplify[(gammaM2 gammaM3 Y1 (Y2 - Y3) +
    gammaM (gammaM1 Y1 (Y2 - Y3) + gammaM3 (Y1 - Y2) Y3 + gammaM2 Y2 (-Y1 + Y3)) +
    gammaM1 (gammaM2 (Y1 - Y2) Y3 + gammaM3 Y2 (-Y1 + Y3))) /
  (gammaM2 gammaM3 (Y2 - Y3) + gammaM1 (gammaM2 Y1 - gammaM3 Y1 - gammaM2 Y2 + gammaM3 Y3) +
    gammaM (gammaM3 Y1 + gammaM1 Y2 - gammaM3 Y2 - gammaM1 Y3 + gammaM2 (-Y1 + Y3)))]
```

Out[17]=
```
(gammaM1 gammaM3 Z1 Z2 - gammaM2 gammaM3 Z1 Z2 +
   e^(2 i phi) (gammaM1 (gammaM2 (Z1 - Z2) (2 Z0 - Z3) - gammaM3 (2 Z0 - Z2) (Z1 - Z3)) +
      gammaM (gammaM3 (Z1 - Z2) (2 Z0 - Z3) - gammaM2 (2 Z0 - Z2) (Z1 - Z3) +
         gammaM1 (2 Z0 - Z1) (Z2 - Z3)) + gammaM2 gammaM3 (2 Z0 - Z1) (Z2 - Z3)) -
   gammaM1 gammaM2 Z1 Z3 + gammaM2 gammaM3 Z1 Z3 + gammaM1 gammaM2 Z2 Z3 -
   gammaM1 gammaM3 Z2 Z3 +
   gammaM (gammaM2 Z2 (Z1 - Z3) + gammaM3 (-Z1 + Z2) Z3 + gammaM1 Z1 (-Z2 + Z3))) /
 (-gammaM2 gammaM3 (2 Z0 + Z1 + e^(2 i phi) Z1) (Z2 - Z3) + gammaM1
    (gammaM3 (2 Z0 + Z2 + e^(2 i phi) Z2) (Z1 - Z3) - gammaM2 (Z1 - Z2) (2 Z0 + Z3 + e^(2 i phi) Z3)) +
   gammaM (gammaM2 (2 Z0 + Z2 + e^(2 i phi) Z2) (Z1 - Z3) -
      gammaM1 (2 Z0 + Z1 + e^(2 i phi) Z1) (Z2 - Z3) - gammaM3 (Z1 - Z2) (2 Z0 + Z3 + e^(2 i phi) Z3)))
```

In[19]:=
```
gammaFP = (gammaM1 gammaM3 Z1 Z2 - gammaM2 gammaM3 Z1 Z2 +
      e^(2 i phi) (gammaM1 (gammaM2 (Z1 - Z2) (2 Z0 - Z3) - gammaM3 (2 Z0 - Z2) (Z1 - Z3)) +
         gammaM (gammaM3 (Z1 - Z2) (2 Z0 - Z3) - gammaM2 (2 Z0 - Z2) (Z1 - Z3) +
            gammaM1 (2 Z0 - Z1) (Z2 - Z3)) + gammaM2 gammaM3 (2 Z0 - Z1) (Z2 - Z3)) -
      gammaM1 gammaM2 Z1 Z3 + gammaM2 gammaM3 Z1 Z3 + gammaM1 gammaM2 Z2 Z3 -
      gammaM1 gammaM3 Z2 Z3 +
      gammaM (gammaM2 Z2 (Z1 - Z3) + gammaM3 (-Z1 + Z2) Z3 + gammaM1 Z1 (-Z2 + Z3))) /
    (-gammaM2 gammaM3 (2 Z0 + Z1 + e^(2 i phi) Z1) (Z2 - Z3) + gammaM1
       (gammaM3 (2 Z0 + Z2 + e^(2 i phi) Z2) (Z1 - Z3) - gammaM2 (Z1 - Z2) (2 Z0 + Z3 + e^(2 i phi) Z3)) +
      gammaM (gammaM2 (2 Z0 + Z2 + e^(2 i phi) Z2) (Z1 - Z3) -
         gammaM1 (2 Z0 + Z1 + e^(2 i phi) Z1) (Z2 - Z3) - gammaM3 (Z1 - Z2) (2 Z0 + Z3 + e^(2 i phi) Z3)));

Z = (2 * Z0 * (gammaFP + Exp[2 I * phi])) / ((1 + Exp[2 I * phi]) * (1 - gammaFP));
```

In[21]:=
```
Simplify[Z]
```

Out[21]=
```
(gammaM2 gammaM3 Z1 (Z2 - Z3) +
   gammaM (gammaM1 Z1 (Z2 - Z3) + gammaM3 (Z1 - Z2) Z3 + gammaM2 Z2 (-Z1 + Z3)) +
   gammaM1 (gammaM2 (Z1 - Z2) Z3 + gammaM3 Z2 (-Z1 + Z3))) /
 (gammaM2 gammaM3 (Z2 - Z3) + gammaM1 (gammaM2 Z1 - gammaM3 Z1 - gammaM2 Z2 + gammaM3 Z3) +
   gammaM (gammaM3 Z1 + gammaM1 Z2 - gammaM3 Z2 - gammaM1 Z3 + gammaM2 (-Z1 + Z3)))
```

Annexe E

Calibration : choix de la température de référence T_2

Nous avons vu dans le paragraphe (7.4.3.1) que la calibration à basse température que nous avons développée nécessite la définition de trois températures de référence. Il est relativement naturel de choisir T_1 à l'état normal et T_3 dans l'état supraconducteur. Pour avoir une bonne sensibilité de la calibration, T_2 doit être choisie à l'état normal. Dans une première approche, lors de cette thèse, nous avons choisi d'imposer $Z(T_2) = R_2$, avec R_2 la résistance mesurée à basse fréquence (77 Hz). **Il faut alors vérifier qu'à T_2 les fluctuations supraconductrices ont une faible dépendance en fréquence afin de ne pas invalider notre hypothèse de calibration.**

Pour ce faire, nous allons montrer que les résultats physiques obtenus pour l'échantillon STRF 35 (T_c = 230 mK), pour lequel nous avons fixé T_2 = 270 mK, ne dépendent pas - qualitativement - du choix spécifique de T_2.

Estimation des corrections de paraconductivité à T_2

La fréquence caractéristique ω_0 des fluctuations de type Aslamazov-Larkin est donnée par l'équation (chap. 5) :

$$\omega_0 = \frac{16 k_B T_c \ln(T/T_c)}{\pi \hbar} \tag{E.1}$$

Pour l'échantillon STRF 35, on obtient $\omega_0 \simeq 25$ GHz. À notre fréquence maximale de mesure (2 GHz), $\omega/\omega_0 \sim 0.1$. Alors, la fonction de normalisation $S_{2D}(\omega/\omega_0)$, définie au chapitre (5), est proche de 1, ce qui signifie que la conductivité $\sigma(\omega, T_2) \sim \sigma(0, T_2)$ dans la gamme de fréquences considérée. Il faut a priori se rapprocher davantage de la température critique pour observer une dépendance en fréquence de la conductivité (fig. (E.1)).

Variation de l'écart $\Delta T = T_1 - T_2$

Une autre approche consiste à regarder comment les données calibrées dépendent du choix de T_2. Gardant T_1 fixe, nous avons donc fait varier la position de T_2. Pour chacune des calibrations, la figure (E.2) montre l'évolution en fréquence de l'impédance complexe Z ainsi obtenues, à $T = T_c$.

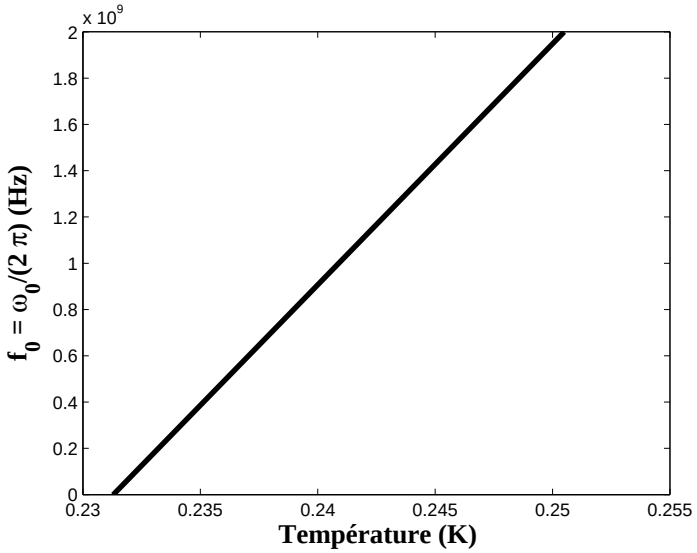

Figure E.1 – Évolution de la fréquence caractéristique $f_0 = \omega_0/2\pi$ (Hz) des fluctuations supraconductrices en fonction de la température ($T_c = 230$ mK). Lorsque $\omega/ \sim \omega_0$, la dynamique des fluctuations d'Aslamazov-Larkin n'est plus négligeable. Ici, pour une fréquence maximale de mesure de 2 GHz, on peut négliger ces corrections dynamiques pour $T \gtrsim 250$ mK.

Quelque soit l'écart ΔT, nous voyons que la valeur de l'impédance complexe Z ($Re(Z)$ et $Im(Z)$) est essentiellement inchangée. Nous observons toutefois une augmentation du rapport signal sur bruit lorsque ΔR augmente.

De manière analogue, nous avons considéré l'évolution en température de la conductance $G = 1/Z$. G_1 étant faible pour $T < T_c$, son évolution est particulièrement sensible à une éventuelle erreur de calibration. En effet, comme nous le voyons sur la figure (E.3), le pic de cohérence observé dans l'évolution de $G_1(T)$, varie légèrement avec l'écart ΔT, à la fois en position et en amplitude, alors que G_2 est essentiellement inchangée par une modification de la position de T_2. Cependant, pour un écart ΔT suffisant, correspondant à une variation de résistance ΔR entre les deux températures de calibration $\Delta R = R(T_1) - R(T_2) \gtrsim 2\ \Omega$, la position du pic ne varie plus. Pour $\Delta R \gtrsim 3\ \Omega$ son amplitude est également inchangée.

L'invariance de G_1 et G_2 avec ΔT, pour un ΔR suffisant, est rassurant et montre le caractère robuste de la calibration. En particulier, elle renforce l'hypothèse de calibration négligeant une dépendance en fréquence de $Z(T_2)$ qui serait induite par les fluctuations supraconductrices.

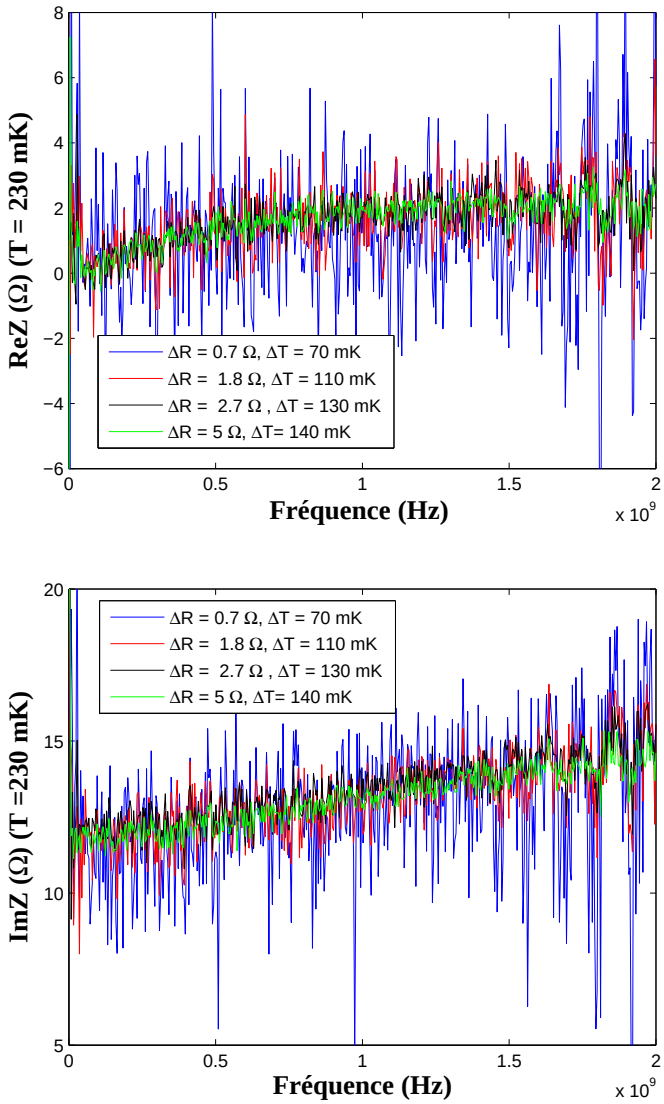

Figure E.2 – Évolution en fréquence de l'impédance complexe à T = T_c, pour l'échantillon STRF 35, pour différentes valeurs de T_2.

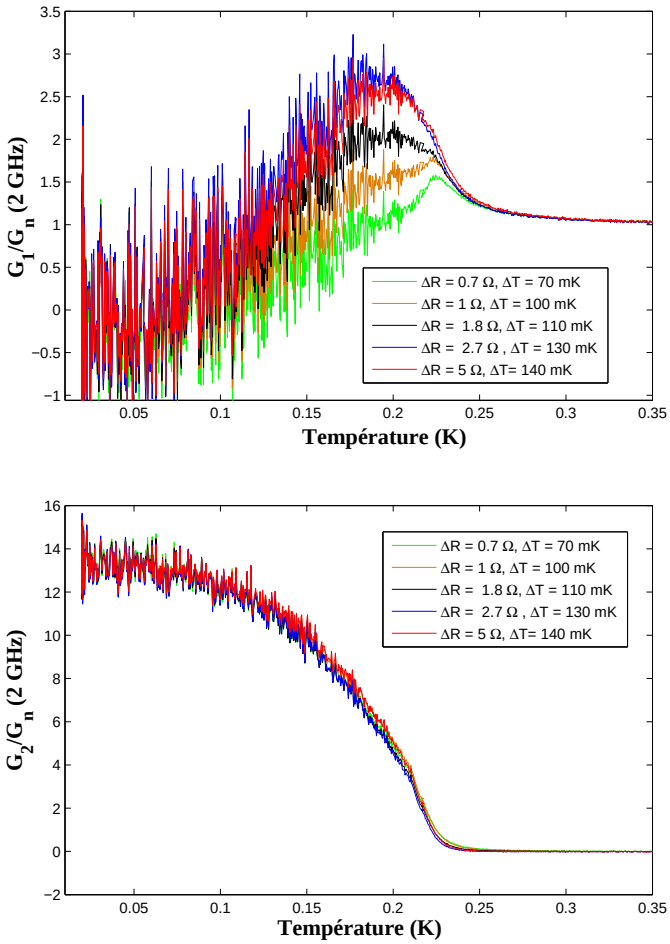

Figure E.3 – Évolution en température de la conductance complexe à 2 GHz, pour l'échantillon STRF 35, pour différentes valeurs de T_2.

Bibliographie

[Abrahams et al., 1979] Abrahams, E., Anderson, P., Licciardello, D., and Ramakrishnan, T. (1979). Scaling theory of localization : Absence of quantum diffusion in two dimensions. *Phys. Rev. Lett.*, 42 :673.

[Altshuler and Aronov, 1979] Altshuler, B. and Aronov, A. (1979). Zero bias anomaly in tunnel resistance and electron-electron interaction. *Solid State Communications*, 30(3) :115 – 117.

[Anderson, 1958] Anderson, P. (1958). Absence of diffusion in certain random lattices. *Phys. Rev.*, 109 :1492.

[Anderson, 1959] Anderson, P. (1959). Theory of dirty superconductors. *J. Phys. Chem. Solids*, 11 :26.

[Armitage, 2011] Armitage, N. P. (2011). AC transport in really really dirty superconductors and near superconductor-insulator quantum phase transitions. *Workshop Strongly disordered superconductors and electronic segregation (Leiden, Netherlands).*

[Ashcroft and Mermin, 1976] Ashcroft, N. W. and Mermin, N. D. (1976). *Solid State Physics.*

[Aslamasov and Varlamov, 1980] Aslamasov, L. and Varlamov, A. (1980). Fluctuation conductivity in intercalated superconductors. *Journal of Low Temperature Physics*, 38(1-2) :223–241.

[Aubin et al., 2006] Aubin, H., Marrache-Kikuchi, C., Pourret, A., Behnia, K., Bergé, L., Dumoulin, L., and Lesueur, J. (2006). Magnetic-field-induced quantum superconductor-insulator transition in $Nb_{15}Si_{85}$. *Phys. Rev. B*, 73 :094521.

[Béal and Friedel, 1964] Béal, M. and Friedel, J. (1964). Relation between local order and interference effects in electrical resistivity for metallic alloys. *Phys. Rev.*, 135 :A466.

[Beasley et al., 1979] Beasley, M., Mooij, J., and Orlando, T. (1979). Possibility of vortex-antivortex pair dissociation in two-dimensional superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 42 :1165.

[Berezinskii, 1972] Berezinskii, V. (1972). Destruction of long-range order in one-dimensional and two-dimensional systems with a continuous symmetry group. II. quantum systems. *Sov. Phys. JETP*, 34 :610.

[Berggren, 1982] Berggren, K. (1982). Weak localisation and the dimensional crossover in disordered metallic films. *J. Phys. C : Sol. St. Phys.*, 15 :L843.

[Bergmann, 1976] Bergmann, G. (1976). Amorphous metals and their superconductivity. *Phys. Rep.*, 4 :159.

[Bezryadin, 2012] Bezryadin, A. (2012). *Superconductivity in Nanowires : Fabrication and Quantum Transport.*

[Bielejec and Wu, 2002] Bielejec, E. and Wu, W. (2002). Field-tuned superconductor-insulator transition with and without current bias. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :206802.

[Bishop et al., 1985] Bishop, D., Spencer, E., and Dynes, R. (1985). The metal-insulator transition in amorphous NbSi. *Sol. St. Elec.*, 28 :73.

[Bishop and Reppy, 1978] Bishop, D. J. and Reppy, J. D. (1978). Study of the superfluid transition in two-dimensional He^4 films. *Phys. Rev. Lett.*, 40 :1727–1730.

[Booth et al., 1994] Booth, J. C., Wu, D. H., and Anlage, S. M. (1994). A broadband method for the measurement of the surface impedance of thin films at microwave frequencies. *Rev. Sci. Instrum.*, 65 :2082.

[Bouvot, 1996] Bouvot, L. (1996). Etude d'échangeurs thermiques à poudre d'argent. application à la réalisation d'un cryostat à dilution. Technical report, Conservatoire National des Arts et Métiers.

[Bucheli et al., 2012] Bucheli, D., Caprara, S., Castellani, C., and Grilli, M. (2012). Metal-superconductor transition in two-dimensional electron systems with fractal-like mesoscopic disorder. *arXiv preprint arXiv :1205.0454.*

[Chen et al., 2004] Chen, L. F., Ong, C. K., Neo, C. P., Varadan, V. V., and Varadan, V. K. (2004). *Microwave Electronics : Measurement and Materials Characterization.* John Wiley and Sons.

[Crane et al., 2007a] Crane, R., Armitage, N. P., Johansson, A., Sambandamurthy, G., Shahar, D., and Grüner, G. (2007a). Fluctuations, dissipation, and non-universal superfluid jumps in two-dimensional superconductors. *Phys. Rev. B*, 75 :094506.

[Crane et al., 2007b] Crane, R., Armitage, N. P., Johansson, A., Sambandamurthy, G., Shahar, D., and Grüner, G. (2007b). Survival of superconducting correlations across the two-dimensional superconductor-insulator transition : A finite-frequency study. *Phys. Rev. B*, 75 :184530.

[Crauste, 2010] Crauste, O. (2010). *Etude des transitions de phases quantiques supraconducteur-isolant, métal-isolant dans des matériaux amorphes désordonnés proches de la dimension 2.* PhD thesis, Université Paris-Sud, Orsay.

[Crauste et al., 2013] Crauste, O., Gentils, A., Couëdo, F., Dolgorouky, Y., Bergé, L., Collin, S., Marrache-Kikuchi, C., and Dumoulin, L. (2013). Effect of annealing on the superconducting properties of a-NbSi thin films. *Phys. Rev. B*, 87 :144514.

[Crauste et al., 2009] Crauste, O., Marrache-Kikuchi, C., Berge, L., Stanescu, D., and Dumoulin, L. (2009). Thickness dependence of the superconductivity in thin disordered NbSi films. In *Journal of Physics : Conference Series*, volume 150, page 042019. IOP Publishing.

[Dalidovich and Phillips, 2001] Dalidovich, D. and Phillips, P. (2001). Interaction-induced Bose Metal in Two dimensions. *Phys. Rev. B*, 64 :052507.

[Das and Doniach, 1999] Das, D. and Doniach, S. (1999). Existence of a Bose metal at $T = 0$. *Phys. Rev. B*, 60 :1261.

[Davies et al., 1982] Davies, J. H., Lee, P. A., and Rice, T. M. (1982). Electron glass. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :758–761.

[Diener, 2013] Diener, P. (2013). *Internal Report.*

[Diener et al., 2013] Diener, P., Couëdo, F., Marrache-Kikuchi, C., Aprili, M., and Gabelli, J. (2013). Cryogenic calibration setup for broadband complex impedance measurements. *arXiv preprint arXiv :1309.4321.*

[Dolan and Osheroff, 1979] Dolan, G. J. and Osheroff, D. D. (1979). Non-metallic conduction in thin metal films at low temperatures. *Phys. Rev. Lett.*, 43 :721–724.

[Dressel, 2013] Dressel, M. (2013). Electrodynamics of metallic superconductors. *Advances in Condensed Matter Physics*, 2013.

[Driessen et al., 2012] Driessen, E. F. C., Coumou, P. C. J. J., Tromp, R. R., de Visser, P. J., and Klapwijk, T. M. (2012). Strongly disordered TiN and NbTiN s-wave superconductors probed by microwave electrodynamics. *Phys. Rev. Lett.*, 109 :107003.

[Dynes and Garno, 1981] Dynes, R. C. and Garno, J. P. (1981). Metal-insulator transition in granular aluminum. *Phys. Rev. Lett.*, 46 :137–140.

[Efros and Shklovskii, 1975] Efros, A. and Shklovskii, B. (1975). Coulomb gap and low temperature conductivity of disordered systems. *J. Phys. C*, 8 :L49.

[Eley et al., 2012] Eley, S., Gopalakrishnan, S., Goldbart, P. M., and Mason, N. (2012). Fate of global superconductivity in arrays of long SNS junctions. *arXiv preprint arXiv :1206.5999.*

[Feigel'man et al., 2010] Feigel'man, M., Ioffe, L., Kravtsov, V., and Cuevas, E. (2010). Fractal superconductivity near localization threshold. *Ann. Phys.*, 325 :1390.

[Feigel'man et al., 2001] Feigel'man, M., Larkin, A., and Skvortsov, M. (2001). Quantum superconductor-metal transition in a proximity array. *Physics-Uspekhi*, 44(10S) :99.

[Feigel'man et al., 2007] Feigel'man, M. V., Ioffe, L. B., Kravtsov, V. E., and Yuzbashyan, E. A. (2007). Eigenfunction fractality and pseudogap state near the superconductor-insulator transition. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :027001.

[Finkel'stein, 1994] Finkel'stein, A. (1994). Suppression of superconductivity in homogeneously disordered systems. *Physica B*, 197 :636.

[Finkel'stein, 1987] Finkel'stein, A. M. (1987). Superconducting transition temperature in amorphous films. *JETP Lett.*, 45 :46.

[Fisher et al., 1991] Fisher, D. S., Fisher, M. P. A., and Huse, D. A. (1991). Thermal fluctuations, quenched disorder, phase transitions, and transport in type-II superconductors. *Phys. Rev. B*, 43 :130–159.

[Fisher, 1990] Fisher, M. (1990). Quantum phase transitions in disordered two-dimensional superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 65 :923.

[Frydman, 2003] Frydman, A. (2003). The superconductor insulator transition in systems of ultra small grains. *Physica C : Superconductivity*, 391 :052509.

[Gantmakher, 1998] Gantmakher, V. (1998). Transport properties of normal and quasi-normal states of poor superconductors. *International Journal of Modern Physics B*, 12(29n31) :3151–3156.

[Gantmakher and Dolgopolov, 2010] Gantmakher, V. and Dolgopolov, V. (2010). Superconductor-insulator quantum phase transition. *Physics-Uspekhi*, 53 :1.

[Gantmakher and Golubkov, 2001] Gantmakher, V. and Golubkov, M. (2001). Width of the zero-field superconducting resistive transition in the vicinity of the localization threshold. *JETP Lett.*, 73(3) :131.

[Gantmakher and Dolgopolov, 2008] Gantmakher, V. F. and Dolgopolov, V. T. (2008). Localized-delocalized electron quantum phase transitions. *Physics-Uspekhi*, 51(1) :3–22.

[Ghosal et al., 1998] Ghosal, A., Randeria, M., and Trivedi, N. (1998). Role of spatial amplitude fluctuations in highly disordered in s-wave superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :3940–3943.

[Ghosal et al., 2001] Ghosal, A., Randeria, M., and Trivedi, N. (2001). Inhomogeneous pairing in highly disordered s-wave superconductors. *Physical Review B*, 65(1) :014501.

[Graybeal and Beasley, 1984] Graybeal, J. and Beasley, M. (1984). Localization and interaction effects in ultrathin amorphous superconducting films. *Phys. Rev. B*, 29 :4167.

[Han et al., 2014] Han, Z., Allain, A., Arjmandi-Tash, H., Tikhonov, K., Feigel'man, M., Sacépé, B., and Bouchiat, V. (2014). Collapse of superconductivity in a hybrid tin-graphene josephson junction array. *arXiv preprint arXiv :1402.1996*.

[Haviland et al., 1989] Haviland, D., Liu, Y., and Goldman, A. (1989). Onset of superconductivity in the two-dimensional limit. *Phys. Rev. Lett.*, 62 :2180.

[Hebard and Paalanen, 1990] Hebard, A. and Paalanen, M. (1990). Magnetic-field-tuned superconductor-insulator transition in two-dimensional films. *Phys. Rev. Lett.*, 65 :927.

[Hebard and Fiory, 1980] Hebard, A. F. and Fiory, A. T. (1980). Evidence for the Kosterlitz-Thouless Transition in thin superconducting aluminum films. *Phys. Rev. Lett.*, 44 :291–294.

[Hertel et al., 1983] Hertel, G., Bishop, D., Spencer, E., Rowell, J., and Dynes, R. (1983). Tunneling and transport measurements at the Metal-Insulator Transition of amorphous Nb : Si. *Phys. Rev. Lett.*, 50 :743.

[Héritier, 2002] Héritier, M. (2002). Transitions de phase et fermions corrélés. Cours de Master. Université Paris XI.

[Hsu and Valles, 1993] Hsu, S.-Y. and Valles, J. M. (1993). Magnetic-field-induced pair-breaking effects in granular Pb films near the superconductor-to-insulator transition. *Phys. Rev. B*, 48 :4164–4167.

[Hucknall et al., 1992] Hucknall, P., Walker, C., Greig, D., Matthew, J., Norman, D., and Turton, J. (1992). Detailed studies of the density of states of amorphous Nb_xSi_{1-x} obtained by synchrotron radiation photoemission. *J. Phys. : Cond Mat.*, 4 :1131.

[Humbert, 2013] Humbert, V. (2013). *Internal Report.*

[Ikebe et al.,] Ikebe, M., Muto, Y., Ikeda, S., Fujimori, H., and Suzuki, K. Superconductivity of bulk amorphous Mo_xSi_{1-x} and Mo_xC_{1-x} alloys.

[Imry and Ovadyahu, 1982] Imry, Y. and Ovadyahu, Z. (1982). Density-of-states anomalies in a disordered conductor : a tunneling study. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :841.

[Ioffe and Regel, 1960] Ioffe, A. F. and Regel, A. R. (1960). Non-crystalline, amorphous and liquid electronic semiconductors. *Prog. Semicond.*, 4 :237.

[Ioffe, 2013] Ioffe, L. (2013). *Private communication.*

[Juillard, 1996] Juillard, A. (1996). Etude de couches minces supraconductrices pour la réalisation de bolomètres à très basse température. Master's thesis, École des Mines de Nancy.

[Kadin et al., 1983] Kadin, A. M., Epstein, K., and Goldman, A. M. (1983). Renormalization and the Kosterlitz-Thouless transition in a two-dimensional superconductor. *Phys. Rev. B*, 27 :6691–6702.

[Kamlapure et al., 2013] Kamlapure, A., Das, T., Ganguli, S. C., Parmar, J. B., Bhattacharyya, S., and Raychaudhuri, P. (2013). Emergence of nanoscale inhomogeneity in the superconducting state of a homogeneously disordered conventional superconductor. *Scientific reports*, 3.

[Kapitulnik et al., 1985] Kapitulnik, A., Kotliar, G., et al. (1985). Anderson localization and the theory of dirty superconductors. *Physical review letters*, 54(5) :473–476.

[Klein et al., 2007] Klein, T., Achatz, P., Kacmarcik, J., Marcenat, C., Gustafsson, F., Marcus, J., Bustarret, E., Pernot, J., Omnes, F., Sernelius, B. E., Persson, C., Ferreira da Silva, A., and Cytermann, C. (2007). Metal-insulator transition and superconductivity in boron-doped diamond. *Phys. Rev. B*, 75 :165313.

[Kopnov et al., 2012] Kopnov, G., Cohen, O., Ovadia, M., Lee, K. H., Wong, C. C., and Shahar, D. (2012). Little-parks oscillations in an insulator. *Phys. Rev. Lett.*, 109(16) :167002.

[Kosterlitz and Thouless, 1973] Kosterlitz, J. M. and Thouless, D. J. (1973). Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems. *J. Phys. C : Solid State Phys.*, 6 :1181.

[Koushik et al., 2013] Koushik, R., Kumar, S., Amin, K. R., Mondal, M., Jesudasan, J., Bid, A., Raychaudhuri, P., and Ghosh, A. (2013). Correlated conductance fluctuations close to the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless Transition in ultrathin NbN films. *Phys. Rev. Lett.*, 111 :197001.

[Kravchenko et al., 1994] Kravchenko, S., Kravchenko, G., Furneaux, J., Pudalov, V., and D'Iorio, M. (1994). Possible metal-insulator transition at B=0 in 2 dimensions. *Phys. Rev. B*, 50 :8039.

[Kravchenko and Sarachik, 2004] Kravchenko, S. and Sarachik, M. (2004). Metal-insulator transition in two-dimensional electron systems. *Rep. Prog. Phys.*, 67 :1.

[Kravtsov and Muttalib, 1997] Kravtsov, V. E. and Muttalib, K. A. (1997). New class of random matrix ensembles with multifractal eigenvectors. *Phys. Rev. Lett.*, 79 :1913–1916.

[Larkin and Varlamov, 2005] Larkin, A. and Varlamov, A. (2005). *Theory of fluctuations in superconductors*. Oxford University Press.

[Lee et al., 1998] Lee, H., Carini, J., and Baxter, D. (1998). Temperature-frequency scaling in amorphous niobium-silicon near the metal-insulator transition. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :4261.

[Lee et al., 2000] Lee, H. L., Carini, J. P., Baxter, D. V., Henderson, W., and Gruner, G. (2000). Quantum-critical conductivity scaling for a metal-insulator transition. *Science*, 287 :633.

[Lee and Ramakrishnan, 1985] Lee, P. and Ramakrishnan, T. (1985). Disordered electronic systems. *Rev. Mod. Phys.*, 57 :287.

[Lehoczky and Briscoe, 1969] Lehoczky, S. L. A. . and Briscoe, C. V. (1969). Fluctuation effects in the AC conductivity of thin lead films above the superconducting transition temperature. *Phys. Rev. Lett.*, 23 :695–697.

[Lesueur, 1985] Lesueur, J. (1985). *Transition Métal-Isolant dans les systèmes désordonnés : étude de Al_xGe_{1-x} ultra trempé (conductivité, effet tunnel, supraconductivité)*. PhD thesis, Paris XI, Orsay.

[Lesueur et al., 1988] Lesueur, J., Dumoulin, L., and Nedellec, P. (1988). Superconductivity near the metal insulator transition in quench condensed Al_xGe_{1-x}. *Solid State Communications*, 66(7) :723 – 726.

[Lin et al., 2012] Lin, Y.-H., Nelson, J., and Goldman, A. M. (2012). Suppression of the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless Transition in 2D superconductors by macroscopic quantum tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 109 :017002.

[Liu, 2011] Liu, W. (2011). Dynamical study of phase fluctuations and their critical slowing down in amorphous superconducting films. *Workshop Strongly disordered superconductors and electronic segregation (Leiden, Netherlands)*.

[Liu et al., 2011] Liu, W., Kim, M., Sambandamurthy, G., and Armitage, N. P. (2011). Dynamical study of phase fluctuations and their critical slowing down in amorphous superconducting films. *Phys. Rev. B*, 84 :024511.

[Liu et al., 2013] Liu, W., Pan, L., Wen, J., Kim, M., Sambandamurthy, G., and Armitage, N. P. (2013). Microwave spectroscopy evidence of superconducting pairing in the magnetic-field-induced metallic state of Ino_x films at zero temperature. *Phys. Rev. Lett.*, 111 :067003.

[Luan et al., 2011] Luan, L., Lippman, T. M., Hicks, C. W., Bert, J. A., Auslaender, O. M., Chu, J.-H., Analytis, J. G., Fisher, I. R., and Moler, K. A. (2011). Local measurement of the superfluid density in the pnictide superconductor $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ across the superconducting dome. *Phys. Rev. Lett.*, 106 :067001.

[Ma and Lee, 1985] Ma, M. and Lee, P. (1985). Localized superconductors. *Phys. Rev. B*, 32 :5658.

[Maekawa and Fukuyama, 1982] Maekawa, S. and Fukuyama, H. (1982). Localization effects in two-dimensional superconductors. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 51 :1380.

[Markovic et al., 1998] Markovic, N., Christiansen, C., and Goldman, A. (1998). Thickness-magnetic field phase diagram at the superconductor-insulator transition in 2D. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :5217.

[Marnieros, 1998] Marnieros, S. (1998). *Couches minces d'isolant d'Anderson. Application à la bolométrie à très basse température.* PhD thesis, Paris XI, Orsay.

[Marnieros et al., 2000] Marnieros, S., Bergé, L., Juillard, A., and Dumoulin, L. (2000). Dynamical properties near the metal-insulator transition : Evidence for electron-assited variable range hopping. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :2469.

[Marrache-Kikuchi, 2006] Marrache-Kikuchi, C. (2006). *Effets dimensionnels dans un système désordonné au voisinage des transitions métal-isolant et supraconducteur-isolant.* PhD thesis, Paris XI, Orsay.

[Marrache-Kikuchi et al., 2008] Marrache-Kikuchi, C., Aubin, H., Pourret, A., Behnia, K., Lesueur, J., Bergé, L., and Dumoulin, L. (2008). Thickness-tuned superconductor-insulator transitions under magnetic field in a-NbSi. *Phys. Rev. B*, 78 :144520.

[Mason and Kapitulnik, 1999] Mason, N. and Kapitulnik, A. (1999). Dissipation effects on the superconductor-insulator transition in 2D superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :5341.

[Mason and Kapitulnik, 2002] Mason, N. and Kapitulnik, A. (2002). Superconductor-insulator transition in a capacitively coupled dissipative environment. *Phys. Rev. B*, 65 :220505.

[Mattis and Bardeen, 1958] Mattis, D. C. and Bardeen, J. (1958). Theory of the anomalous skin effect in normal and superconducting metals. *Phys. Rev.*, 111 :412–417.

[McMillan and Mochel, 1981] McMillan, W. L. and Mochel, J. (1981). Electron tunneling experiments on amorphous $Ge_{1-x}Au_x$. *Phys. Rev. Lett.*, 46 :556–557.

[Minnhagen, 1987] Minnhagen, P. (1987). The two-dimensional coulomb gas, vortex unbinding, and superfluid-superconducting films. *Rev. Mod. Phys.*, 59 :1001–1066.

[Mirlin and Fyodorov, 1997] Mirlin, A. D. and Fyodorov, Y. V. (1997). Localization and fluctuations of local spectral density on treelike structures with large connectivity : Application to the quasiparticle line shape in quantum dots. *Phys. Rev. B*, 56 :13393–13404.

[Misra et al., 2013] Misra, S., Urban, L., Kim, M., Sambandamurthy, G., and Yazdani, A. (2013). Measurements of the magnetic-field-tuned conductivity of disordered two-dimensional $Mo_{43}Ge_{57}$ and InO_x superconducting films : Evidence for a universal minimum superfluid response. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :037002.

[Mondal, 2013] Mondal, M. (2013). *Phase fluctuations in conventional s-wave Superconductors : Role of dimensionality and disorder.* PhD thesis, Tata Institute of Fundamental Research, Mumbai.

[Mondal et al., 2011a] Mondal, M., Kamlapure, A., Chand, M., Saraswat, G., Kumar, S., Jesudasan, J., Benfatto, L., Tripathi, V., and Raychaudhuri, P. (2011a). Phase fluctuations in a strongly disordered *s*-wave NbN superconductor close to the metal-insulator transition. *Phys. Rev. Lett.*, 106 :047001.

[Mondal et al., 2013] Mondal, M., Kamlapure, A., Ganguli, S. C., Jesudasan, J., Bagwe, V., Benfatto, L., and Raychaudhuri, P. (2013). Enhancement of the finite-frequency superfluid response in the pseudogap regime of strongly disordered superconducting films. *Sci. Rep.*, 3 :1357.

[Mondal et al., 2011b] Mondal, M., Kumar, S., Chand, M., Kamlapure, A., Saraswat, G., Seibold, G., Benfatto, L., and Raychaudhuri, P. (2011b). Role of the vortex-core energy on the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless transition in thin films of NbN. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :217003.

[Mott, 1968] Mott, N. (1968). Conduction in glasses containing transition metal ions. *Non-Crystal. Sol.*, 1 :1.

[Mott, 1972] Mott, N. (1972). Conduction in non-crystalline systems IX. the minimum metallic conductivity. *Philosophical Magazine*, 26 :1015.

[Nava et al., 1986] Nava, F., Psaras, P., Takai, H., Tu, K., Valeri, S., and Bisi, O. (1986). Electrical and structural characterization of Nb-Si thin alloy film. *J. Mater. Res.*, 1 :327.

[Nishida et al., 1985] Nishida, N., Furubayashi, T., Yamaguchi, M., Morigaki, K., and Ishimoto, H. (1985). Metal-insulator transition in the amorphous $Si_{1-x}Au_x$ system with a strong spin-orbit interaction. *Solid-State Electronics*, 28(1-2) :81 – 86.

[Ohashi et al., 2006] Ohashi, T., Kitano, H., Maeda, A., Akaike, H., and Fujimaki, A. (2006). Dynamic fluctuations in the superconductivity of NbN films from microwave conductivity measurements. *Phys. Rev. B*, 73 :174522.

[Orr et al., 1985] Orr, B. G., Jaeger, H. M., and Goldman, A. M. (1985). Local superconductivity in ultrathin Sn films. *Phys. Rev. B*, 32 :7586–7589.

[Ovadia et al., 2013] Ovadia, M., Kalok, D., Sacépé, B., and Shahar, D. (2013). Duality symmetry and its breakdown in the vicinity of the superconductor-insulator transition. *Nature Physics*, 9(7) :415–418.

[Ovadyahu and Imry, 1983] Ovadyahu, Z. and Imry, Y. (1983). On the role of the correlation length near the onset of non-metallic conduction. *J. Phys. C : Sol. St. Phys.*, 16 :L471.

[Parendo et al., 2005] Parendo, K. A., Sarwa, K. H., Tan, B., Bhattacharya, A., Eblen-Zayas, M., Staley, N. E., and Goldman, A. M. (2005). Electrostatic tuning of the superconductor-insulator transition in two dimensions. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :197004.

[Pari, 1990] Pari, P. (1990). Dilution refrigerator with no liquid helium supply. *Adv. Cryo. Eng.*, 35 :1079.

[Pearl, 1964] Pearl (1964). Current distribution in superconducting films carrying quantized fluxoids. *Appl. Phys. Lett.*, 5 :65.

[Phillips, 2002] Phillips, P. (2002). *Advanced solid state physics*. Westview Press.

[Pozar, 2009] Pozar, D. M. (2009). *Microwave Engineering*. Wiley.

[Pracht et al., 2012] Pracht, U. S., Scheffler, M., Dressel, M., Kalok, D. F., Strunk, C., and Baturina, T. I. (2012). Direct observation of the superconducting gap in a thin film of titanium nitride using terahertz spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 86 :184503.

[Sacépé et al., 2008] Sacépé, B., Chapelier, C., Baturina, T., Vinokur, V., Baklanov, M., and Sanquer, M. (2008). Disorder-induced inhomogeneities of the superconducting state close to the superconductor-insulator transition. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :157006.

[Sacépé et al., 2011] Sacépé, B., Dubouchet, T., Chapelier, C., Sanquer, M., Ovadia, M., Shahar, D., Feigel'man, M., and Ioffe, L. (2011). Localization of preformed Cooper pairs in disordered superconductors. *Nature Physics*, 7 :239.

[Sachdev, 1999] Sachdev, S. (1999). *Quantum Phase Transitions*. Cambridge University Press.

[Sambandamurthy et al., 2004] Sambandamurthy, G., L.W. Engel, A. J., and Shahar, D. (2004). Superconductivity-related insulating behavior. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :107005.

[Schmidt, 1968] Schmidt, H. (1968). The onset of superconductivity in the time dependent Ginzburg-Landau theory. *Zeitschrift für Physik*, 216(4) :336–345.

[Shahar and Ovadyahu, 1992] Shahar, D. and Ovadyahu, Z. (1992). Superconductivity near the mobility edge. *Phys. Rev. B*, 46 :10917.

[Sherman et al., 2014] Sherman, D., Gorshunov, B., Poran, S., Trivedi, N., Farber, E., Dressel, M., and Frydman, A. (2014). Effect of coulomb interactions on the disorder-driven superconductor-insulator transition. *Phys. Rev. B*, 89 :035149.

[Sherman et al., 2012] Sherman, D., Kopnov, G., Shahar, D., and Frydman, A. (2012). Measurement of a superconducting energy gap in a homogeneously amorphous insulator. *Phys. Rev. Lett.*, 108 :177006.

[Shklovskii and Efros, 1984] Shklovskii, B. and Efros, A. (1984). *Electronic Properties of Doped Semiconductors*. Springer-Verlag.

[Skvortsov and Feigel'man, 2005] Skvortsov, M. A. and Feigel'man, M. V. (2005). Superconductivity in disordered thin films : Giant mesoscopic fluctuations. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :057002.

[Smith et al., 1995] Smith, R. A., Reizer, M. Y., and Wilkins, J. W. (1995). Suppression of the order parameter in homogeneous disordered superconductors. *Phys. Rev. B*, 51 :6470–6492.

[Sondheimer, 1952] Sondheimer, E. (1952). The mean free path of electrons in metals. *Advances in Physics*, 1 :1–42.

[Sondhi et al., 1997] Sondhi, S., Girvin, S., Carini, J., and Shahar, D. (1997). Continuous quantum phase transitions. *Rev. Mod. Phys.*, 69 :315.

[Song and Ketterson, 1991] Song, S. and Ketterson, J. (1991). Dimensional crossover and its effects on localization/interaction and superconductivity in Si/Nb multilayer. *Phys. Lett. A*, 155 :325.

[Spivak et al., 2008] Spivak, B., Oreto, P., and Kivelson, S. (2008). Theory of quantum metal to superconductor transitions in highly conducting systems. *Physical Review B*, 77(21) :214523.

[Spivak et al., 2001] Spivak, B., Zyuzin, A., and Hruska, M. (2001). Quantum superconductor-metal transition. *Phys. Rev. B*, 64 :132502.

[Steinberg et al., 2008] Steinberg, K., Scheffler, M., and Dressel, M. (2008). Quasiparticle response of superconducting aluminum to electromagnetic radiation. *Phys. Rev. B*, 77 :214517.

[Steiner et al., 2008] Steiner, M. A., Breznay, N. P., and Kapitulnik, A. (2008). Approach to a superconductor-to-bose-insulator transition in disordered films. *Phys. Rev. B*, 77 :212501.

[Thomas et al., 1983] Thomas, G. A., Paalanen, M., and Rosenbaum, T. F. (1983). Measurements of conductivity near the metal-insulator critical point. *Phys. Rev. B*, 27 :3897–3900.

[Thouless, 1974] Thouless, D. (1974). Electrons in disordered systems and the theory of localization. *Phys. Rep.*, 13 :93.

[Tinkham, 1975] Tinkham, M. (1975). *Introduction to superconductivity*. Krieger.

[Turneaure et al., 2000] Turneaure, S. J., Lemberger, T. R., and Graybeal, J. M. (2000). Effect of thermal phase fluctuations on the superfluid density of two-dimensional superconducting films. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :987–990.

[Turneaure et al., 2001] Turneaure, S. J., Lemberger, T. R., and Graybeal, J. M. (2001). Dynamic impedance of two-dimensional superconducting films near the superconducting transition. *Phys. Rev. B*, 63 :174505.

[Valles et al., 1992] Valles, J., Dynes, R., and Garno, J. (1992). Electron tunneling determination of the order-parameter amplitude at the superconductor-insulator transition in 2D. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :3567.

[White et al., 1986] White, A. E., Dynes, R. C., and Garno, J. P. (1986). Destruction of superconductivity in quench-condensed two-dimensional films. *Phys. Rev. B*, 33 :3549–3552.

[Wiech et al., 1989] Wiech, G., Zahorowski, W., Simunek, A., and Sipr, O. (1989). On the bonding and structure of amorphous NbSi films. *J. Phys. : Cond. Mat.*, 1 :5595.

[Yong et al., 2013] Yong, J., Lemberger, T. R., Benfatto, L., Ilin, K., and Siegel, M. (2013). Robustness of the Berezinskii-Kosterlitz-Thouless transition in ultrathin NbN films near the superconductor-insulator transition. *Phys. Rev. B*, 87 :184505.

[Yoshizumi et al., 1985] Yoshizumi, S., Mael, D., Geballe, T. H., and Greene, R. L. (1985). *Localization and Metal-Insulator Transitions*. Plenum.

[Zabrodskii and Zinov'eva, 1984] Zabrodskii, A. G. and Zinov'eva, K. (1984). Low-temperature conductivity and metal-insulator transition in compensate n-Ge. 59 :425.

[Zimmermann et al., 1991] Zimmermann, W., Brandt, E., Bauer, M., Seider, E., and Genzel, L. (1991). Optical conductivity of BCS superconductors with arbitrary purity. *Physica C*, 183 :99.