Université de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :
Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse (INSA Toulouse)

Discipline ou spécialité :

Nanophysique

Présentée et soutenue par :
Poumirol Jean-Marie

le : vendredi 22 juillet 2011

Titre :

Etude des propriétés électroniques du graphène et des matériaux à base de graphène sous champs magnétiques intenses

---

Ecole doctorale :
Sciences de la Matière (SDM)

Unité de recherche :
Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses

Directeur(s) de Thèse :
Goiran Michel - Professeur - LNCMI- Université Toulouse III
Escoffier Walter - Maitre de conférence - LNCMI, INSA (Toulouse)

Rapporteurs :

Guéron Sophie - chargé de recherche - LPS, CNRS (Paris)
Zeitler Uli - Associate Professor- Universitair Hoofddocent (Nijmegen)

Membre(s) du jury :

Roche Stephan - Docteur Habilite - CIN2 (Barcelona)
Christian Joachim - Director of Research - CEMES, CNRS (Toulouse)

Remerciements

Mon travail de thèse a été effectué au Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses à Toulouse et je voudrais remercier le directeur Geert Rikken et le sous-directeur Oliver Portugal de m'avoir accueilli au sein du laboratoire. Je remercie les membres du jury Sophie Guéron, Christian Joachim, Stephan Roche, et Uli Zeitler d'avoir accepté de prendre de leur temps et de leur énergie, pour juger mon travail scientifique et m'aider à améliorer mon manuscrit.

Je voudrais aussi remercier toutes les personnes extérieures avec qui j'ai collaboré : Stephan Roche et Alessandro Cresti, dont les simulations ont été indispensables pour comprendre et valoriser nos résultats expérimentaux sur les nanorubans. Hongjie Dai pour nous avoir fourni nos premiers nanorubans. Dominique Coquillat pour les mesures Teraherzt sur le graphène effectuées à l'université de Montpellier. Jesus Gonzalez de l'université de Santander pour les mesures de spectroscopie Raman. Daniel Arovas pour les simulations sur le graphène tri-couche.

Je voudrais adresser des remerciements tout particuliers à mes directeurs de thèse : aux deux officiels Walter Escoffier et Michel Goiran ainsi qu'à "l'officieux" Bertrand Raquet. Le nombre de choses que j'ai appris au cours de ces trois ans est incalculable. Quand j'ai commencé ma thèse, les concepts d'organisation et de rigueur étaient assez évasifs pour moi, et grâce à leurs efforts et à leur patience, je pense avoir fait des progrès. Et je suis encore étonné par leur bonne humeur et la disponibilité dont ils ont fait preuve malgré toutes leurs responsabilités.

Je suis reconnaissant envers le personnel du LAAS pour m'avoir formé aux techniques de salle blanche et plus particulièrement envers Frank Carcenac et Laurent Mazenq.

Je tiens à remercier également toutes les personnes qui ont travaillé avec moi au sein du laboratoire. Les échanges et les discussions avec Jean Léotin ont toujours été profitables et éducatives. Les " vieux " thésards Marius et Sébastien qui ont grandement facilité ma première année de thèse en me montrant les ficelles du métier. J'espère les revoir bientôt aux US où nous avons émigré tous les trois, pour continuer à apprendre le métier. Rebeca, merci de m'avoir fait pratiquer mon anglais, ça m'est bien utile aujourd'hui, et désolé pour mon espagnol, je promets que j'ai essayé ; je suis sûr que ta thèse va déchirer. Amit from the mysterious sub continent of India et spécialiste du graphène tri-couche. Et Vladimir, papa et docteur en même temps, je te souhaite beaucoup de réussite.

Pierre-Yves avec qui, pendant ces trois ans, j'ai partagé un bureau, beaucoup de doutes, et une compréhension partielle des propriétés du graphène. Je voudrais m'excuser auprès des occupants des bureaux 54 et 47 dans lequel j'ai passé presque autant de temps que dans mon propre bureau. Bertrand et Loïc, Jérôme et Paul, merci pour avoir accueilli avec tant de grâce mes pérégrinations.

Les personnes sans qui le laboratoire ne pourrait pas fonctionner : Marc, Aziz et Philippe à la cryogénie ; Jean-Marc, Thierry, Laurent, James à l'atelier méca ; Ludo et Jean-Pierre à l'informatique, Séverine, Pascale et Françoise au secrétariat ; Géraldine à l'atelier ; Jérôme, Frank, et Julien aux bobines, même si Frank vole

vers de nouvelles aventures maintenant. Et toutes les personnes sans qui l'ambiance aurait été moins bonne au Laboratoire et en dehors, David le beef (business time), Saint Lepault, Sven, Baptiste, Philippe, Anaïs, Nico de Genève, Gernot, Xavier, Taras, Sergei (Le Russe mysterieux), courage a Fabrice.

Merci à tous ceux qui sont venus à ma soutenance de thèse, famille et amis, au moins vous aurez vu sur quoi j'ai travaillé pendant ces trois ans.

Et le meilleur pour la fin, merci à Elise pour m'avoir soutenu tout ce temps et sans qui la rédaction de ma thèse aurait pris trois ans de plus. Elle a corrigé toutes mes fautes d'orthographe et mes tournures de phrase plutôt approximatives et croyez-moi, c'est un boulot à plein temps.

Table des matières

1 Structure de bandes de systèmes à base de graphène **5**
- 1.1 Graphène . . . 6
  - 1.1.1 Structure cristallographique . . . 6
  - 1.1.2 Structure de bande électronique . . . 7
  - 1.1.3 Niveaux de Landau . . . 8
- 1.2 Graphène multi-feuillet . . . 10
  - 1.2.1 Types d'empilements . . . 10
  - 1.2.2 Modèle de liaisons fortes pour le graphène multi-couche . . . 11
  - 1.2.3 Graphène bi-couche . . . 13
  - 1.2.4 Graphène tri-couche . . . 15
- 1.3 Nanoruban de graphène . . . 18
  - 1.3.1 Nanoruban de type "armchair" . . . 18
  - 1.3.2 Nanoruban de type zigzag . . . 22
  - 1.3.3 Effets du champ magnétique . . . 24
- 1.4 Résumé et conclusion . . . 27

2 Généralités sur le transport électronique **29**
- 2.1 Différents régimes de transports . . . 30
  - 2.1.1 Longueurs caractéristiques . . . 30
  - 2.1.2 Transport classique et Modèle de Drude/Boltzmann . . . 31
  - 2.1.3 Régime balistique, quasi-balistique et Modèle de Landauer-Büttiker . . . 32
  - 2.1.4 Transport cohérent . . . 36
- 2.2 Transport dans le graphène . . . 38
  - 2.2.1 Nature du désordre dans le graphène . . . 38
  - 2.2.2 Transport dans le graphène intrinsèque . . . 38
  - 2.2.3 Transport dans le graphène désordonné . . . 39
  - 2.2.4 Transport dans les nanorubans de graphène . . . 41
  - 2.2.5 Conclusion sur le transport dans le graphène . . . 47
- 2.3 Effet Hall quantique . . . 48
  - 2.3.1 Niveaux de Landau et Etats de bords . . . 49
  - 2.3.2 Effet Hall quantique dans le graphène et le graphène multi-couches . . . 54

3 Cadre experimental **59**
- 3.1 Caractéristiques des échantillons . . . 59
  - 3.1.1 Préparation des échantillons . . . 59
  - 3.1.2 Caractérisation des échantillons . . . 64
- 3.2 Techniques de mesure : Mesures de transport électronique sous champs magnétiques intenses . . . 66

3.2.1 Production de champs magnétiques pulsés 66
3.2.2 Mesure de transport électronique 66

4 Magnéto-transport dans le graphène désordonné 71
4.1 Coexistence électron-trou dans le graphène désordonné 71
4.1.1 Caractérisation à champ nul 72
4.1.2 Régime classique et modèle à 2 porteurs 72
4.1.3 Régime quantique et fluctuation de la magnéto-résistance . . 75
4.1.4 Conclusions et perspectives 79
4.2 Impact du désordre sur le plateau $\nu = 2$ dans le régime d'effet Hall quantique 80
4.2.1 Caractérisation à champ nul 80
4.2.2 Coexistence électron-trou induite par le champ magnétique intense 82
4.2.3 Conclusion 88
4.3 Conclusion et perspectives 88

5 Graphène multi-feuillet 89
5.1 Effet Hall quantique entier dans le graphène tri-couche 89
5.1.1 Caractérisation à champ nul 90
5.1.2 Effet Hall et détermination de l'empilement 91
5.1.3 Effet du désordre 97
5.1.4 Conclusion et perspectives 101
5.2 Magnéto-transport dans le graphène multi-couche 102
5.2.1 Caractérisation à champ nul 103
5.2.2 Quantification en niveaux de Landau et phase de Berry . . . 104
5.2.3 Résistance de Hall 107
5.2.4 Conclusion 108
5.3 Conclusion et perspective 108

6 Etude de la formation des états de bords dans les nanorubans de graphène 111
6.1 Introduction 111
6.2 Effet Hall quantique dans les nanorubans de graphène 112
6.2.1 Caractérisation à champ magnétique nul 112
6.2.2 Quantification en niveaux de Landau anormaux 116
6.2.3 Effet du désordre sur les canaux de bords 125
6.2.4 Conclusion et perspectives 127
6.3 Etude de la formation des états de bords dans les nanorubans de graphène ultra étroits 128
6.3.1 Caractérisation à champ magnétique nul et détermination de la chiralité 129
6.3.2 Formation des états de bords en présence de désordre 131
6.3.3 Conclusion 138

6.4 Conclusion et perspectives 139

Conclusion **141**

A Annexe1 **143**
A.1 Revues internationales à comité de lecture 143
A.2 Communications orales et posters 144

Bibliographie **145**

Introduction

Le transistor a été découvert en 1947, dans les laboratoires de Bell Telephone, par William Shockley, Walter Brattain et John Bardeen. Le prix Nobel de physique leur sera décerné en 1956 pour cette découverte. L'invention du transistor tire profit des recherches sur les semi-conducteurs et de la physique quantique. Le premier transistor à base de silicium apparaît lui en 1954, dès lors les innovations se succèderons à un rythme effréné. La puissance de calcul d'un circuit intégré dépend du nombre de transistors qui le compose. Pour pouvoir augmenter leur nombre une véritable course à la miniaturisation des transistors a été lancée. A tel point que Gordon Moore, un des cofondateurs d'Intel, prévoyait en 1965 que le nombre de transistors par circuit de même taille doublerait tous les 12 mois. Pourtant il semble qu'à l'heure actuelle cette progression s'essouffle, les limites intrinsèques du silicium semblent avoir été atteintes.

Avec la découverte des nanotubes de carbone en 1991, de nouveaux types de transistors très prometteurs à base de ce composé carboné ont vu le jour. Et l'idée de remplacer le silicium par le carbone est née. Pourtant la difficulté à manipuler et à intégrer de tels objets de taille nanométrique dans les systèmes existants, a limité l'utilisation des nanotubes dans la microélectronique.

En 2004, Kostya Novoselov et Andre Geim ont réussi à isoler et à contacter électriquement un feuillet de graphène à partir de l'exfoliation mécanique de graphite naturel. Un feuillet de graphène est constitué d'atomes de carbone agencés en un réseau hexagonal bi-dimentionnel. Il présente des propriétés électroniques et mécaniques tout a fait particulières, qui ont suscité l'intérêt à la fois de la communauté scientifique et des industriels. En effet, le graphène possède une très grande mobilité électronique et une grande stabilité à l'échelle nanométrique. De plus, contrairement aux nanotubes, le graphène peut être produit sur de larges surfaces. Toutes ces propriétés permettent d'envisager la fabrication de systèmes électroniques à base de graphène qui pourraient traiter l'information 10 fois plus rapidement que les systèmes actuels. Pourtant le graphene ne possède pas de gap énergétique, or cela est une condition indispensable à la fabrication de transistor.

L'ouverture d'un gap dans la structure électronique du graphène est tout de même possible. Une des méthodes existante consiste à découper le graphène en bandes pour former des nanorubans de graphène. La valeur du gap énergétique qui apparaît dans la structure de bande est alors contrôlable par la largeur du ruban. Cette méthode présente pourtant un inconvénient, la découpe n'étant pas précise à l'échelle atomique, une rugosité apparaît aux bords des rubans, ce caractère désordonné des bords entraîne une forte chute de la mobilité et une modification de la valeur du gap de confinement. Les phénomènes responsables de ces modifications restent encore à étudier. Une autre méthode consiste à fabriquer des échantillons composés de plusieurs feuillets de graphène superposés. L'application d'un champ électrique transverse à ces couches, permet selon leur type d'empilement, d'ouvrir

un gap d'énergie contrôlable dans leur structure de bande. Malgré tout, les multi-feuillets de graphène présentent des mobilités plus faibles que celles obtenues dans le graphène, leur structure de bande est complexe et reste encore peu étudiée expérimentalement.

Comprendre les propriétés fondamentales du graphène, des nanorubans de graphène ainsi que des multi-feuillets de graphene et donc primordial. Dans ce cadre nous nous sommes intéressés aux propriétés électroniques de ces trois types de systèmes sous champ magnétique intense. Les mesures ont été effectuées lieu au laboratoire des champs magnétiques intenses à Toulouse, où un champ magnétique de 60T non destructif est accessible. L'objectif est de sonder les propriétés des porteurs de charge dans ces systèmes en utilisant la modification de la densité d'états qui se produit lors de la quantification en niveaux de Landau.

Dans une première partie, nous présenterons la structure cristallographique du graphène et à l'aide du modèle des liaisons fortes nous déterminerons la structure de bande électronique qui en découle. Nous nous intéresserons ensuite dans le même formalisme aux structures électroniques des nanorubans et du graphène multi-feuillet.

Dans une deuxième partie consacrée aux propriétés de transport, nous présenterons le formalisme de Landauer-Büttiker, utile pour la description du transport dans les systèmes mésoscopiques. Nous décrirons ensuite le phénomène de quantification en niveaux de Landau dans les gaz bi-dimentionnels soumis à un champ magnétique perpendiculaire et par là-même évoquerons l'effet Hall quantique entier. Enfin, nous étudierons les propriétés des porteurs de charge dans le graphène, avec et sans la présence de désordre.

La troisième partie décrit les méthodes de fabrication des échantillons, ainsi que les techniques de mesure de transport électronique spécifique à l'utilisation de champs magnétiques pulsés.

Dans les trois parties suivantes seront présentés les résultats expérimentaux, leurs analyses et les discutions.

La quatrième partie présentera des mesures de magnéto-transport effectuées dans le graphène désordonné. Nous avons constaté l'apparition de fluctuations de la magnéto-résistance liée à la transition progressive des îlots de taille finie dans le régime quantique lorsque le champ magnétique augmente. Nous avons aussi démontré qu'un encrage du niveau de Fermi lié à l'augmentation de la dégénérescence orbitale du niveau $n = 0$ avec le champ magnétique entraîne une modification du ratio éléctrons-trous. Cette modification entraîne l'apparition d'un effet Hall non conventionnel où une chute de la résistance de Hall est observée.

La cinquième traite du magnéto-transport dans le graphène multi-feuillet. Nous avons pu observer l'effet Hall quantique entier dans le graphène tri-couche. De plus, par comparaison avec des simulations numériques, nous sommes parvenu à déterminer le type d'empilement constituant l'échantillon. Des mesures effectuées sur un échantillon multi-couche ont permis de mettre en évidence la coexistence de deux types de porteurs ayant une phase de Berry différente. La mesure d'effet Hall démontre une forte influence du champ magnétique et du champ électrique sur la dégénérescence du niveau de Landau $n = 0$

Enfin la sixième et dernière partie concerne l'étude du magnéto-transport dans les nanorubans de graphène. Deux gammes de largeur de ruban ont été sondées : la première allant de 10 à $30nm$ à l'aide de rubans dérivés chimiquement ; et la seconde allant de 60 à $100nm$ pour des rubans lithographiés. Dans les rubans larges, la quantification de la résistance a pu être mesurée, signature évidente de la quantification en niveaux de Landau. Le confinement des porteurs de charge au voisinage des bords de l'échantillon du fait de la formation complète des états de bords chiraux, a aussi permis de mettre en évidence la levée de dégénérescence de vallée liée au confinement de type armchair. Pour des rubans de largeur plus limitée, nous montrerons que la formation progressive des états de bords chiraux couplés à la présence de certains types de défauts donne lieu à une magnéto-conductance positive quelque soit la densité de porteurs de charge.

Chapitre 1

Structure de bandes de systèmes à base de graphène

Sommaire

1.1 Graphène 6
1.1.1 Structure cristallographique 6
1.1.2 Structure de bande électronique 7
1.1.3 Niveaux de Landau 8
1.2 Graphène multi-feuillet 10
1.2.1 Types d'empilements 10
1.2.2 Modèle de liaisons fortes pour le graphène multi-couche . . . 11
1.2.3 Graphène bi-couche 13
1.2.4 Graphène tri-couche 15
1.3 Nanoruban de graphène 18
1.3.1 Nanoruban de type "armchair" 18
1.3.2 Nanoruban de type zigzag 22
1.3.3 Effets du champ magnétique 24
1.4 Résumé et conclusion 27

Le graphène est un matériau composé d'une couche unique d'atomes de carbone organisés dans une structure en nid d'abeille. Le graphène est la brique élémentaire à partir de laquelle sont formés de nombreux matériaux, certains connus depuis très longtemps comme le graphite, d'autres découverts plus récemment comme les nanotubes ou les fullerènes. Bien que n'ayant aucune pertinence vis-à-vis de leur synthèse, cette modélisation permet cependant de décrire de manière simple les propriétés physiques des matériaux composés à partir de la structure de référence qu'est le graphène. La structure de bande électronique du graphène a été étudiée théoriquement longtemps avant que l'on ne puisse étudier le graphène expérimentalement [Wallace 1947]. Dans ce chapitre nous décrirons les structures de bande de divers matériaux à base de graphène, à commencer par le graphène lui-même. Nous étudierons ensuite les propriétés des porteurs de charge dans le graphène bi-couche et tri-couche qui, comme leurs noms l'indiquent sont composés de 2 et 3 feuillets de graphène superposés et dont les propriétés électroniques sont fondamentalement différentes de celles du graphène. Enfin, nous étudirons des nanorubans de graphène, et donc l'étude du confinement 1D sur les propriétés des porteurs de charge de Dirac. Les effets du champ magnétique sur les propriétés électroniques seront évoqués pour chacun de ces matériaux.

1.1 Graphène

1.1.1 Structure cristallographique

Le graphène, du point de vue théorique, est un système électronique bi-dimensionnel parfait. En effet, n'étant composé que d'une seule couche atomique, la dynamique des porteurs de charge est donc nécessairement confinée dans un système ultimement fin. Les liaisons entre atomes de carbone sont des liaisons covalentes, la distance inter atomique est $a = 1.42$Å. La structure cristallographique du graphène se compose d'une maille élémentaire triangulaire avec deux atomes par maille (voir figure 1.1). Les vecteurs de base dans l'espace reél sont définis comme suit :

$$\vec{a}_1 = (\frac{3}{2}a, \frac{\sqrt{3}}{2}a), \qquad \vec{a}_2 = (\frac{3}{2}a, -\frac{\sqrt{3}}{2}a) \tag{1.1}$$

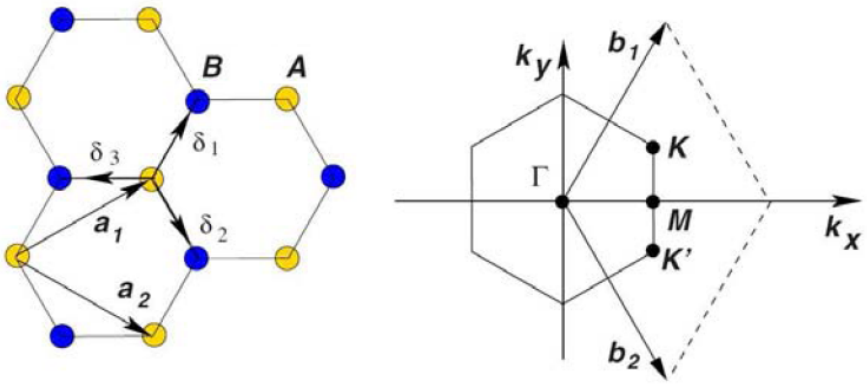

FIGURE 1.1 – Réseau direct et réciproque du graphène. Les vecteurs $\vec{a}_1$ et $\vec{a}_2$ et les atomes A et B définissent le réseau de Bravais. Les vecteur $\vec{b}_1$ et $\vec{b}_2$ définissent la première zone de Brillouin. D'aprés [Castro Neto 2009]

Dans l'espace réciproque, on définit les vecteurs de base $b\vec{1}$ et $b\vec{2}$, qui s'écrivent :

$$\vec{b}_1 = (\frac{2\pi}{3a}, \frac{2\pi}{\sqrt{3}a}), \qquad \vec{b}_2 = (\frac{2\pi}{3a}, -\frac{2\pi}{\sqrt{3}a}) \tag{1.2}$$

La présence de deux atomes par maille élémentaire, entraîne l'existence de deux points non équivalents K et K' situés aux extrémités de la zone de Brillouin. Leurs coordonnées dans l'espace réciproque sont :

$$K = (\frac{2\pi}{3a}, \frac{2\pi}{3\sqrt{3}a}), \qquad K' = (\frac{2\pi}{3a}, -\frac{2\pi}{3\sqrt{3}a}) \tag{1.3}$$

Ces points ont une grande importance sur les propriétés électroniques du graphène. Le transport est régi par les porteurs de charges dont l'énergie est voisine de l'énergie de Fermi. Ainsi, l'ensemble des résultats qui seront présentés ici seront discutés sur la base de la structure de bande au voisinage des points K et K'.

1.1.2 Structure de bande électronique

Les atomes de carbone présentent trois liaisons de valence σ hybridées sp^2 dans le plan de graphène. Les orbitales libres p_z, contenant le dernier électron de valence et perpendiculaire à ce plan vont s'hybrider avec les plus proches voisins, pour former des liaisons π liantes et π^* anti-liantes. Les propriétés électroniques du graphène, du moins à basse énergie, découlent de ces liaisons. La structure de bande électronique du graphène peut être calculée de manière simple en utilisant la méthode dite des liaisons fortes [Wallace 1947]. On définit γ_0, l'intégrale du recouvrement entre les orbitales p_z des plus proches voisins. Les propriétés électroniques du graphène peuvent alors être dérivées en diagonalisant la matrice suivante [Cresti 2008] :

$$H(k) = \begin{pmatrix} 0 & f^*(\vec{k}) \\ f^*(\vec{k}) & 0 \end{pmatrix} \tag{1.4}$$

avec $f(k) = \gamma_0 \Sigma_m e^{i\vec{k}.\vec{\delta}_m}$ où $\vec{\delta}_m$ sont les vecteurs qui connectent les atomes de type A à leurs trois plus proches voisins de type B (voir figure 1.1). On peut montrer que :

$$E_{\pm}(k_x, k_y) = \pm\gamma_0[3 + 4cos(\frac{\sqrt{3}k_x a}{2})cos(\frac{k_y a}{2}) + cos(k_y a)]^{1/2} \tag{1.5}$$

avec $\gamma_0 \approx -2.7eV$

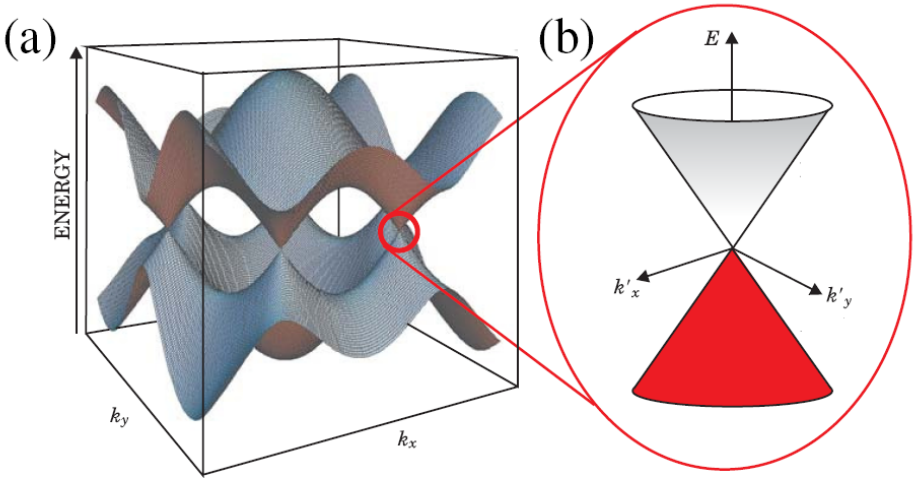

FIGURE 1.2 – (a) Structure de bande du graphène. (b) Agrandissement de la structure de bande au voisinage des points K ou K', montrant le cône de Dirac. D'aprés [Das Sarma 2010b]

Les signes (+) et (-) correspondent respectivement aux bandes π liantes et π^* anti-liantes. La structure de bande électronique du graphène est présentée sur la figure 1.2. On remarque que la bande de valence et la bande de conduction se confondent en six points de la zone de Brillouin, c'est-à-dire en deux points non

équivalent K et K' de la zone de Brillouin réduite. La présence de ces deux vallées, où la bande de conduction et la bande de valence sont dégénérées donne lieu à une dégénérescence de vallée $g_v = 2$. A l'équilibre, la bande π^* (π) est totalement remplie (vide). A température nulle, aucun porteur ne peut alors participer à la conduction. Le graphène est un semi-metal (un semi-conducteur de gap nul). Comme énoncé précédemment, les propriétés les plus remarquables du graphène découlent de la structure de bande au voisinage des points K et K'. En effet, si on prend $\vec{k} = \vec{K} + \delta\vec{k}$ avec $|\delta\vec{k}| << |\vec{K}|$ [Wallace 1947] on obtient :

$$E_{\pm}(\delta k) = \pm\hbar\delta k v_F \tag{1.6}$$

où δk est le vecteur d'onde mesurée par rapport au point de Dirac et v_F est la vitesse de Fermi, donnée par $v_F = 3\gamma_0 a/(2\hbar) \simeq 1 \times 10^6 m.s^{-1}$. La relation de dispersion est linéaire contrairement au cas des gaz 2D conventionnels pour lesquels la relation de dispersion est quadratique $E(k) = \hbar^2 k^2/2m$. La masse effective des porteurs de charge dans ces bandes est donc nulle. Les porteurs de charge du graphène à énergie faible auront donc des propriétés qui ressembleront aux propriétés des particules relativistes décrites par l'électrodynamique quantique, où la vitesse de la lumière est remplacée par la vitesse de Fermi. Cette vitesse de Fermi ne dépend alors plus de l'énergie ou de l'impulsion comme cela est le cas usuellement ($v_F = \hbar k/m$). Se pose alors la question de la limite de validité d'une telle approximation. En plus de la limite de validité de construction, c'est-à-dire $|\delta\vec{k}| << |\vec{K}|$, d'autres phénomènes peuvent causer une déviation à la linéarité comme par exemple les interactions avec les défauts du réseau. Pour quantifier cela on peut considérer que si l'énergie des porteurs $E_C = \hbar\delta k_C v_F$ est inférieure à γ_0, on peut ignorer cette déviation [Das Sarma 2010b]. Cette dispersion tout à fait particulière va avoir des conséquences importantes sur les propriétés de transport électronique du graphène, comme une très grande mobilité des porteurs ou encore une quantification en niveaux de Landau non conventionnelle (voir partie 1.1.3).

1.1.3 Niveaux de Landau

Du point de vue classique, un électron libre, de masse m et de charge e, en mouvement à la vitesse $\vec{v}$ et soumis à un champ magnétique uniforme $\vec{B}$ va subir la force de Lorentz orthogonale au plan défini par les deux vecteurs précédents. Ainsi, il va avoir un mouvement circulaire définissant une orbite cyclotron de fréquence $\omega_c = eB/m$ et de rayon $r_c = v/\omega_c$. En mécanique quantique, le champ magnétique est introduit dans l'Hamiltonien du système à travers la transformation de l'impulsion, $\vec{p}$ en $\vec{p} - e\vec{A}$ où $\vec{A}$ est le vecteur potentiel ($\vec{B} = \vec{rot}(\vec{A})$). C'est la substitution de Peierls. Si l'on résout l'équation de Schrödinger de l'électron libre, on trouve les états propres dits de l'oscillateur harmonique. Les niveaux d'énergie sont alors donnés par :

$$E_n(k_z) = \hbar\omega_c(n + \frac{1}{2}) + \frac{\hbar k_z}{2m} \quad n \in N \tag{1.7}$$

L'étendue spatiale des fonctions d'ondes correspondantes est donnée par les rayons de Landau :

$$l_n = l_B\sqrt{2n+1} \quad avec \quad l_B = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}} \tag{1.8}$$

où l_B est la longueur magnétique. Pour calculer l'effet d'un champ magnétique uniforme $\vec{B}$ perpendiculaire au plan de graphène, on applique la transformation de Peierls à l'Hamiltonien du système obtenu avec la méthode des liaisons fortes. Une phase, due à la transformation du vecteur $\vec{p}$, apparaît dans les fonctions d'ondes du système. En d'autres termes, le champ magnétique introduit une rupture de la symétrie de translation dans le plan orthogonal à $\vec{B}$. On déduit alors pour les bandes proches du point de neutralité de charge une énergie dépendant de la racine carrée du champ magnétique :

$$E_n = \pm v_F\sqrt{2e\hbar|n|B} \tag{1.9}$$

avec n un entier. A un champ magnétique constant, les différents niveaux de Landau

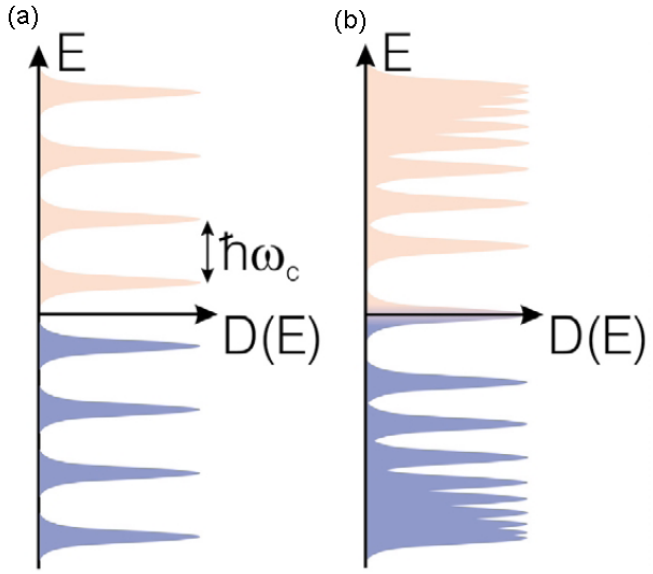

FIGURE 1.3 – (a) Gauche : Schéma des niveaux de Landau pour des électrons bidimentionnels obtenus à partir de semi conducteurs à structure de bande parabolique. Droite : schéma des niveaux de Landau pour des électrons de Dirac sans masse. Cette structure est à l'origine de l'effet Hall anormal observé dans le graphène. D'après [Castro Neto 2009]

du graphène ne sont donc pas équidistants en énergie, comme cela est le cas pour les gaz 2D obtenus dans les semi conducteurs à structure de bande parabolique (voir figure 1.3). Les niveaux de Landau consécutifs à haut nombre quantique ($n >> 1$)

sont plus proches les uns des autres que les niveaux correspondant à de faibles valeurs de n. A 30 Tesla l'énergie séparant les deux niveaux consécutifs $n = 0$ et $n = 1$ est très grande ($\sim 0.2eV$) devant l'énergie d'activation thermique ($k_BT = 0.025eV$) à température ambiante. La quantification en niveaux de Landau dans le graphène est donc observable à température ambiante. Le graphène est le seul matériau connu pour lequel l'effet Hall quantique a été observé jusqu'à $300K$. La dégénérescence des niveaux de Landau est $g = gv \times gs = 4$ où g_v est la dégénérescence de vallée due à l'existence des deux points K et K', et g_s la dégénérescence de spin. L'équation 1.9 fait aussi apparaître une autre propriété fondamentale de la quantification en niveau de Landau du graphène : il possède un niveau d'énergie nulle. Ce niveau "zéro" indépendant du champ magnétique est à la fois partagé par les électrons et les trous et est à l'origine d'un effet Hall quantique tout à fait particulier (voir partie 2.3.1.3).

1.2 Graphène multi-feuillet

Dans cette partie sera présenté brièvement le modèle dit des orbitales π continues, limité aux interactions entre plus proches voisins. Ce modèle permet la détermination des propriétés électroniques des structures constituées de N feuillets de graphène. Seuls les feuillets de graphène multicouches sans faute d'empilement seront étudiés. Les structures de bandes électroniques pour le graphène bi-couche et tri-couche seront discutées plus avant.

1.2.1 Types d'empilements

L'empilement de deux couches de graphène l'une sur une autre, necéssite le décalage relatif de ces dernières afin de minimiser l'énergie de couplage. Les atomes d'une des couches vont être translatés le long des bords du réseau hexagonal. Suivant ces règles d'empilement, il existe trois positions possibles de la maille hexagonale : A, B, et C (voir figure 1.4 (a)). Il existe alors 2^{N-2} configurations stables possibles lors de l'empilement de N couches de graphène. Si une rotation d'un angle aléatoire se produit sur l'une des couches, les interactions avec les couches voisines seront très différentes des interactions entre couches suivant les règles d'empilement. Les couches peuvent par exemple se comporter comme des feuillets de graphène indépendants, comme cela est le cas dans le graphène issu de SiC. Dans notre cas on considère que deux couches de graphène ne peuvent donc s'agencer de manière stable que dans une seule configuration : l'empilement de type Bernal (A-B) (voir figure 1.4 (b)). Pour le graphène tri-couche deux configurations peuvent être distinguées, l'une identique à celle déjà mentionnée pour le graphène bicouche, l'empilement Bernal (A-B-A). L'autre empilement, de type rhombohédrique correspondant à une superposition A, B, C des couches de graphène (voir figure 1.4 (c) et (d)).

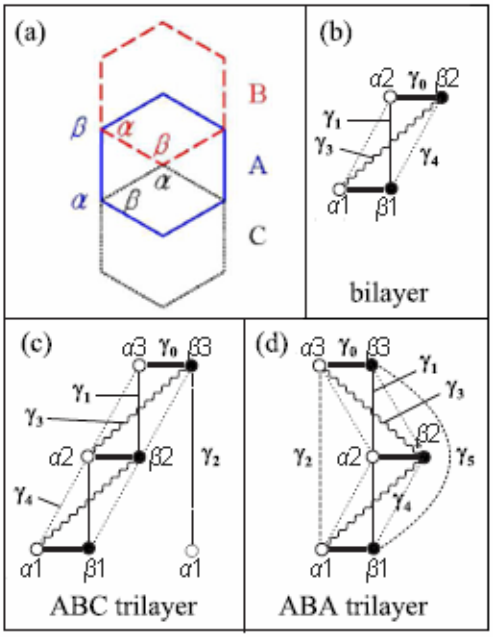

FIGURE 1.4 – (a) Empilement de couches de graphène énergétiquement favorables, les deux types d'atomes par maille sont notés par α et β. (b) Schéma de la cellule unité pour le graphène bi-couche. c) Schéma de la cellule unité pour du graphène tri-couche de type ABC. (c) Schéma de la cellule unité pour du graphène tri-couche de type ABA. Les interactions pertinentes entre les différents atomes sont représentées par les termes de couplage de γ_0 a γ_4. D'aprés [Koshino 2010b] et [Min 2008b]

1.2.2 Modèle de liaisons fortes pour le graphène multi-couche

Le modèle des liaisons fortes présenté au chapitre 1.1.2, décrit les propriétés électroniques du graphène autour des points K et K'. Pour ce faire, un seul paramètre γ_0, représentant le recouvrement entre les orbitales des plus proches voisins dans le plan, est pris en compte. Dans le modele qui sera présenté ici, l'interaction entre les différentes couches constituant un échantillon de graphène multi-couche sera prise en compte. Nous ferons l'hypothèse que l'interaction entre couches ne se fait qu'entre les atomes qui se situent directement l'un en dessous de l'autre. L'intégrale recouvrement entre premiers voisins verticaux est appelée $\gamma_1 \approx 0.4eV$ [Guinea 2006].

1.2.2.1 Empilement de type bernal

Dans le cas de l'empilement de type A-B, un atome de type α_n (n définissant le plan de graphène auquel l'atome appartient) ne va interagir qu'avec l'atome β_n du même plan et les atomes β_{n+1} et β_{n-1} respectivement du plan supérieur et inférieur (voir figure 1.4 (d)). On peut donc écrire l'Hamiltonnien du système sous la forme :

$$H_{A-B}(\vec{k}) = \begin{pmatrix} 0 & \hbar v_F \pi^\dagger & 0 & 0 & 0 & 0 & \\ \hbar v_F \pi & 0 & \gamma_1 & 0 & 0 & 0 & \\ 0 & \gamma_1 & 0 & \hbar v_F \pi^\dagger & 0 & \gamma_1 & \\ 0 & 0 & \hbar v_F \pi & 0 & 0 & 0 & ... \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \hbar v_F \pi^\dagger & \\ 0 & 0 & \gamma_1 & 0 & \hbar v_F \pi & 0 & \\ ... & & & & & & \end{pmatrix} \tag{1.10}$$

où $\pi = k_x + ik_y$, et v_F est la vitesse de Fermi dans le plan, définie précédemment. Considérons des vecteurs propres de la forme $\vec{a} = (a_1, b_1, a_2, ...b_n)$ avec des énergies propres ε [Min 2008b]. Pour obtenir le spectre énergétique du graphène multi-couches, il faut résoudre le système d'équation suivant :

$$\begin{aligned} \varepsilon a_{2n-1} &= \hbar v_F \pi^\dagger b_{2n-1}, \\ \varepsilon b_{2n-1} &= \hbar v_F \pi a_{2n-1} + \gamma_1 (a_{2n-2} + a_{2n}), \\ \varepsilon a_{2n} &= \hbar v_F \pi^\dagger b_{2n} + \gamma_1 (b_{2n-1} + b_{2n+1}), \\ \varepsilon b_{2n} &= \hbar v_F \pi a_{2n}, \end{aligned} \tag{1.11}$$

avec les conditions de bords $a_0 = a_{N+1} = b_0 = b_{N+1}$. En faisant le changement de variable $c_{2n-1} = a_{2n-1}$ et $c_{2n} = a_{2n}$ les équations 2.13 se réduisent à :

$$(\varepsilon_{n,k} - \hbar^2 v_F^2 |\vec{k}|^2/\varepsilon) c_n = \gamma_1 (c_{n-1} + c_{n+1}), \tag{1.12}$$

on peut alors écrire :

$$\varepsilon_{n,k} = (\hbar v_F |\vec{k}|)^2/\varepsilon_k + 2\gamma_1 cos(\frac{\pi n}{N+1}) \tag{1.13}$$

avec $n = 1, ..., N$ avec N le nombre total de couches. la relation de dispersion devient donc :

$$\varepsilon_{n,k} = \gamma_1 cos(\frac{\pi n}{N+1}) \pm \sqrt{(\hbar v_F |\vec{k}|)^2 + \gamma_1^2 cos^2(\frac{\pi n}{N+1})}. \tag{1.14}$$

Par analogie avec les particules relativistes dont le spectre d'énergie s'écrit sous la forme :

$$\varepsilon_k = \sqrt{k^2 c^2 + m^2 c^4} \tag{1.15}$$

on peut définir une masse effective pour le mode n, $m_n = |\gamma_1 cos(\frac{n\pi}{N+1})|$. Il est intéressant de noter que pour les valeurs de N impairs, le mode $n = (N+1)/2$ a une masse nulle et une dispersion linéaire identique à celle du graphène. Pour les N pairs tous les modes possèdent une masse à basse énergie.

1.2.2.2 Empilement de type rhombohédrique

Dans l'empilement de type A-B-C, le couplage intercouche se fait entre les atomes β_n et α_{n+1}. Un dimère constitué d'une paire d'atomes $\alpha - \beta$ va donner lieu à deux niveaux d'énergie, un état liant et un état anti-liant d'énergie $+\gamma_0$ et $-\gamma_0$ respectivement. Seuls les atomes de la couche inférieure α_1 et de la couche supérieure β_N ne sont pas couplés avec un autre atome. Ils forment donc des états d'énergie différentes. L'Hamiltonnien du système peut donc être écrit en utilisant la théorie des perturbations sous la forme [Min 2008b] :

$$H_N(\vec{k}) = -\gamma 1 \begin{pmatrix} 0 & (v_F\pi^\dagger/\gamma 1)^N \\ (v_F\pi/\gamma 1)^N & 0 \end{pmatrix} \tag{1.16}$$

en utilisant la base (α_1, β_N), avec N le nombre de couches. Le spectre énergétique correspondant est donné par :

$$E_k = \pm\gamma_1 (\frac{v_F|\vec{k}|}{\gamma_1})^N \tag{1.17}$$

1.2.3 Graphène bi-couche

1.2.3.1 Structure de bande électronique

Considérons un échantillon de graphène bi-couche constitué par un empilement de type A-B. On déduit de l'équation 1.14 que le graphène bi-couche possède deux bandes et que leur relation de dispersion s'écrit :

$$E_1(k) = \gamma_1/2 \pm \sqrt{(\hbar v_F|\vec{k}|)^2 + \gamma_1^2/4} \tag{1.18}$$

$$E_2(k) = -\gamma_1/2 \pm \sqrt{(\hbar v_F|\vec{k}|)^2 - \gamma_1^2/4}$$

La relation de dispersion de la bande de plus basse énergie peut être réécrite sous la forme $E(k) = \mp m v_F^2 \pm m v_F^2[1 + (k/k_0)^2]^{1/2}$, avec $m = \gamma_0/(2v_F^2)$ la masse effective du graphène bi-couche et $k_0 = \gamma_1/(2v_F\hbar)$ le vecteur d'onde caractéristique. On voit alors que le graphène bi-couche est un semi conducteur de gap nul possédant pour $k << k_0$ une bande de dispersion parabolique, qui devient linéaire comme dans le cas du graphène quand $k >> k_0$ (voir figure 1.5 (a)).

L'application d'un champ électrique sur un échantillon bi-couche, induit un decalage du potentiel électrochimique entre les deux couches. On définit la quantité Δ qui a la dimension d'une énergie, la différence de potentiel électrochimique entre les deux couches est alors égale à 2Δ. L'Hamiltonnien du système est modifié pour inclure des termes diagonaux Δ $(-\Delta)$ représentant l'énergie des sites de la couche inférieure (supérieure). En considérant $\hbar v_F|\vec{k}| << \Delta << \gamma_1$ la relation de dispersion s'écrit :

$$E_k \approx \Delta - 2\hbar^2 v_F^2 k^2/\gamma_1 + \hbar^4 v_F^4 k^4/(2\gamma_1^2\Delta) \tag{1.19}$$

La bande de dispersion prends la forme non conventionnelle d'un chapeau mexicain (ou dos de chameau)(voir figure 1.5 (b)). Le graphène bi-couche devient alors un semi conducteur de gap indirect, dont la valeur de gap, situé en $k_{min} = \sqrt{2}\Delta/(\hbar v_F)$, est controlable par la seule application d'un champ électrique perpendiculaire au plan des couches. Cette particularité ouvre pour celui-ci de fortes perspectives d'applications technologiques.

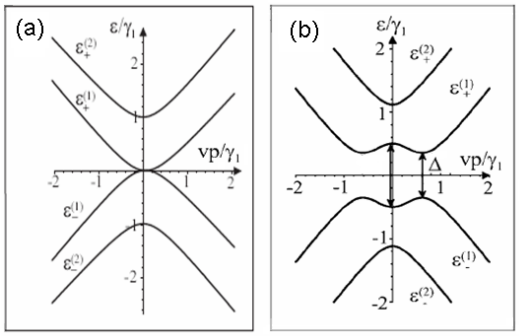

FIGURE 1.5 – (a) schéma de la relation de dispersion pour les bandes de basse énergie près du point K. (b) Schéma de la relation de dispersion pour les bandes de basse énergie prés du point K en présence d'une différence de potentiel entre les couches. Les structures de bande ont été calculées en prenant en compte les termes de couplage γ_0 et γ_1. D'après [Aoki 2007]

1.2.3.2 Niveaux de Landau

Dans le graphène bi-couche les porteurs de charge à basse énergie possèdent une masse effective m, c'est à dire que les bandes de dispersion sont paraboliques. Il serait donc naturel de penser que la quantification en niveaux de Landau de ses porteurs est identique à celle des gaz 2D conventionnels. Pourtant deux caractéristiques fondamentales font différer la quantification du graphène bi-couche de celles usuellement présentes dans les systémes 2D classiques. Le graphène bi-couche est un semi métal et il présente comme le graphène deux sous-réseaux d'atome A et B. Cela conduit à une quantification en niveaux de Landau différente à la fois de celle du graphène et de celle des gaz 2D conventionnelle. L'énergie des niveaux de Landau s'écrit [Das Sarma 2010a] :

$$E_n = \pm[\hbar\omega_c\sqrt{n(n-1)}] \tag{1.20}$$

où $\omega_c = eB/m$ est la pulsation cyclotron. Contrairement au graphène, l'énergie des niveaux de Landau varie linéairement avec le champ magnétique. On voit aussi que les deux états de plus basse énergie E_0 et E_1 sont tous deux d'énergie nulle. L'existence de ce niveau de Landau doublement dégénéré à énergie nulle entraîne l'apparition d'un effet Hall quantique non conventionnel pour le graphène bi-couche.

En effet, en prenant en compte la dégénérescence de 4 due au spin et aux points K, K', ainsi que la double dégénérescence induite par la présence de deux niveaux $n = 0$ et $n = 1$. Le niveau d'énergie nulle du graphène bi-couche posséde une dégénérescence totale de 8 partagée entre électron et trou.

1.2.4 Graphène tri-couche

1.2.4.1 Empilement A-B-A

Pour calculer la relation de dispersion électronique du graphène tri-couche A-B-A à faible énergie, on peut utiliser l'équation 1.14. On obtient alors :

$$E_{n=2,k} = \pm v_F|\vec{k}|,$$

$$E_{n=1,3}(k) = \pm\sqrt{2}\gamma_1/2 \pm \sqrt{((\hbar v_F|\vec{k}|)^2 + \gamma_1^2/2} \tag{1.21}$$

on retrouve une bande de dispersion linéaire et deux bandes de dispersion quadratique à faible énergie comme dans le cas du graphène bi-couche (voir figure 1.6 a).

Le calcul de la structure de bande en présence d'un potentiel électrostatique est plus complexe que dans le cas du graphène bi-couche. Si on considère un décalage du potentiel électrochimique de la couche supérieure (inférieure) égal à Δ ($-\Delta$) et un décalage nul pour la couche intermédiaire, on peut prouver [Guinea 2006] dans le cas limite où $\hbar v_F|\vec{k}| << \Delta << \gamma_1$ que :

$$E(k) \approx \frac{\Delta\hbar v_F|\vec{k}|}{\sqrt{2}\gamma_1}(1 - \frac{\hbar^2 v_F^2|\vec{k}|^2}{\Delta^2}) \tag{1.22}$$

Il existe alors deux états d'énergie nulle pour $|\vec{k}| = 0$ et $|\vec{k}| = V/v_F$. L'application d'un champ électrique perpendiculaire à un feuillet de graphène tri-couche n'entraine donc pas l'ouverture d'un gap. M. Aoki et. al. [Aoki 2007] interprètent entre autre l'existence des états d'énergie nulle comme la conséquence de l'existence d'un niveau non liant, dû au monomère du plan intermédiaire (β_2 sur la figure 1.4) qui est insensible au champ électrique appliqué.

En présence d'un champ magnétique, le spectre des niveaux de Landau du graphène tri-couche ABA peut être vu comme la superposition du spectre correspondant à la bande de dispersion linaire du graphène avec le spectre quadratique obtenu pour le graphène bi-couche. Les niveaux de Landau à basse énergie ont pour expression (voir figure 1.8 (a)) :

$$E_(n) = \pm v_F\sqrt{neB\hbar}$$

$$E_n = \pm[\hbar\omega_c\sqrt{n(n-1)}] \tag{1.23}$$

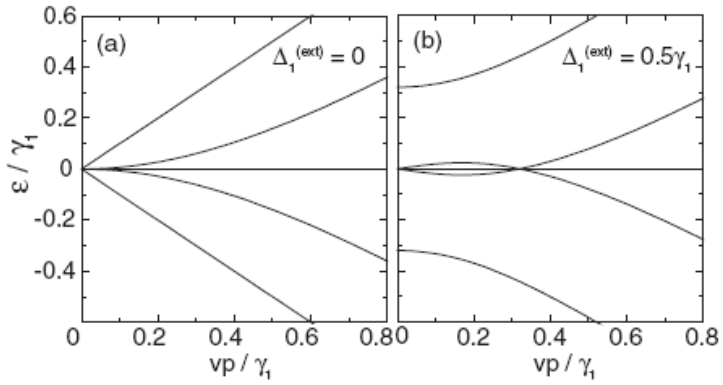

FIGURE 1.6 – Structure de bande calculée de manière auto-cohérente dans le graphène tri-couche A-B-A près du point K avec (a) une asymétrie nulle $\Delta_{ext} = 0$ et (b) une asymétrie non nulle $\Delta_{ext} = 0.5\gamma_1$. Les calculs de structure de bande sont menés en prenant en compte seulement les termes γ_0 et γ_1. D'aprés [Koshino 2009]

1.2.4.2 Empilement A-B-C

L'approximation faite en 1.2.2.2 pour obtenir l'équation 1.17, c'est-à-dire : $E < \gamma_0$, n'est valable que pour 2 des sous bandes. On peut écrire la relation de dispersion du graphène tri-couche rhombohédrique pour les deux bandes de plus basses énergies : $E_k = (v_F|\vec{k}|)^3/\gamma_1$. Il est intéressant de voir que cette bande a une dispersion cubique en k ; la densité d'états qui en découle $D(E)\alpha\gamma_1^{4/3}/(v_F^2 E^{1/3})$ diverge donc quand $E = 0$. Comme cela a été démontré en 1.2.2.2, l'Hamiltonnien liaison forte pour le graphène tri-couche A-B-C est équivalent à celui d'un système composé de deux atomes isolés et deux dimères (voir figure 1.7 c). La structure de bande découlant de cet Hamiltonnien comporte donc six sous bandes, provenant des deux états monomériques non liants (1), plus deux états dimèriques liants (2^+) et non liants (2^-) par dimère (voir figure 1.7 a).

De la même manière que pour le graphène bi-couche, un gap peut être ouvert par l'application d'un champ électrique entre la couche supérieure et la couche inférieure du graphène A-B-C (voir figure 1.7). En effet, contrairement au graphène tri-couche de type A-B-A, les monomères se situent sur les deux couches externes de l'échantillon. Leur énergie est donc perturbée par l'application du champ électrique. L'énergie du gap qui s'ouvre entre les bandes ($1^{\pm}$) est environ le double de celle induite par la même différence de potentiel dans le graphène bi-couche [Aoki 2007].

En présence d'un champ magnétique, le spectre des niveaux de Landau est donné par [Guinea 2006] :

$$E_n = \pm\frac{(2\hbar v_F^2 eB)^{3/2}}{\gamma_1^2}\sqrt{n(n-1)(n-2)} \tag{1.24}$$

L'énergie des niveaux de Landau varient donc en $B^{3/2}$, une variation différente

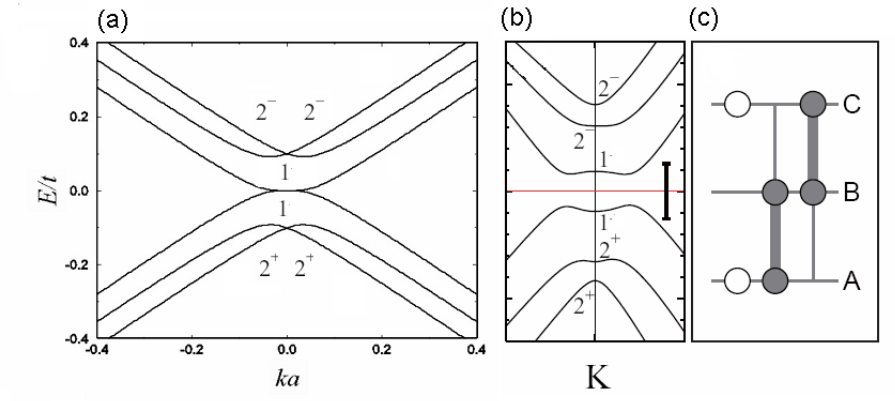

FIGURE 1.7 – Calcul de la structure de bande près du point K pour un tri-couche A-B-C avec (a) $V = 0$ et (b) $V \neq 0$. La structure de bande est calculée en prenant en compte les termes γ_0 et γ_1. D'aprés [Koshino 2009]

à la fois de celle du graphène et du graphène bi-couche. Comme dans le cas du graphène bi-couche le niveau d'énergie zéro est insensible au champ magnétique et est plusieurs fois dégénéré. Ce niveau est constitué de trois 3 sous niveaux, la dégénérescence totale qui en découle est donc de $g_0 = 3 \times g_n = 12$.

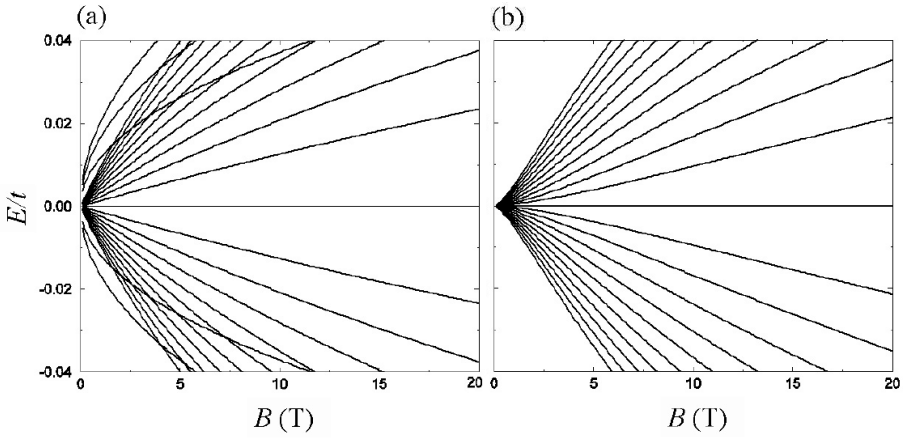

FIGURE 1.8 – Niveaux de Landau pour un tri-couche (a) A-B-A et (b) A-B-C calculés en utilisant le terme de couplage aux plus proches voisins inter-couche $\gamma_0 = 3eV$, et le terme de couplage aux plus proches voisins intra-couche $\gamma_1 = 0.1\gamma_0$. D'aprés [Min 2008b]

1.3 Nanoruban de graphène

Les nanorubans de graphène sont obtenus en "découpant" un feuillet de graphène selon une direction particulière. De nombreuses méthodes existent pour effectuer cette opération (deux d'entre elles seront décrites dans le chapitre 3). La relation de dispersion électronique des rubans de largeur inférieure à $100nm$ est dominée par les effets de confinement 1D. La structure de bande dépend aussi fortement de la direction suivant laquelle le feuillet a été découpé, et donc de la configuration des atomes de carbone à ses bords. Il existe deux types de configuration de bord ; "armchair" et "zigzag". Ces deux configurations résultent d'une différence de 30° de l'axe de découpe du plan de graphène (voir figure 1.9).

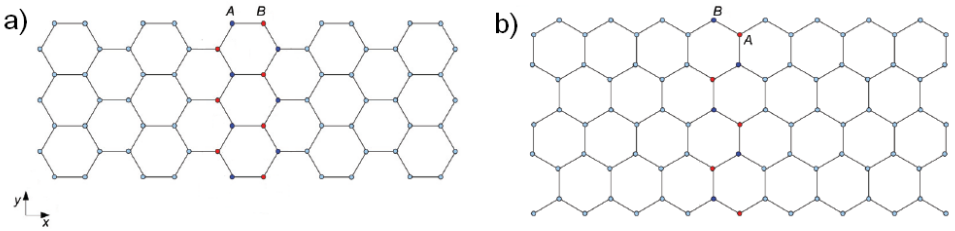

FIGURE 1.9 – (a) Structure cristallographique d'un ruban de type "armchair". (b) Structure cristallographique d'un ruban de type zigzag. Les atomes non équivalents de la maille élémentaire sont référencés A et B. Tiré de [Cresti 2008]

1.3.1 Nanoruban de type "armchair"

Nous allons étudier dans cette partie la structure de bande d'un nanoruban de type "armchair", en considérant que les bords ont été passivés par de l'hydrogène. On peut déjà anticiper que sous l'effet du confinement latèral le spectre des niveaux électroniques 2D du graphène va se diviser en un spectre de sous bandes 1D et que le vecteur d'onde le long de la direction de confinement va être quantifié. La structure cristallographique d'un nanoruban de type "armchair" est constituée, comme celle du graphène, des deux sous-réseaux d'atomes A et B. La cellule unité contient alors N atomes de type A et N atomes de type B (voir figure 1.10). La cellule unité translatée suivant l'axe x permet de reconstituer l'ensemble du nanoruban quelque soit sa longueur. Utilisant cette invariance on choisit la base des ondes planes suivant la direction x. Les fonctions d'ondes des sous-réseaux A et B peuvent alors s'écrire [Cresti 2008] :

$$|\psi\rangle_A = \frac{1}{N_A}\sum_{i=1}^{n}\sum_{x_j} e^{ik_x x_{A_i}}\Phi_A(i)|A_i\rangle$$

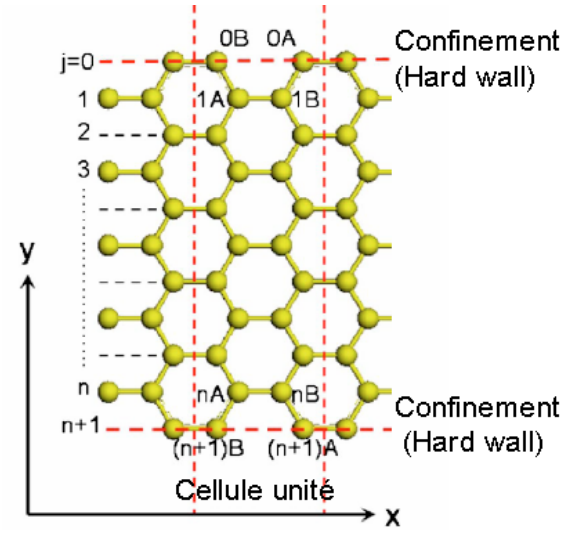

FIGURE 1.10 – Structure d'un ruban "armchair", avec les 2 sous-réseaux A et B. La largeur du ruban est N. Toutes les cellules unités contiennent N atomes de type A et B. Les limites du potentiel carré sont imposées à l'indice $j = 0,n+1$. D'aprés [Zheng 2007]

$$|\psi\rangle_B = \frac{1}{N_B}\sum_{i=1}^{n}\sum_{x_j} e^{ik_x x_B}\Phi_{A_i}(i)|B_i\rangle \tag{1.25}$$

où $\Phi_A(i)$ et $\Phi_B(i)$ sont les composantes des sous-réseaux A et B dans la direction y perpendiculaire aux bords. On introduit alors la normalisation de la fonction d'onde [Zheng 2007] et on impose les conditions de bords de Dirichlet :$\Phi_A(0) = \Phi_B(0) = \Phi_A(n+1) = \Phi_B(n+1)$. Ces conditions aux bords assurent que la fonction d'onde des orbitales π est évanescente aux bords du ruban (voir figure 1.10) [Wakabayashi 2010]. Dans le cas d'un nanoruban de type "armchair", on impose donc à la fonction d'onde de devenir nulle sur les deux sous-réseaux A et B composant les bords, cela va se transcrire par un mélange des états provenant des points K et K'. La relation de dispersion s'écrit alors :

$$E(k,q_y) = \pm|\gamma_0(2e^{ika/2}cos(\sqrt{3}q_y a/2) + e^{-ika}| \tag{1.26}$$

où $q_y = 2p\pi/(\sqrt{3}a(N+1))$ (avec p entier) est le vecteur d'onde quantifié suivant la direction y. Le signe $\pm$ dénote respectivement la bande de conduction et de valence. Le ruban étant invariant suivant une translation de $3a$ le long de l'axe x, la première zone de Brillouin est définie par :

$$-\frac{\pi}{3a} < k_x < \frac{\pi}{3a} \tag{1.27}$$

Dans la figure 1.11 sont tracées les relations de dispersion pour trois nanorubans de type "armchair" de tailles différentes. On voit que le bas de la bande de conduction

et le haut de la bande de valence se situent à $k = 0$, contrairement au graphène où les point K et K' ne sont pas en centre de zone. On remarque aussi que deux des rubans sont semi conducteurs ($N = 6$ et $N = 7$) le troisième ($N = 8$) quant à lui est métallique et possède une dispersion linéaire. On remarque que pour $k = 0$, la

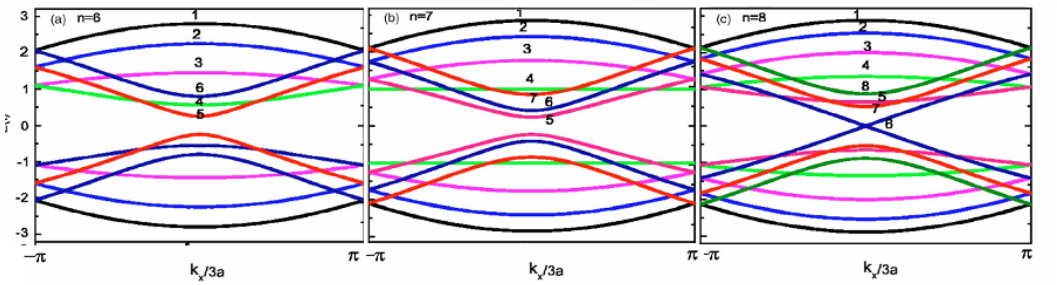

FIGURE 1.11 – Structure de bande électronique pour un ruban "armchair" parfait de différente largeur (a) $N = 6$, (b) $N = 7$, (c) $N = 8$. Tiré de [Zheng 2007]

relation de dispersion 1.26 peut être réécrite sous la forme [Cresti 2008].

$$E_c = \pm|\gamma_0(2cos(\frac{p\pi}{N+1}) + 1| \tag{1.28}$$

Pour les rubans de largeur $N = 3m+2$ avec m un entier, la bande $p = 2m+2$ a une énergie nulle en $k = 0$, et est donc métallique. Une faible variation dans la largeur d'un ruban de type "armchair" peut donc avoir des conséquences importantes sur la structure de bande détruisant par exemple sont caractère métallique. La dégénérescence de vallée étant levée par les conditions de bords, chaque sous bande n'est plus dégénérée que deux fois (spin). Nous remarquons ici que la structure de bande d'un nanoruban de type "armchair" peut aussi être obtenue en discrétisant la structure de bande du graphène 2D selon les vecteurs d'ondes transverses discrets q_y (voir figure 1.12). On retrouve alors de manière intuitive les résultats énoncés précédemment : (i) Les nanorubans dont une des sous bandes passe par les points K ou K' seront métalliques, (ii) le minimum de la bande de conduction dans les nanorubans de type "armchair" se situe en centre de zone.

Si l'on s'intéresse maintenant à la valeur du gap Δ_N, c'est-à-dire à l'énergie séparant la bande de valence de la bande de conduction au centre de la zone de Brillouin, en fonction du nombre de dimères N composant le ruban on peut écrire à partir de l'équation 1.28 :

$$\begin{aligned}
\Delta_{3m} &= |\gamma_0|(4cos(\frac{\pi m}{3m+1} - 2) \\
\Delta_{3m+1} &= |\gamma_0|(2 - 4cos(\frac{\pi(m+1)}{3m+2})) \\
\Delta_{3m+2} &= 0
\end{aligned} \tag{1.29}$$

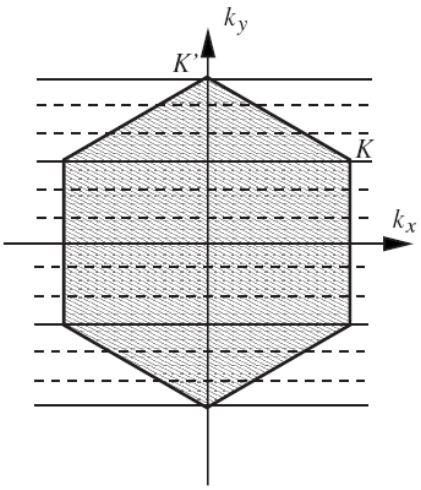

FIGURE 1.12 – L'hexagone grisé est un schéma de la zone de Brillouin du graphène dans l'espace réciproque. Les points de Dirac sont localisés aux coins de cette derniére. Dans un nanoruban type "armchair" le vecteur q_y est quantifié. La structure du graphène 2D est donc découpée en un nombre fini de sous bandes 1D. Les sous bandes sans gap (traits solides) passent par un des cône de Dirac. D'aprés [Rozhkov 2009]

où $N = 3m$, $3m+1$ ou $3m+2$. Les valeurs de gap peuvent aller de quelques meV pour des rubans de plusieurs centaines de dimères de large à quelques eV pour ceux constitués d'un nombre plus limité d'atomes (voir figure 1.13). En exprimant N en fonction de W, la largeur du ruban $W = ((N-3)\sqrt{3}/2 + \sqrt{3})$ avec W en unité de a (la distance interatomique) et en faisant un développement limité avec la condition $1/W << 1$, on peut écrire [Wakabayashi 2010] :

$$\Delta_W \approx \begin{cases} \frac{\pi}{W+\sqrt{3}/2} & \text{N=3m} \\ \frac{\pi}{W} & \text{N=3m+1} \\ 0 & \text{N=3m+2} \end{cases} \tag{1.30}$$

La valeur du gap Δ est donc inversement proportionnelle à la largeur W du nanoruban.

Malgré la bonne description donnée par le modèle des liaisons fortes limitées aux premiers voisins des propriétés électroniques du graphène 2D, quelques caractéristiques particulières liées principalement aux effets de la configuration des bords des nanorubans, ne peuvent être décrites par ce modèle. En effet, la distorsion qui affecte la longueur des liaisons carbone-carbone sur les bords de l'échantillon et les effets dus aux interactions avec les atomes voisins d'ordres supérieurs, modifient les propriétés électroniques des nanorubans de type "armchair". Des termes supplémentaires doivent êtres pris en compte dans le modèle des liaisons fortes pour s'accorder aux simulations ab initio. Le terme H_{1d} représentant les interactions aux premiers

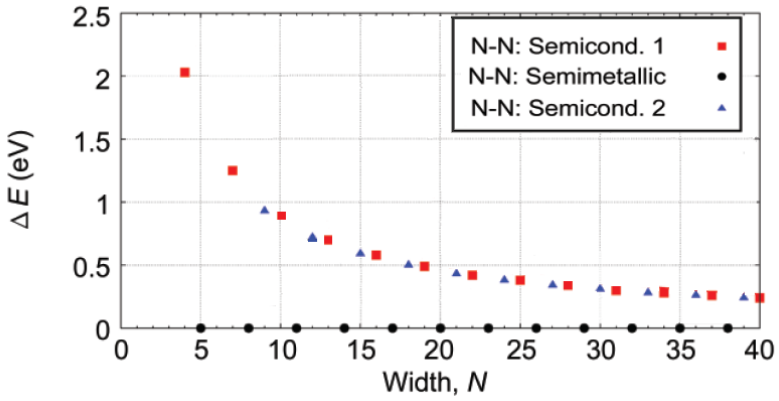

FIGURE 1.13 – Valeur du gap pour un nanoruban de graphène en fonction de N, calculé à l'aide du modèle des liaisons fortes limitées au premier voisin. Tiré de [Cresti 2008]

voisins pour les liaisons déformées des bords ainsi que le terme H_3 représentant l'interaction au troisième voisin doivent être ajoutés à l'Hamiltonnien H utilisé en 1.1.2. La valeur du gap Δ_N est alors modifiée de la manière suivante [Gunlycke 2008]

$$\Delta_W \approx \begin{cases} \frac{2\pi(\gamma_1-2\gamma_3)}{(N+1)\sqrt{3}} + \frac{6(\gamma_3+\Delta\gamma_1)}{N+1} & \text{N=3m} \\ \frac{2\pi(\gamma_1-2\gamma_3)}{(N+1)\sqrt{3}} - \frac{6(\gamma_3+\Delta\gamma_1)}{N+1} & \text{N=3m+1} \\ \frac{6(\gamma_3+\Delta\gamma_1)}{N+1} & \text{N=3m+2} \end{cases} \tag{1.31}$$

où γ_3 est le terme de couplage au troisième voisin et $\Delta\gamma_1$ est le terme de couplage au premier voisin sur les bords. Ce modèle, plus réaliste que le précédent, prévoit la présence d'un gap quelle que soit la valeur de N, même si la valeur du gap pour les rubans de type $3m+2$ reste bien plus faible d'un facteur 3 à 5 par rapport aux deux autres configurations. La valeur du gap reste, comme dans le cas précédent, inversement proportionnelle à la largeur du ruban (voir figure 1.14).

1.3.2 Nanoruban de type zigzag

Les nanorubans de type zigzag diffèrent de ceux de types "armchair" de part la configuration atomique des bords. En effet comme on peut le voir sur la figure 1.9 tous les atomes composant le bord supérieur (inférieur) sont du même type B (A). Cette particularité induit une différence fondamentale des conditions de bords. La fonction d'onde du sous réseau d'atomes de type B (A) doit s'annuler sur le bord supérieur (inférieur). Dans ce cas la fonction d'onde des états électroniques implique les deux sous-réseaux. La figure 1.15 montre la structure de bande électronique obtenue pour des nanorubans de type zigzag de largeur différente, en utilisant la méthode des liaisons fortes limitées aux premiers voisins. On remarque que les rubans de type zigzag sont métalliques, la bande de valence et la bande de conduction sont

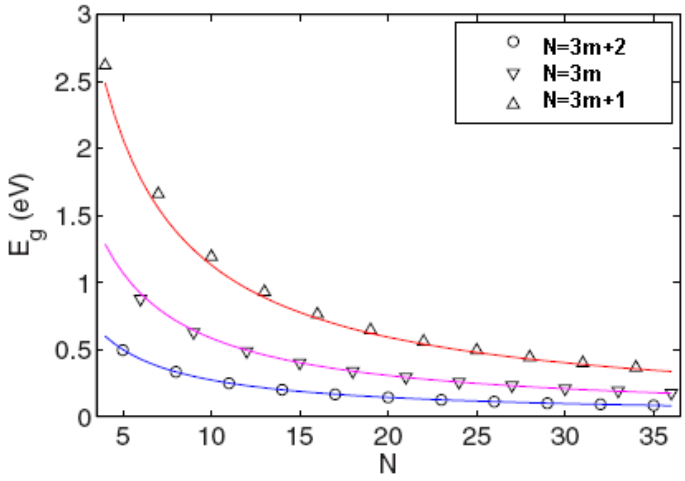

FIGURE 1.14 – Valeur du gap pour un nanoruban de graphène en fonction de la largeur. Les symboles creux représentent le calcul numérique, les traits pleins découlent de l'expression analytique 1.31. Chaque forme de symbole creux représente un type de nanoruban ($3m$, $3m+1$ ou $3m+2$). D'aprés [Gunlycke 2008]

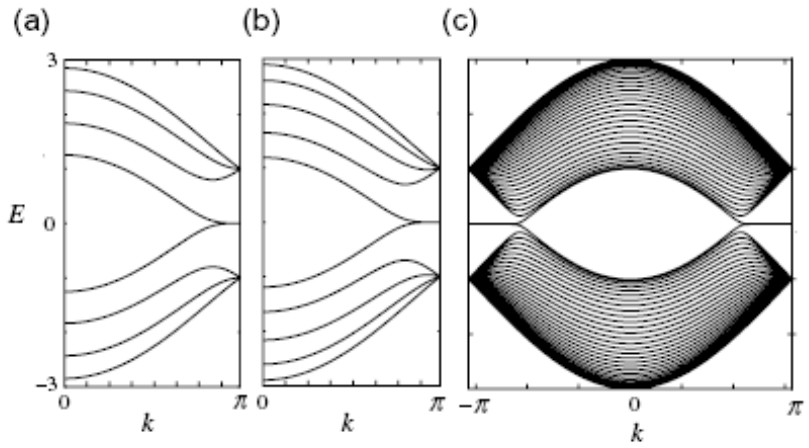

FIGURE 1.15 – Dispersion électronique $E(k)$ pour des nanorubans de type zigzag (a) $N = 4$, (b) $N = 5$, (c) $N = 30$.

en contact pour $k = \pi$ et ce quelque soit la valeur de N. On remarque de plus que ces bandes deviennent de plus en plus plates avec l'augmentation de la largeur du ruban. La paire de sous bande est quasi plate dans la région de vecteur d'onde $2\pi/3 \leq |k| \leq \pi$ et leur énergie est nulle. Si on regarde la distribution de densité de

charge pour différents vecteurs d'ondes (voir figure 1.16), on remarque que ces états de dispersion quasi nulle sont des états localisés près des bords de l'échantillon. On voit en effet que la fonction d'onde est complètement localisée sur le bord quand $k = \pi$ et diffuse progressivement à l'intérieur du ruban quand k tend vers $2\pi/3$ où elle devient un état étendu. Cette fonction a un caractère non liant : elle a une amplitude non nulle sur un seul des deux sous-réseaux, elle découle donc des conditions de bords imposées et n'est pas liée à une propriété intrinsèque du graphène [Fujita 1996, Wakabayashi 2010]. Seule la bande de plus basse énergie montre ce

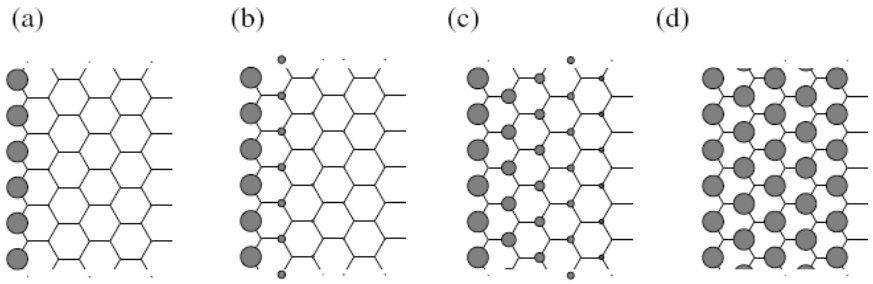

FIGURE 1.16 – Densité de charge des états de bords pour un feuillet de graphène semi infini terminé par des bords de type zigzag, pour plusieurs valeurs de vecteur d'onde. (a) $k = \pi$ (b) $k = 8\pi/9$ (c) $k = 7\pi/9$ (d) $k = 2\pi/3$. La densité de charge est proportionnelle au rayon du cercle. D'aprés [Fujita 1996]

caractère localisé pour les valeurs de vecteur d'onde $k > 2\pi/3$. Les bandes de valence (conduction) d'énergies supérieures sont quant à elles purement dispersives pour toutes les valeurs de k. Elles possèdent en outre deux maxima (minima). La position de ces maxima (minima) en k dépend du nombre d'atomes N composant le ruban $k_c = 2arccos\left(\pm\frac{1}{1+1/N}\right)$ (voir figure 1.15). On remarque que contrairement aux rubans de type "armchair", la relation de dispersion des nanorubans de type zigzag dépend aussi du vecteur d'onde longitudinale.

La prise en compte des interactions aux troisièmes voisins dans le cas des nanorubans de type zigzag ne remet pas en cause leur caractère métallique tant que le spin n'est pas pris en compte. Par contre les états de bords deviennent plus dispersifs.

1.3.3 Effets du champ magnétique

Comme présenté dans la partie 1.1.3 un champ magnétique homogène $\vec{B}$ appliqué perpendiculairement à un plan de graphène 2D induit une quantification en niveaux de Landau dont l'énergie varie en $\sqrt{nB}$. Quand la longueur de confinement magnétique l_B devient plus petite que la largeur W du nanoruban, les électrons présents loin des bords de la zone de Brillouin retrouvent une quantification en niveaux de Landau similaire à celle du graphène. Aux bords de la zone de Brillouin par contre les porteurs ne peuvent pas compléter une orbite cyclotron en raison de

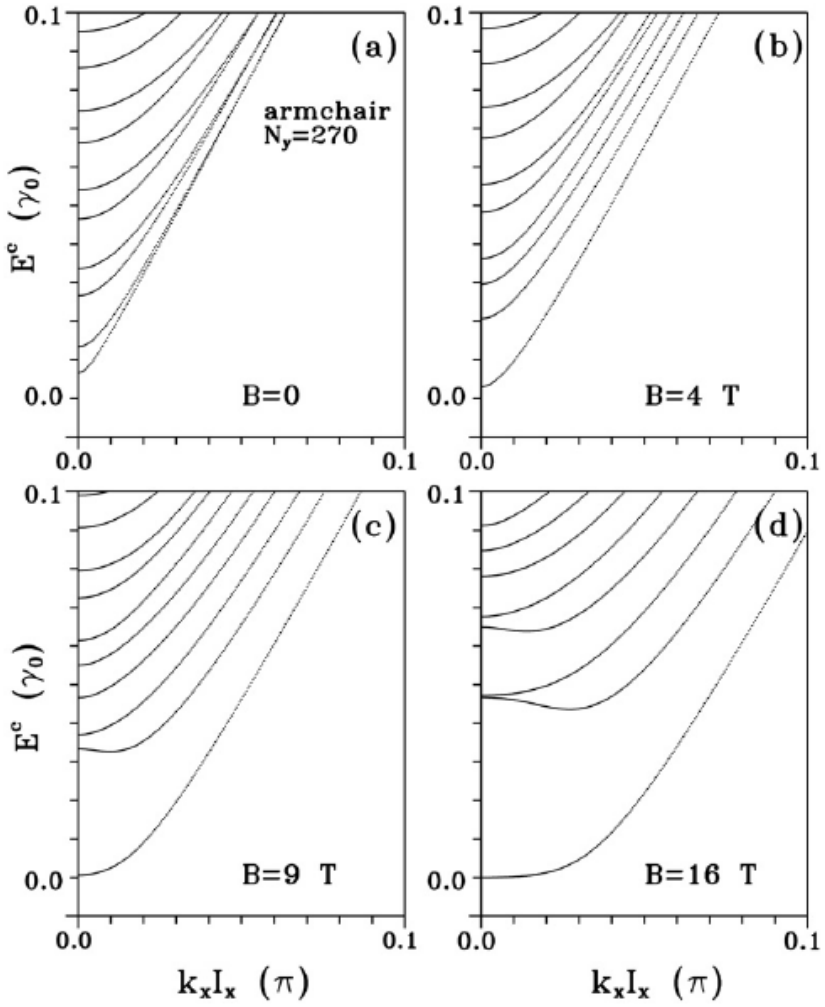

FIGURE 1.17 – Structures de bandes aux basses énergies (modèle d'électrons de Dirac) pour un nanoruban $N = 270$ de type "armchair" (a) $B = 0T$, (b) $B = 4T$, (c) $B = 9T$, (d) $B = 16T$. On distingue clairement l'aplatissement des sous bandes et la fermeture du gap. Tiré de [Huang 2007].

la présence des bords. Leur énergie va par conséquent augmenter, ils vont former des états dispersifs localisés sur les bords de l'échantillon (voir partie 2.3.1.2).

Pour les nanorubans de type "armchair", on voit clairement sur la figure 1.17 l'aplatissement progressif des sous bandes 1D au centre de la zone de Brillouin au fur et à mesure que le confinement magnétique devient prépondérant sur le confinement électrique. Les bandes se regroupent progressivement deux par deux pour former les niveaux de Landau de dispersion nulle, quatre fois dégénérés, identiques à ceux du graphène. En centre de zone la levée de dégénérescence de vallée induite par le confinement va donc disparaître. La formation du niveau d'énergie nulle du graphène

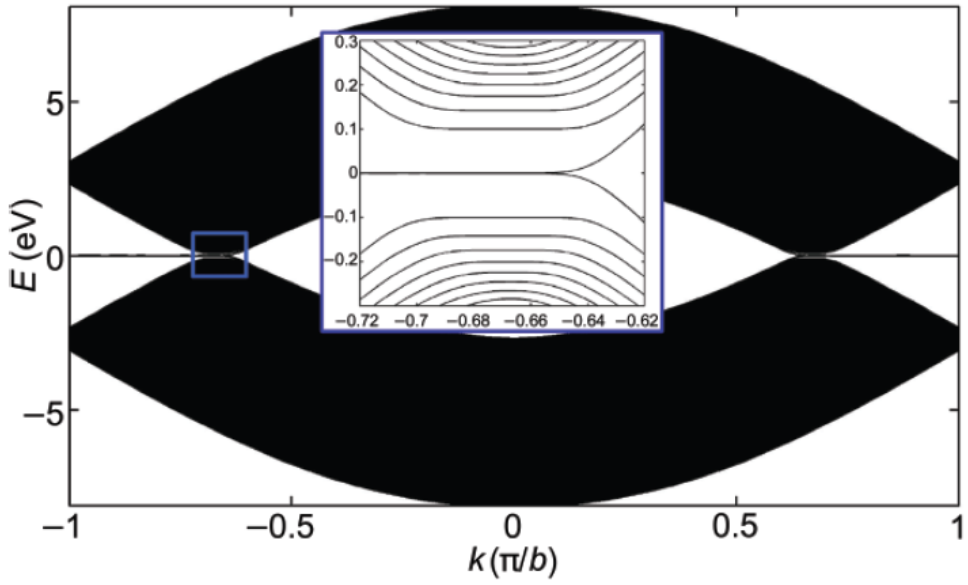

FIGURE 1.18 – Dispersion électronique d'un nanoruban de type zigzag avec $N = 353$, pour une valeur de champ magnétique $B = 10T$. Insert : zoom sur la structure de bande au voisinage du point K'. D'aprés [Cresti 2008]

implique la fermeture du gap des nanorubans de type "armchair" semi-conducteur, qui en présence d'un champ magnétique suffisamment important vont donc devenir métallique. Dans la figure 1.17 (d) les niveaux de Landau $n = 0, 1$ sont formés, le champ magnétique n'est pas encore assez intense pour que les niveaux supérieurs soient eux aussi formés. En bord de zone les bandes électroniques se déforment et deviennent des états fortement dispersifs, situés aux deux bords de l'échantillon. Les deux bords de l'échantillon conduisent alors le courant dans des directions opposées (voir partie 2.3.1.2). Dans une zone de vecteur d'onde intermédiaire entre ces deux cas limites, lorsque la dégénérescence de vallée commence à être levée, les bandes électroniques paires se déforment vers de plus basses énergies. Le sens de propagation des porteurs dans cette gamme de vecteur d'onde est donc opposé à celui des porteurs de l'état de bord le plus proche : il s'agit donc d'états contre-propagatifs. La prise en compte des interactions éléctron-électron amplifie ce phénomène menant à des perturbations visible de la quantification de la conductance [Shylau 2010].

La figure 1.18 montre l'effet du champ magnétique sur un ruban de type zigzag. On retrouve le même phénomène d'aplatissement des sous bandes 1D avec le champ magnétique, menant à la formation des niveaux de Landau. Contrairement aux rubans de type "armchair", la dégénérescence de vallée n'est pas levée par les conditions de bords, chaque sous bandes électroniques va être à l'origine d'un niveau

de Landau.

1.4 Résumé et conclusion

Dans ce chapitre nous avons décrit le spectre énergétique du graphène, des nanorubans à base de graphène ainsi que des systèmes composés d'un nombre N de feuillets de graphène superposés. Nous avons aussi présenté l'influence d'un champ magnétique sur les porteurs de charge dans ces systèmes. Les propriétés physiques de ces systèmes sont tout à fait particulières et ont été l'objet d'études intenses depuis 2004.

Nous avons vu qu'au voisinage de deux points non équivalents de la zone de Brillouin K et K', la relation dispersion électronique du graphène est linéaire. Les porteurs de charge (trous et électrons) ne possèdent donc pas de masse effective. Ce sont des porteurs dits de Dirac. L'application d'un champ magnétique perpendiculaire au plan de graphène induit une quantification en niveaux de Landau différente de celle connue dans les gaz 2D conventionnels. En effet les niveaux de Landau évoluent en $\sqrt{Bn}$ et le niveau d'énergie correspondant à $n = 0$ possède une énergie nulle.

Nous avons étudié la structure de bande du graphène multi-feuillet et montré que cette structure dépend fortement du nombre de couches et du type d'empilement. Le graphène tri-couche d'empilement A-B-A montre à faible énergie la coexistence de bande de dispersion linéaire identique à celle du graphène, avec des bandes paraboliques semblables à celles trouvées dans le graphène bi-couche. Le graphène tri-couche A-B-C, par contre, possède des bandes dont la dispersion est cubique. L'application d'une différence de potentiel entre les couches externes mène à l'apparition d'un gap d'énergie dans le structure de bande.

Lorsque l'on "découpe" un feuillet de graphène, deux types de configurations des atomes de carbone sont possibles : la configuration "armchair" et la configuration zigzag. Ces deux configurations de bords induisent des propriétés électroniques différentes : les nanorubans "armchair" possèdent un gap d'énergie inversement proportionnel à leur largeur, alors que les rubans de type zigzag sont toujours métalliques quelque soit leur largeur. La dégénérescence de vallée est levée par les conditions de bords dans les nanorubans de type "armchair" alors qu'elle est conservée pour les rubans de type zigzag. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué perpendiculairement à un nanoruban, le confinement magnétique prend progressivement le pas sur le confinement électrique. A champ intense la formation de niveaux de Landau identiques à ceux présents dans le graphène se produit en centre de zone. Par contre, proche des bords, l'influence du confinement électrique se fait toujours sentir avec la formation d'états de bords très dispersifs.

Chapitre 2

Généralités sur le transport électronique

Sommaire

2.1 Différents régimes de transports 30
2.1.1 Longueurs caractéristiques 30
2.1.2 Transport classique et Modèle de Drude/Boltzmann 31
2.1.3 Régime balistique, quasi-balistique et Modèle de Landauer-Büttiker 32
2.1.4 Transport cohérent 36
2.2 Transport dans le graphène 38
2.2.1 Nature du désordre dans le graphène 38
2.2.2 Transport dans le graphène intrinsèque 38
2.2.3 Transport dans le graphène désordonné 39
2.2.4 Transport dans les nanorubans de graphène 41
2.2.5 Conclusion sur le transport dans le graphène 47
2.3 Effet Hall quantique 48
2.3.1 Niveaux de Landau et Etats de bords 49
2.3.2 Effet Hall quantique dans le graphène et le graphène multi-couches 54

L'étude du transport électronique est un sujet vaste et complexe. C'est un problème à N corps hors équilibre où il s'agit de décrire la réponse de la mer d'électrons, interagissant à la fois avec le réseau cristallin et avec elle-même, à l'application d'un champ électrique, thermique ou encore magnétique. Dans la première partie de ce chapitre nous décrirons les différents régimes de transports qui nous permettrons de comprendre le transport des électrons dans le graphène : transport diffusif, balistique, localisation faible ou forte. Une seconde section sera consacrée à l'étude du transport électronique sous champ magnétique et plus particulièrement dans le régime quantique où la quantification du spectre énergétique en niveaux de Landau se produit. Dans une troisième partie, à l'aide des considérations décrites dans les parties précédentes, nous étudierons le transport dans le système tout à fait particulier qu'est le graphène.

2.1 Différents régimes de transports

Ce chapitre est en grande partie inspiré du livre "Electronic transport in mesoscopic System" [Datta 1995]. Nous allons y revoir les différents régimes de transports observables dans les systemes mésoscopiques, c'est-à-dire dans les systemes où une ou plusieurs dimensions sont inférieures aux longueurs carractéristiques du transport (c'est-à-dire l_e et l_ϕ).

Les conducteurs macroscopiques obéissent à la loi d'Ohm : la conductance G d'un système est directement liée aux dimensions de ce système. Dans le cas d'un système bi-dimensionnel de largeur W et de longueur L, la conductance s'écrit :

$$G = \sigma \frac{W}{L} \tag{2.1}$$

où $\sigma = ne\mu$ est la conductivité, avec n la densité de porteur du système et μ la mobilité, une valeur directement proportionnelle au temps moyen entre deux collisions. σ est une propriété intrinséque du matériaux, indépendante de ses dimensions. Pour les conducteurs de taille mésoscopique la loi d'Ohm peut devenir inopérante, si la distance séparant deux chocs devient supérieure à la distance séparant les contacts de mesure. Le systeme alors est dit balistique. Suivant la loi d'Ohm, la conductance de ces systèmes devrait tendre vers l'infini, or expérimentalement la conductance tend vers des valeurs finies.

2.1.1 Longueurs caractéristiques

Il faut distinguer deux types de collisions qui dépendent du mécanisme de diffusion considéré : les collisions élastiques ou inélastiques. Une collision élastique va seulement affecter le sens et/ou la direction de l'impulsion de l'électron (et laisser son énergie inchangée). Une collision inélastique va également pouvoir affecter la phase de l'électron ainsi que la norme de l'impulsion. On peut alors définir deux temps moyens associés aux collisions :

-Le temps de relaxation de l'impulsion τ_e, représentant la durée moyenne pendant laquelle un électron va conserver son impulsion, c'est-à-dire le temps pendant lequel l'état d'un électron est conservé. Plusieurs chocs (élastiques ou inélastiques) sont parfois nécessaires pour détruire l'impulsion. On définit une longueur caractéristique, le libre parcours moyen $l_e = v_F \tau_e$ où v_F est la vitesse de Fermi.

-Le temps de relaxation de phase τ_ϕ, représente la durée pendant laquelle un électron va conserver sa phase. Si $\tau_\phi < \tau_e$, on considère que les électrons conservent leur impulsions plus longtemps que leur phase et la vitesse caractéristique est la vitesse de Fermi ; alors $l_\phi = v_F \tau_\phi$. Dans le cas contraire, le transport va être diffusif dans une région où la phase reste cohérente, il faudra donc faire appel au coefficient de diffusion d'Einstein $D = v_F^2 \tau_e / 2$ afin de déterminer la distance moyenne parcourue pendant que la phase est conservée ; alors $l_\phi^2 = D\tau_\phi$.

2.1.2 Transport classique et Modèle de Drude/Boltzmann

Le régime classique de conduction électronique s'applique lorsque deux conditions sont respectées : premièrement il faut que $\tau_\phi < \tau_e$. Les électrons sont alors incohérents et les processus d'interférences entre les différentes trajectoires électroniques n'ont pas à être prises en compte dans la description du transport. Deuxièmement il est nessecaire que $l_e << L$. Les électrons subissent alors un nombre important de collisions quand ils traversent le système et la loi d'Ohm peut être appliquée. Une description semi-classique qui combine le caractère quantique du solide, c'est à dire le fait qu'il possède une structure de bande avec une description classique de la dynamique électronique, peut décrire le transport dans ce régime. Dans un potentiel cristallin périodique, les électrons sont représentés par des ondes de Bloch de vecteur d'onde $\vec{k}$ [Ashcroft 1976]. On définit alors une vitesse de groupe de la manière suivante :

$$v(k) = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial E}{\partial k} = \frac{\hbar k}{m^*} \tag{2.2}$$

avec m^* la masse effective de l'électron dans le cristal. La dynamique des électrons est donc décrite par la loi classique du mouvement :

$$\sum \vec{F} = m^*\vec{a} \tag{2.3}$$

L'électron dans le cristal suit donc la même dynamique qu'une particule dans le vide ayant une masse m^*, différente de la masse réelle de l'électron m_e. Cette masse, proportionnelle à la dérivée seconde de la relation de dispersion par rapport a l'impulsion, permet de prendre en compte l'influence du potentiel périodique cristallin. A l'équilibre les électrons se déplacent de manière aléatoire ne produisant aucun courant. Sous l'application d'un champ électrique $\vec{E}$, les électrons sont à la fois soumis à la force due au champ électrique et à une force de frottement liée aux collisions. Cette dernière est caractérisée par le temps τ entre deux collisions.

$$m^*\vec{a} = -\frac{m\vec{v}_d}{\tau} - e\vec{E} \tag{2.4}$$

En régime stationnaire, les électrons ont donc une vitesse de dérive :

$$\vec{v}_d = -\frac{e\tau}{m}\vec{E} = \mu\vec{E} \tag{2.5}$$

où μ la mobilité, donne une mesure directe du temps de relaxation lié aux impuretés et aux défauts.

Le modèle de Boltzmann décrit l'évolution de la répartition énergétique des électrons sous l'influence d'une force extérieure. A l'équilibre thermodynamique les électrons obéissent à la statistique de Fermi-Dirac.

$$f(E) = \frac{1}{1 + exp\left(\frac{E-E_f}{k_B T}\right)} \tag{2.6}$$

où T est la température et k_B est la constante de Boltzmann. Pour déterminer l'évolution de la distribution énergétique des électrons sous l'influence d'un champ électrique, il faut résoudre l'équation de Boltzmann :

$$\frac{df}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + \frac{1}{\hbar}\vec{F}\frac{\partial f}{\partial \vec{k}} + \vec{v}(\vec{k})\frac{df}{d\vec{r}} \tag{2.7}$$

L'application d'un champ électrique conduit au déplacement dans l'espace des phases de la distribution de Fermi-Dirac d'un vecteur $k_d = -eE\tau/\hbar$ tel que $f(k) = f_0(k - k_d)$. On comprend alors que le courant dans le système n'est porté que par les électrons compris entre $\pm k_f + k_d$ (voir figure 2.1).

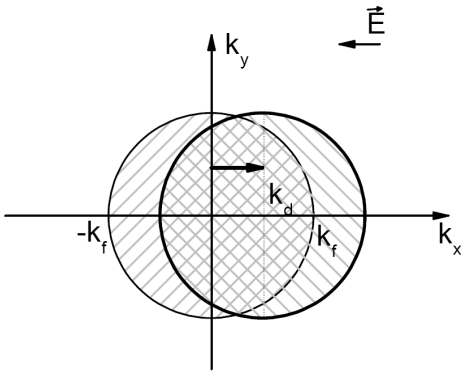

FIGURE 2.1 – Evolution de la distribution de Fermi-Dirac sous l'influence d'un champ électrique E. D'aprés [Datta 1995]

On peut montrer que la densité de courant $\vec{J}$ s'écrit :

$$\vec{J} = -e\int_{E(-k_f+k_d)}^{E(k_f+k_d)} f(E)\vec{v}(E)DoS(E)dk = \sigma\vec{E} \tag{2.8}$$

où $\sigma = en\mu$ est la conductivité de Drude et f obeit a l'équation de Boltzmann .

2.1.3 Régime balistique, quasi-balistique et Modèle de Landauer-Büttiker

Un conducteur balistique est un conducteur où aucun phénomène de diffusion ne se produit. Dans ce cas $l_e > L$. Le modèle de Landauer décrit le courant circulant dans un conducteur en terme de probabilité de transmission et permet d'expliquer la valeur de resistance non nulle observée expérimentalement dans les conducteurs balistiques. Cette résistance provient de l'interface entre le conducteur et les contacts. En effet dans les contacts de taille macroscopique le courant est porté par une infinité de modes transverses, mais au sein du conducteur mésoscopique seulement un nombre limité de sous bandes peuvent porter ce courant. Cela entraîne une redistribution du courant à l'interface et induit une résistance au contact.

Considérons un systéme balistique unidimentionnel de longueur L relié à deux réservoirs (les électrodes amenant le courant)(voir figure 2.5 (a)). Les contacts entre le système et les réservoirs sont "parfaits", c'est-à-dire qu'on considére qu'il n'y a pas de reflexion des électrons allant du système vers les réservoirs. Ceci a pour conséquence que tous les électrons de vecteur d'onde $+k$ $(-k)$ proviennent uniquement du réservoir de gauche (droite) et ces états se dépeuplent uniquement dans le réservoir de droite (gauche). L'application d'un potentiel μ_1 (μ_2) sur l'électrode de gauche (droite) va donc induire une modification du quasi niveau de Fermi des électrons de vecteur d'onde positif (négatif) (voir figure 2.5 (b)). A basse température le courant n'est alors porté que par les états de vecteurs d'onde positifs compris entre μ_1 et μ_2.

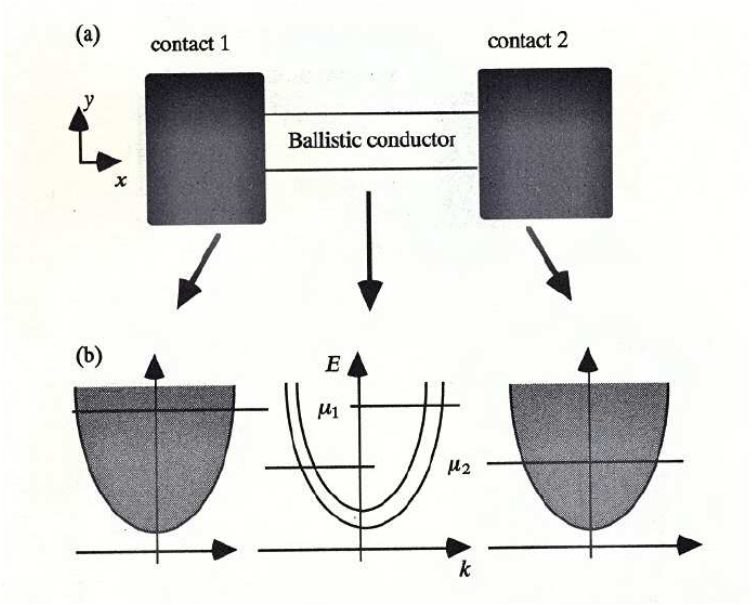

FIGURE 2.2 – (a) schéma d'un conducteur balistique connecté à deux contacts, (b) structure de bande électronique, pour les contacts la densité d'états est continue, pour le conducteur la DoS est discrète (seulement 2 bandes). Le potentiel μ_1 (μ_2) est appliqué au contact de droite (gauche). Tiré de [Datta 1995]

Pour calculer le courant circulant dans un conducteur mésoscopique balistique, il faut commencer par calculer le courant qui peut être porté par un seul mode transverse. Considérons un mode transverse j dont le nombre d'états $+k$ occupés, dépend d'une fonction $f_j^+(E)$. Un gaz d'électrons avec n électrons par unité de longueur se déplaçant à la vitesse v_j porte un courant égal à env_j. Considérant que la densité d'électrons associée à un état k est de $1/L$ (confinement selon la longueur), le courant porté par le mode j est donné par :

$$I_j = \frac{e}{L}\sum_k v f_j^+(E_j) = \frac{e}{L\hbar}\sum_k \frac{\partial E}{\partial k} f_j^+(E_j) \tag{2.9}$$

En utilisant la convention usuelle permettant de passer d'une somation discrète à une intégrale pour un systéme 1D (via la densité d'états dans l'espace des phases) et en considérant que la dégénérescence de spin n'est pas levée (facteur 2)

$$\sum_k \rightarrow 2(\text{pour le spin}) \times \frac{L}{2\pi} \int dk \tag{2.10}$$

on obtient :

$$I_j = \frac{2e}{h} \int_{E_j}^{\infty} f_j^+(E_j) dE_j. \tag{2.11}$$

On peut étendre ces résultats à un transport par plusieurs sous bandes. On définit alors $M(E) = \sum_k H(E - E_p)$ le nombre de sous bandes participant au transport à l'énergie E, avec H la fonction de Heavyside et E_p l'énergie de coupure d'une bande p. Le courant porté par les états $+k$ dans un conducteur décrit alors :

$$I = \sum_j I_j = \frac{2e}{h} \sum_j \int_{E_j}^{+\infty} f^+(E_j) dE_j = \frac{2e}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} f^+(E) M(E) dE \tag{2.12}$$

le conducteur étant soumis à une différence de potentiel $\mu_1 - \mu_2$, seul les états $+k$ compris entre μ_1 et μ_2 participent au transport, alors $f^+(E) = \mu_1 - \mu_2$. On peut donc calculer la résistance de contact :

$$I = \frac{2e^2}{h} M \frac{(\mu_1 - \mu_2)}{e} \Rightarrow G_C = \frac{2e^2}{h} M. \tag{2.13}$$

La conductance totale d'un conducteur est directement égale au nombre de modes de conduction dans le système multiplié par le quantum de conductance $G_0 = 7.75 \times 10^{-5} \Omega^{-1}$.

Ce formalisme peut être généralisé de manière simple au calcul de la conductance de systèmes non balistiques en introduisant un coefficient de transmission T. Ce coefficient correspond à la probabilité qu'un électron pénétrant par le contact de gauche a d'être transmis jusqu'au contact de droite.

$$G_C = \frac{2e^2}{h} MT = \frac{2e^2}{h} \overline{T}. \tag{2.14}$$

où $\overline{T}$ est la "transmission totale". $\overline{T} = \sum_{i,j} |t_{i,j}|^2$, les coefficients $t_{i,j}$ sont les amplitudes de probabilité qu'un électron entrant par un canal j soit transmis par un canal i.

2.1.3.1 Vers le régime diffusif

Le formalisme ci dessus peut être développé pour prendre en compte la présence de défauts. Le système étant unidimensionnel, les centres diffuseurs peuvent être considérés en série dans le système. Chaque centre a alors un coefficient de diffusion T_i et de réflexion $R_i = 1 - T_i$. Lorsque plusieurs centres sont présents il faut prendre

en compte dans le calcul du coefficient total du système, les réflexions multiples. Pour deux centres diffuseurs (voir figure 2.3) le coefficient de diffusion s'écrit :

$$T = T_1T_2 + T_1T_2R_1R_2 + T_1T_2R_1^2R_2^2 + ... = \frac{T_1T_2}{1 - R_1R_2}. \tag{2.15}$$

Pour M centres diffuseurs de coefficient T en série on peut donc écrire :

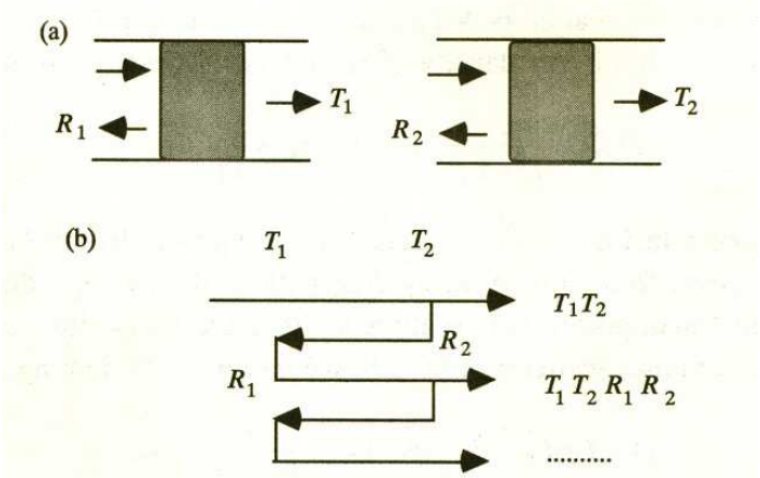

FIGURE 2.3 – (a) Modèle à deux centres diffuseurs, chaque centre diffuseur a un coefficient de transmission T_i et de réflexion $R_i = 1 - T_i$. (b) schéma montrant les réflexions multiples prises en compte pour les calculs du coefficient de transmission global du système. [Datta 1995]

$$T = \frac{T}{M(1 - T) + T}. \tag{2.16}$$

La résistance étant une quantité additive, on peut écrire la conductance totale d'un système comprenant M centres diffuseurs comme la somme de N résistances de contact plus la résistance de conducteur liée aux diffusions :

$$G^{-1} = \frac{h}{2Me^2} + \frac{h}{2Me^2}\frac{1 - T}{T}. \tag{2.17}$$

On peut montrer, dans un conducteur de longueur L, que le coefficient de transmission T peut s'écrire :

$$T = \frac{l_e}{L + l_e}. \tag{2.18}$$

où l_e est le libre parcours moyen. Utilisant les équations 2.18 et 2.14, on peut réécrire l'expression générale de la conductance :

$$G_C = \frac{2e^2}{h} N \frac{l_e}{l_e + L} \tag{2.19}$$

où N est le nombre de sous-bandes impliquées dans le transport.

2.1.4 Transport cohérent

A basse température, les probabilités de collision électron-phonon et électron-électron peuvent devenir suffisamment faible pour que la longueur de cohérence de phase l_ϕ devienne comparable au libre parcours moyen l_e. Des phénomènes liés aux interférences quantiques, comme la localisaton faible ou les fluctuations universelles de conductance vont alors apparaître. Dans le cas où $l_\phi > L$, les effets liés aux réflexions des contacts vont être importants. La nature du phénomène quantique qui va perturber la conductance va dépendre du coefficient de transmission aux contacts.

2.1.4.1 Régime Fabry-Pérot

Selon la transparence des contacts, les effets quantiques vont être de natures sensiblement différentes, (voir figure 2.4). Pour des contacts quasi-transparents, les modulations de conductance découlent de la nature ondulatoire de la fonction d'onde électronique, on parle alors de régime de Fabry-Pérot par analogie avec les cavités optiques. Dans le cas de contacts de transmission faible, par contre, le système 1D faiblement couplé aux réservoirs forme une boite quantique. La répulsion coulombienne va alors introduire une quantification supplémentaire des états dans cette boîte : c'est le blocage de Coulomb (figure 2.4 (b)). Dans le cas intermédiaire, plusieurs électrons peuvent occuper la boîte, et leur interaction mutuelle doit alors être prise en compte, c'est le régime de Kondo.

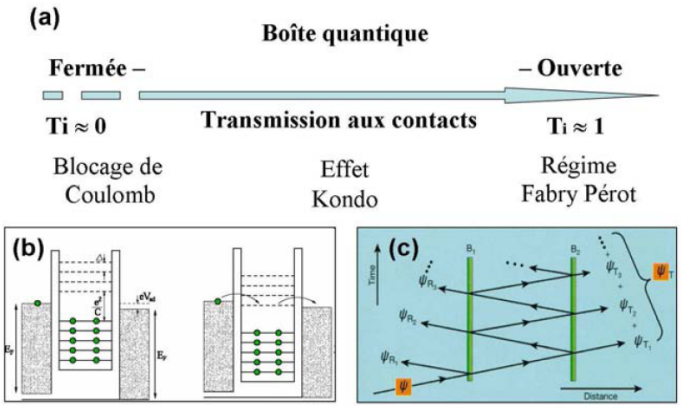

FIGURE 2.4 – (a) La valeur du coefficient de transmission au contact contrôle le régime de transport qui sera observé. (b)Régime blocage de coulomb : l'électron reste piégé dans la boite quantique, les interactions coulombiennes introduisent alors une discrétisation des états. (b) Régime Fabry-Pérot : la transmission au contact est proche de 1, les interférences des électrons avec eux-mêmes, génèrent des modulations de la conductance. D'aprés [Nanot 2009]

Le régime Fabry-Pérot se caractérise par une longueur de cohérence plus grande que les dimensions de l'échantillon. Si une faible partie de la fonction d'onde électronique est réfléchie au niveau des contacts elle va pouvoir interférer avec elle-même. Une résonnance va alors se produire quand la phase entre les électrons réfléchis et les électrons incidents est la même. C'est-à-dire quand la longueur d'onde électronique vérifie $n\lambda_F = 2L$. En fonction du vecteur d'onde 1D cela donne :

$$k_n = n\frac{\pi}{L}. \tag{2.20}$$

avec n un entier. Cette quantification du vecteur d'onde va entraîner une discrétisation des niveaux d'énergie dans la boite. L'expression de ΔE va alors dépendre de la relation de dispersion du système (voir figure 2.1.4.1). Ainsi quand le niveau de Fermi se déplace dans la structure de bande des oscillations de conductance vont apparaître, dont les maxima correspondront aux états de résonnances.

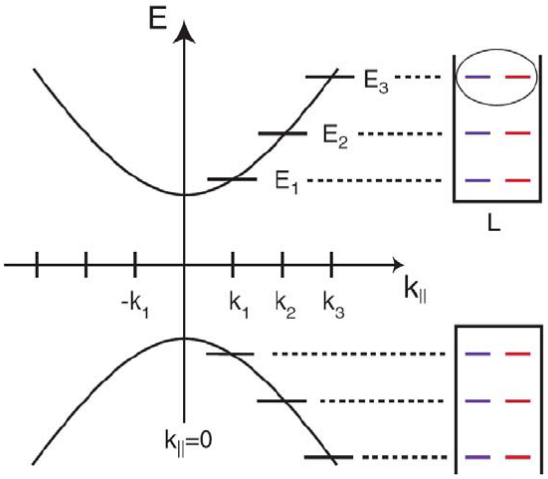

FIGURE 2.5 – Schéma représentant la quantification du vecteur d'onde k dû au confinement. On voit clairement que la quantification de l'énergie est directement liée à la forme de la dispersion électronique. Tiré de [Nanot 2009]

2.1.4.2 Fluctuations de conductance

Lorsque $L_\phi > l_e$, il faut tenir compte dans le calcul de la conductance de la phase des électrons transmits et réfléchis. Un terme de correction lié aux interférences constructives et destructives des différentes fonctions d'ondes électroniques va apparaître. Le systeme peut être vu comme une suite de boites quantiques au sein desquelles un nombre important de diffusion ont lieu, mais la phase de la fonction d'onde est conservée. La distribution inhomogène des centres diffuseurs va alors induire des variations de conductance en fonction de l'énergie. Ces variations sont différentes d'un échantillon à l'autre et sont appelées fluctuations de conductance.

2.2 Transport dans le graphène

2.2.1 Nature du désordre dans le graphène

Les porteurs de charges du graphène se propagent dans un système 2D très exposé aux perturbations extérieures, car il n'est pas, contrairement aux gaz bi-dimensionnels conventionnels, enterré dans une matrice tri-dimensionnelle. A cause de cette exposition, le désordre provenant du milieu extèrieur est inévitable et existe sous de nombreuses formes. Une contamination par des absorbats peut par exemple se produire lors de la fabrication des échantillons durant laquelle de nombreuses étapes chimiques sont nécessaires. Quand le graphène est déposé sur SiO_2 des déformations de son réseau cristallin se produisent du fait de la non planéité de l'oxyde ("ripples"). L'oxyde de silicium contient de plus des particules chargées qui, à cause de la densité de porteurs nulle au voisinage des points de Dirac, ont des conséquences importantes sur les propriétés de transport. A ces défauts extrinsèques s'ajoutent les défauts intrinsèques comme les lacunes, les substitutions atomiques ou les déchirures qui peuvent se produire dans le graphène malgré la robustesse des liaisons sigma. Les propriétés électroniques de tous les échantillons mesurés expérimentalement sont donc sujets aux effets induits par la présence de tous ces types de désordre.

2.2.2 Transport dans le graphène intrinsèque

Le graphène "pur" est un réseau hexagonal d'atomes de carbone, au sein duquel la relation de dispersion est linéaire. Dans le cas non dopé et sans l'application d'un potentiel de grille, la bande de conduction, totalement vide, et la bande de valence, pleine, sont en contact aux points de Dirac. Ce graphène intrinsèque ne possède donc pas de porteur libre. Pour un métal usuel, la conductance est nulle quand la densité de porteurs devient nulle. Pourtant, dans le cas des porteurs de Dirac présents dans le graphène la conductance n'est pas nulle. Si on considère un échantillon de graphène sans désordre de longueur L et de largeur W, relié à deux contacts constitués de graphène dopé au potentiel V, des études théoriques [Tworzydło 2006, Katsnelson 006c] montrent qu'en résolvant l'équation de Dirac la transmission au point de neutralité de charge prend la valeur :

$$T_n = \frac{1}{cosh^2[\pi(n+1/2)L/W]}. \tag{2.21}$$

Ce coefficient de transmission non nul est due à l'effet tunnel des ondes évanescentes. Ce résultat contraste avec les électrons non relativistes pour lesquels la probabilité de transmission pour une bande n donnée est inversement proportionnelle à la hauteur de la barrière de potentiel $T_n \sim 1/V$. Pour un grand nombre de modes propagateurs la conductance est donc :

$$G = G_0 \sum_n T_n = \frac{4e^2}{\pi h}\frac{W}{L}. \tag{2.22}$$

2.2.3 Transport dans le graphène désordonné

Cette partie sera consacrée aux effets des impuretés sur la conductance du graphène. De nombreux travaux démontrent que la majorité des propriétés de transport du graphène peuvent être expliquées par les phénomènes de diffusions sur des impuretés chargées.

2.2.3.1 Transport à haute densité de porteurs

Lorsque la densité de porteurs de charge et très supérieure à la densité d'impuretés présentes dans le système ($n >> n_i$ avec n_i la densité d'impuretés dans le système), il a été montré, en faisant l'hypothèse d'un système homogène, que l'approche semi classique de Boltzmann peut être appliquée. Cette approche donne la conductivité en fonction du temps de diffusion τ :

$$\sigma = \frac{e^2}{2} \int \left(-\frac{\partial f}{\partial E} \right) DoS(E) v_F^2 \tau(E) dE \tag{2.23}$$

où $DoS(E)$ est la densité d'états, et $f(E)$ la fonction de Fermi Dirac (voir partie 2.1.2). Le temps τ peut être calculé en utilisant la règle d'or de Fermi [Areshkin 2007] :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{n_{imp}}{4\pi\hbar} \int d\vec{k'} |V(q)|^2 (1 - \vec{k}.\vec{k'}) F_{\vec{k}\vec{k'}} \partial(E(\vec{k}) - E(\vec{k'})) \tag{2.24}$$

avec $q = |\vec{k} - \vec{k'}|$ l'impulsion échangé, $V(q)$ la transformée de Fourier du potentiel d'impureté et $F_{\vec{k}\vec{k'}} = 1 + cos(\theta)/2$ pour le graphène. Les premières expériences menées sur le graphène ont montré que la conductivité augmente linéairement avec la densité de porteur (voir figure 2.6) [Novoselov 2005a]. Utilisant l'équation 2.24 pour un désordre à courte portée modélisé par une fonction $V(\vec{r}) = \sum_i u_0 \delta(\vec{r} - \vec{r_i})$, il a été montré [Shon 1998] que $1/\tau \propto DoS(E)$. La conductance devient donc indépendante de la concentration. Le désordre à courte portée ne peut donc pas expliquer les résultats expérimentaux. Par contre, dans le cas des impuretés chargées $V(q) = 2\pi e^2/(\kappa q \varepsilon(q))$, avec $\varepsilon(q)$ la fonction diélectrique du graphène, la conductance varie de manière linéaire avec la variation de la densité de charge, en bon accord avec les résultats expériementaux.

Pour des échantillons de très grandes mobilités, des variations sous linéaires de la conductivité en fonction de la densité de porteur ont été observées [Chen 2009a]. Ces résultats peuvent être modélisés en prenant en compte une combinaison des deux désordres présentés ci-dessus, tel que $1/\tau = 1/\tau_c + 1/\tau_s$ avec τ_c le temps de diffusion dû au désordre coulombien et τ_s celui dû aux impuretés de courte portée.

2.2.3.2 Transport à faible densité de porteurs

Quand la densité de porteurs diminue, l'écrantage devient plus faible et la présence d'impuretés chargées induit une modification du potentiel électrostatique local. Près du point de neutralité de charge, la densité de porteurs induite par l'application

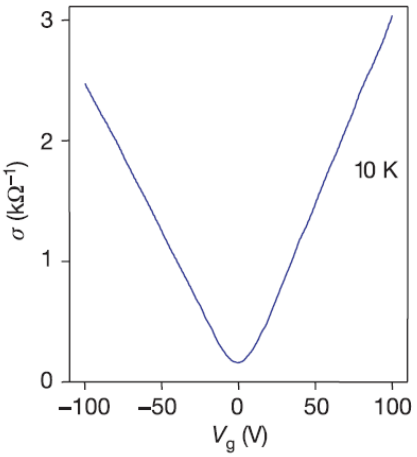

FIGURE 2.6 – (a) Conductivité en fonction de la tension de grille V_G. Adapté de [Novoselov 2005a].

d'une tension de grille, peut devenir plus petite que les fluctuations de la densité de porteur induites par la présence des impuretés chargées. Le système va donc se morceler en îlots (puddles), contenant exclusivement soit des électrons soit des trous. Le concept d'échantillon homogène ne peut donc plus être appliqué ici. Il est prévu que pour $n \leq n_i$ le transport soit dominé par les effets liés à la présence de ces îlots. Des expériences utilisant un transistor à électron unique ont permis d'effectuer une cartographie de la densité de porteur locale au voisinage du point de neutralité de charge [Martin 2008, Miller 2010]. La densité de porteurs déduite au point de neutralité de charge du régime d'effet Hall dans cette expérience [Martin 2008] est de $n = 2.3 \times 10^{11} cm^{-2}$. La taille estimée de ces îlots, c'est-à-dire pour la longueur caractéristique des fluctuations de densité de charge a été trouvée égale à $\sim 30nm$. L'existence de ces îlots a aussi été confirmée par une mesure de magnéto-résistance à proximité du point de neutralité de charge. Cho et. al [Cho 2008] ont montré qu'à faible densité de porteurs la résistance de Hall $R_{xy}(B)$ devient quasi-nulle alors que la résistance longitudinale $R_{xx}(B)$ augmente. D'autre part, ces résultats sont en accord avec le modèle à deux porteurs dans un conducteur homogène. Mais cet accord peut être amélioré en prenant en compte des îlots de trous et d'électrons spatialement ségrégés d'égale mobilité. Cela implique qu'à faible densité de porteurs, les deux types de porteurs de charges sont présents dans le système et se propagent dans un paysage constitué d'une multitude d'îlots de trous et d'électrons, spatialement séparés, aux interfaces desquels se forment des jonctions p-n. L'existence de ces inhomogénéités de densité de porteurs doit donc être prise en compte pour interpréter les phénomènes de conduction proche du point de neutralité de charge. Par exemple, le calcul de la conductance dans ce système inhomogène montre que le minimum de conductivité pour de fortes valeurs de densité d'impureté est proche

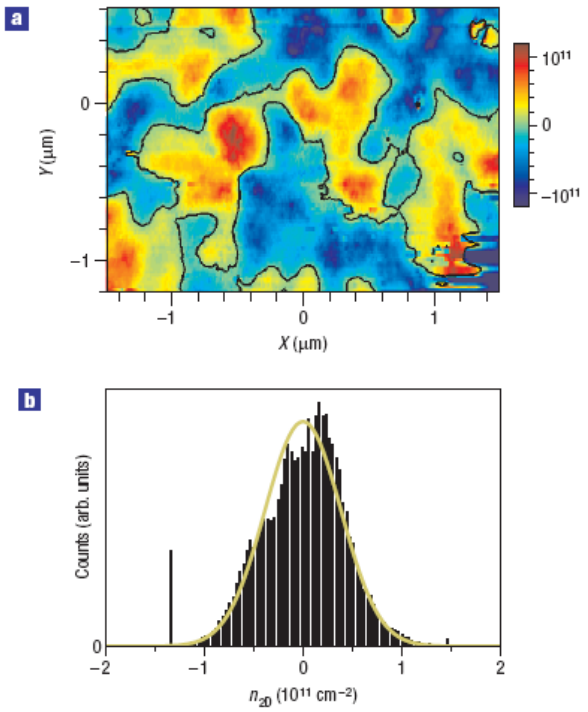

FIGURE 2.7 – (a) Densité locale de charge mettant en évidence les ilots électrons-trous. Carte représentant la variation spatiale de la densité de charge, pour un feuillet de graphène. Les régions bleues correspondent aux trous et les rouges aux électrons. (b) histogramme représentant la distribution de densité. D'après [Martin 2008]

de $4e^2/h$ et est peu sensible à une faible variation de la densité de désordre. Pour les échantillons plus propres, la conductance peut atteindre des valeurs proches de $8e^2/h$ et est très sensible à la densité de désordre [Adam 2007]. La taille des îlots et la densité de porteurs au point de neutralité de charge sont fortement dépendantes de la qualité des échantillons. En effet des mesures sur du graphène déposé sur nitrure de bore, possédant une très grande mobilité, ont révélé des tailles d'îlots d'un ordre de grandeur supérieure à celle observées dans le graphène sur SiO_2 [Xue 2011].

2.2.4 Transport dans les nanorubans de graphène

2.2.4.1 Nanoruban balistique

Dans un nanoruban de graphène parfait, c'est-à-dire sans désordre, le transport entre les deux contacts métalliques est balistique. Le formalisme développé dans la partie 2.1.3 peut donc être utilisé. Chaque sous bande 1D va contribuer au transport d'un quantum de conductance G_0. Le calcul de la conductance du système nécessite la détermination du nombre de modes transverses $M(E)$ impliqués dans le transport

à l'énergie E. La quantité $M(E)$ peut être facilement déduite de la structure de bande calculée dans la partie 1.3. Un nanoruban semi-conducteur de type armchair , ne possède à énergie nulle aucune sous bande conductrice, sa conductance est donc nulle. A mesure que le niveau de Fermi s'éloigne de l'énergie zéro, de nouvelles bandes sont impliquées dans le transport. Comme évoqué précédemment dans un ruban de type armchair, la dégénérescence de vallée est levée. Sans prendre en compte le spin, la dégénérescence des modes transverses est donc égale à 1. La conductance augmente donc de G_0 chaque fois qu'une bande supplémentaire est impliquée dans le processus de conduction. La figure 2.8 montre la conductance en fonction de l'énergie du niveau de Fermi pour un ruban de type armchair ($N = 90$) à température nulle et tension de polarisation nulle, ainsi que sa structure de bande. Pour les nanorubans métalliques l'absence du gap impose une conductance égale à G_0 même à énergie nulle, la conductance va ensuite évoluer par pallier de G_0 exactement comme dans le cas semi-conducteur.

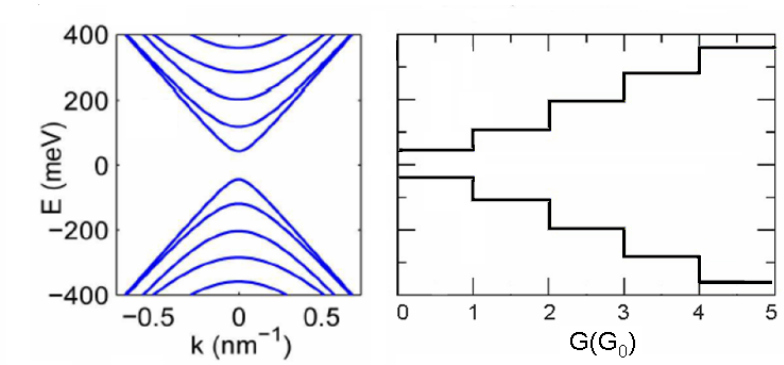

FIGURE 2.8 – Structure de bande 1D pour un nanoruban de type armchair ($N = 90$), et conductance théorique en fonction de l'énergie du niveau de Fermi. Adapté de [Poumirol 2010b].

A énergie nulle un nanoruban de type zigzag possède deux sous bandes non dispersives, la conductance est donc égale à $2G_0$. Si la valeur du niveau de Fermi est modifiée de façon même infinitésimale , une des bandes est perdue et la conductance tombe à G_0 (voir figure 2.9). Ce phénomène nécessitant un contrôle très fin de l'énergie du niveau de Fermi, est très difficile à observer expérimentalement. Quand le niveau de Fermi s'éloigne de zéro de nouvelles bandes sont impliquées dans le processus de conduction exactement comme dans le cas armchair. La conductance augmente donc par pallier de $2G_0$ car la dégénérescence de vallée n'est pas levée.

$$G = \frac{2(2n+1)e^2}{h} = 1, 3, 5, ...G_0 \tag{2.25}$$

Les effets de la température sont pris en compte dans le calcul de la conductance en

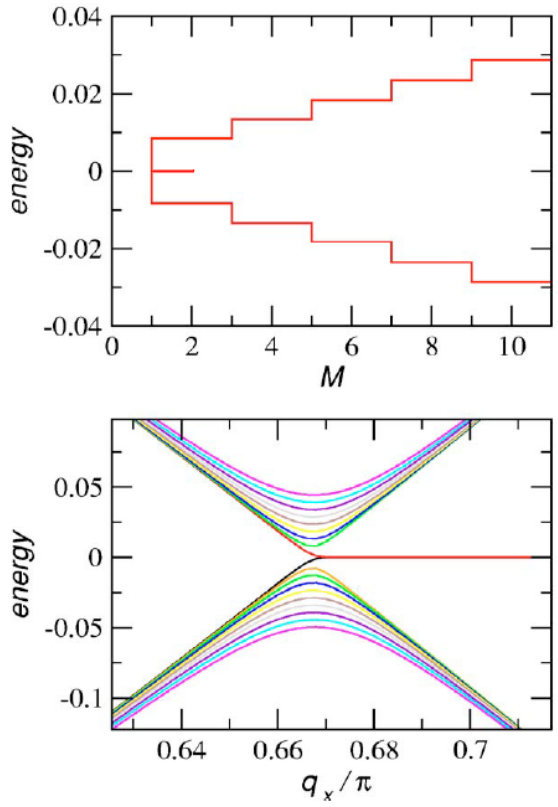

FIGURE 2.9 – Structure de bande 1D pour un nanoruban de type zigzag, et conductance théorique en fonction de l'énergie du niveau de Fermi. Tiré de [Peres 2006].

introduisant la distribution de Fermi-Dirac.

$$G(T) = \frac{2e^2}{h} \int M(E) \frac{\partial f(E - Ef)}{\partial E} dE \tag{2.26}$$

La conductance obtenue à partir de l'équation 2.26 est montrée en figure 2.10. A faible température (5K) l'énergie séparant deux bandes consécutives (environ $2.5mev$) est bien plus grande que l'énergie d'activation thermique $k_B T = 0.4meV$, la conductance présente donc toujours une succession de marches d'escalier. Quand la température augmente les deux énergies deviennent comparables, à $T = 20K$, $k_B T = 1.7meV$, la conductance ne présente plus des marches d'escalier bien marquées mais des transitions plus douces. Si l'énergie d'activation thermique devient plus grande que l'énergie séparant deux bandes consécutives, le caractère quantifié de la conductance ne sera alors plus visible.

2.2.4.2 Nanoruban désordonné

Dans cette partie, les effets du désordre sur les propriétés de conduction des nanorubans de graphène seront étudiés. Trois types de désordre seront évoqués : le

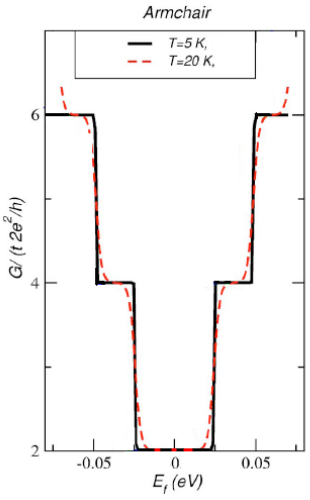

FIGURE 2.10 – conductance en unité de $2e^2/h$ pour un ruban amchair en fonction de E_F, pour différentes valeurs de température T. Tiré de [Peres 2006].

désordre ponctuel (modélisant par exemple des molécules non chargées absorbées à la surface de l'échantillon), le désordre de longue portée (modélisant par exemple les impuretés chargées), puis viendra ensuite l'étude d'un désordre propre aux nanorubans : le désordre de bords. Les effets de ces différents types de désordre ont été largement étudiés dans la littérature, en raison de leur pertinence et de leur présence démontrées.

-Désordre de courte portée :
Les effets du désordre de courte portée sur la conductance sont calculés en utilisant le modèle d'impureté de type Anderson. Ce désordre est introduit comme une fluctuation aléatoire de l'énergie d'un site atomique dans l'Hamiltonnien liaisons fortes. L'énergie d'un site ε passe alors de 0 à $\delta\varepsilon$ avec $\delta\varepsilon \in [-W\gamma_0/2, W\gamma_0/2]$ [Lherbier 2008]. Le paramètre W définit donc la force du désordre. La conductance est calculée en utilisant l'approche de Landauer. La figure 2.11 montre la conductance de deux rubans, un de type armchair, l'autre de type zigzag de largeur $\sim 20nm$, dans trois configurations différentes : sans désordre, avec un désordre de type Anderson faible ($W = 0,5$) et fort ($W = 2$). Pour un désordre faible, il apparaît que la conductance du nanoruban de type zigzag est bien plus affectée que celle du nanoruban de type armchair. Pour quantifier cela, on définit la longueur de localisation ξ. Il s'agit d'une longueur caractéristique définissant l'extension spatiale de la fonction d'onde. Quand $L > \xi$, le système entre dans un régime de localisation forte pour lequel la conductance décroît exponentiellement avec la longueur du système :

$$G = G_0 e^{-L/\xi}. \tag{2.27}$$

La figure 2.11 (c) montre que la conductance moyenne normalisée suit la décrois-

sance exponentielle en L, ce qui permet d'en extraire la longueur de localisation ($\langle lnG/G_0\rangle \sim L/\xi$). La longueur de localisation calculée loin du point de neutralité de charge (voir flèche sur la figure 2.11 (a)) pour le ruban armchair est approximativement supérieure de deux ordres de grandeur à celle du ruban de type zigzag ($\sim 1\mu m$ et $\sim 30nm$ respectivement). Cette différence peut être expliquée en invoquant l'extension plus importante de la fonction d'onde des rubans de type armchair. Pour un désordre plus fort ($W = 2$), la conductance des deux types de ruban est fortement affectée avec une forte décroissance de la valeur de conductance quelle que soit l'énergie. La quantification de la conductance n'est alors plus observable. Les longueurs de localisation extraites sont alors identiques (quelques nanomètres) pour les deux types de ruban, démontrant que lorsque le désordre devient trop fort la configuration des bords n'a pas d'influence sur la conductance.

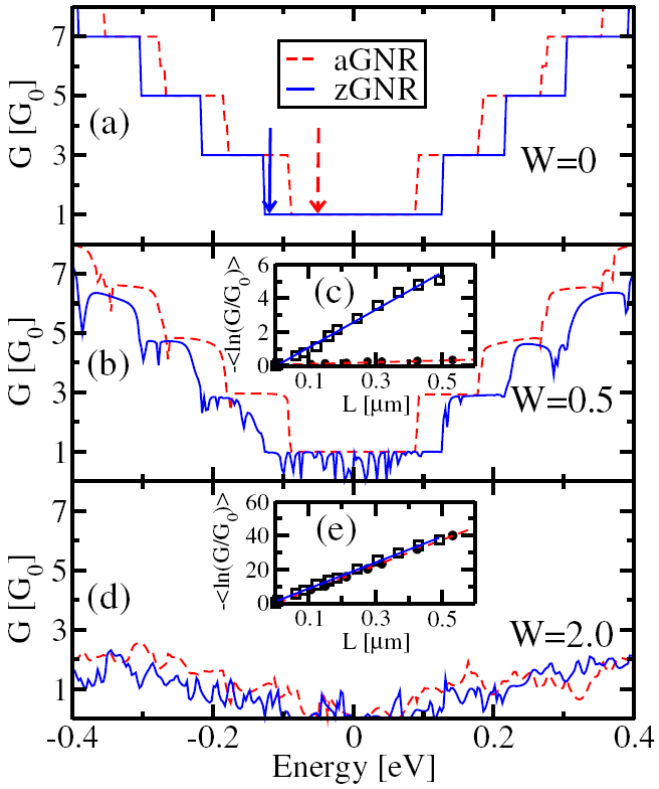

FIGURE 2.11 – Conductance pour un nanoruban de type zigzag idéal (ligne bleue) et armchair (ligne rouge pointillés) de largeur 20 mn. Conductance pour une configuration de désordre pour un ruban zigzag (ligne bleu) et armchair (ligne rouge pointillés) pour $W = 0.5$. (c) Conductance moyennée sur 400 configurations de désordre en fonction de la longueur L du nanoruban. (d) et (e) même informations que en (b) et (c) avec $W = 2$ [Lherbier 2008].

-Désordre de longue portée :
Comme précisé dans le chapitre 2.2.1, des particules chargées peuvent être piégées dans l'oxyde sur lequel est déposé l'échantillon. Ces particules chargées induisent un potentiel électrostatique de longue portée, qui peut être approximé par une Gaussienne d'extension spatiale d : $\varepsilon_i = \sum_{r_0} V_0 exp(-|r_i - r_0|^2/d^2)$ avec V_0 l'amplitude et r_0 la position de l'impureté (voir inser figure 2.12 a) [Ihnatsenka 2009]. Les figures 2.12 (a) et (b) présentent la conductance calculée, pour différentes longueurs de ruban de type armchair métalliques, en présence de ce type de désordre. La position des impuretés et leurs amplitudes sont déterminées aléatoirement, la densité d'impuretés dans cet exemple est de $\rho = 5 \times 10^{15} m^{-2}$. Pour donner un ordre de grandeur, le ruban a une largeur de 30nm et une longueur de 250nm (courbe bleue). Une trentaine de défauts sont présents sur l'échantillon. La présence de ce type de désordre entraîne un mélange entre les différentes sous bandes, qui affecte fortement la quantification de la conductance. Les bandes de haute énergies sont plus affectées par ce phénomène car la probabilité de rétro diffusion augmente avec l'indice de la bande. Pour une longueur de $1\mu m$ la conductance à forte énergie est approximativement égale à celle due aux deux premières sous bandes. De manière surprenante le premier plateau de conduction ne semble absolument pas être affecté par ce type de désordre et ce malgré le faible Δk nécessaire à la rétro diffusion dans la première sous bande . Cela est dû à la différence de phase de π qui existe entre ces deux bandes (voir figure 2.12 (c) et (d)). Un désordre de longue portée ne peut pas être responsable de la rétro-diffusion, la conduction dans la première bande est donc conservée.

-Désordre de bords :
A la différence du graphène bi-dimensionnel ou des nanotubes, les nanorubans sont soumis à l'imperfection de leurs bords. La régularité des bords d'un nanoruban est très difficile à contrôler expérimentalement, et les méthodes de fabrication actuelle ne peuvent empêcher l'apparition d'une rugosité. A l'aide de la microscopie à effet tunnel [Niimi 2006, Kobayashi 2006] ou de microscopie à force atomique [Banerjee 2005] la présence de ce désordre de bord a été mis en évidence. On définit la création d'un défaut de bord comme la suppression d'une paire C-C au bord de l'échantillon. La figure 2.13 (b) montre qu'une concentration de 10 % de ce type de défaut suffit à détruire le comportement balistique de la conductance pour un ruban de $1\mu m$ de long et $6.4nm$ de large et ce pour toutes les sous bandes. Pour les nanorubans de type zigzag, en revanche, il semble que le régime de conduction soit moins affecté. En effet sur la figure 2.13 (a) on peut voir que malgré le fait que 50% des atomes de carbone aient été supprimés sur les 4 couches externes, (contre 10 % seulement sur la couche externe dans la figure 2.13 (b)) la valeur de conductance du premier plateau n'est quasiment pas altérée et l'ajout d'une nouvelle sous bande de conduction est encore visible. Dans le cas d'un nanoruban de type zigzag idéal, la présence des états peu dispersifs localisés sur les bords induit une forte augmentation de la densité d'états. Les porteurs injectés avec une énergie supérieure à celle des états localisés toujours au sein de la première bande, ne se propagent donc pas près des

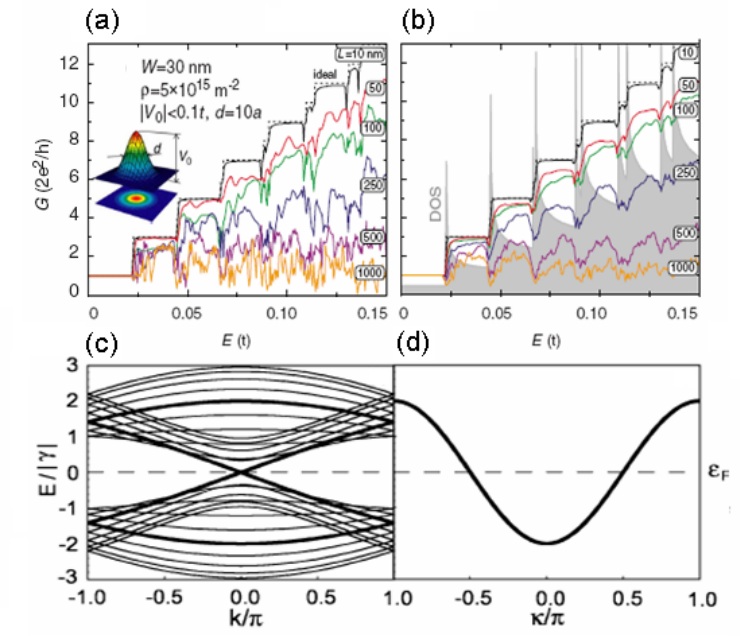

FIGURE 2.12 – (a) Conductance (b) conductance moyenne, pour un nanoruban de type armchair de largeur W=30nm et de différente longueur L=10 -1000nm. (c) Structure de bande pour un nanoruban métallique de type armchair ($N = 13$). (d) La bande noire de la figure c, déroulée pour la montrer comme une seule bande. D'aprés [Areshkin 2007]

bord. La conduction resultante de ces états est donc peu sensible aux défauts de bords.

2.2.5 Conclusion sur le transport dans le graphène

Nous avons vu dans cette partie l'existence pour le graphène d'un minimum de conductivité au point de neutralité de charge. En effet, malgré une densité de porteur nulle, la nature relativiste des porteurs dans le graphène entraîne une quantification de la conductance. Cette caractéristique est de première importance car elle prévient la fabrication de transistor à base de graphène. Nous avons aussi pu voir que les impuretés chargées ont une influence primordiale sur les propriétés de transport dans le graphène. Au point de neutralité de charge, leur présence induit le morcelage du système en îlots d'électrons et de trous spatialement ségrégués. A forte densité de porteurs, le désordre longue portée est responsable de la variation linéaire de la conductance avec la densité de porteurs.

Dans les nanorubans de graphène la quantification en sous bande 1D induit dans les rubans balistiques, une quantification de la conductance. La suite des plateaux de conductance est différente selon que le ruban est de type armchair ou zigzag. La

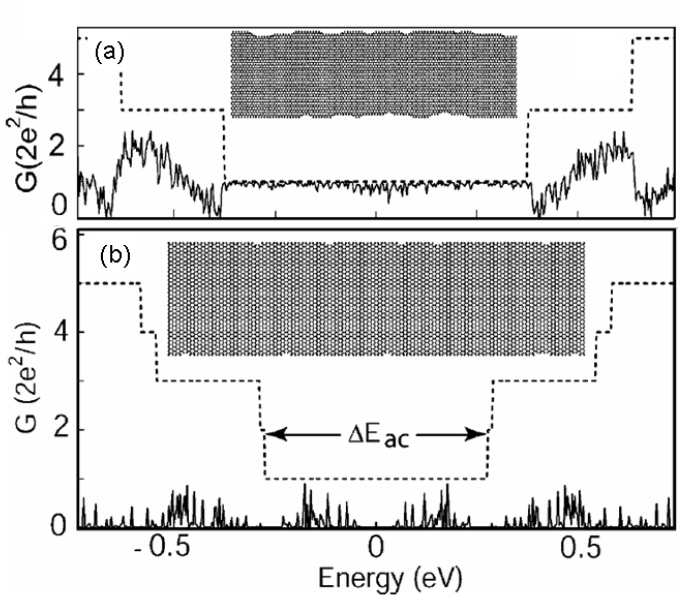

FIGURE 2.13 – (a) Conductance d'un nanoruban de type zigzag de $1\mu m$ de long et $6.7nm$ de large ($N = 64$) en présence de désordre de bord modélisé par la suppression d'atome de carbone sur les quatre premières couches. La conductance du nanoruban sans défaut est indiquée en ligne pointillée. (b) Conductance d'un nanoruban de type armchair métallique de longueur $1\mu m$ et de largeur $6.40nm$ en présence de désordre de bord. 10% des atomes de carbone ont été retirés sur la première couche. Tiré de [Ihnatsenka 2009]

présence de désordre, que ce soit de longue portée, de courte portée ou de bords, entraîne une augmentation de la diffusion inter et intra-bande ; qui peut, lorsque le désordre est assez important entrainer la disparition du caractère quantifié de la conductance.

2.3 Effet Hall quantique

L'effet Hall quantique entier est l'une des découvertes de la physique de la matière condensée les plus significatives des années 80 (voir [Klitzing 1980]). Normalement la quantification de la conductance des conducteurs balistiques, présentée dans la partie précédente, n'est valable qu'à quelques pour cent près, puisque qu'aucun conducteur n'est réellement balistique. Dans le régime d'Effet Hall quantique par contre, la quantification de la résistance de Hall en présence d'un champ magnétique a été mesurée avec des précisions de l'ordre de 1 par million et des canaux de conduction balistique sur plusieurs centaines de micron de distance sont réalisables. Dans ce chapitre nous présenterons les mécanismes responsables de la quantification de la conductance dans le régime d'effet Hall quantique. Nous verrons que la précision de

cette quantification est liée à la suppression quasi totale des processus de relaxation de l'impulsion.

2.3.1 Niveaux de Landau et Etats de bords

2.3.1.1 Niveaux de Landau

Si on considère un rectangle conducteur bi-dimensionnel de longueur L et de largeur W soumis à un champ magnétique $\vec{B}$ perpendiculaire au plan du conducteur, le mouvement des électrons dans le système est décrit par :

$$\left[E_c + \frac{(i\hbar\vec{\nabla} + e\vec{A})^2}{2m}\right]\Psi(x,y) = E\Psi(x,y) \tag{2.28}$$

avec $\vec{A}$ le potentiel vecteur, $\vec{A}(-By,0)$ dans la jauge de Landau et E_c l'énergie du minimum de la bande de conduction. On peut reécrire cette équation sous la forme :

$$\left[E_c + \frac{(p_x + eBy)^2}{2m} + \frac{p_y^2}{2m}\right]\Psi(x,y) = E\Psi(x,y) \tag{2.29}$$

où $p_x = -i\hbar\frac{\partial}{\partial x}$ et $p_y = -i\hbar\frac{\partial}{\partial y}$. La solution de l'équation 2.29 peut être exprimée sous la forme d'ondes planes :

$$\Psi(x,y) = \frac{1}{\sqrt{L}}exp(ikx)\chi(y) \tag{2.30}$$

où la fonction transverse $\chi(y)$ satisfait l'équation :

$$\left[E_c + \frac{(\hbar k + eBy)^2}{2m} + \frac{p_y^2}{2m}\right]\chi(y) = E\chi(y) \tag{2.31}$$

Celle-ci peut être réécrite sous la forme :

$$\left[E_c + \frac{1}{2}m\omega_C^2(y + y_k)^2 + \frac{p_y^2}{2m}\right]\chi(y) = E\chi(y) \tag{2.32}$$

avec $y_k = \hbar k/(eB)$ et $\omega_c = |e|B/m$
l'équation 2.32 est l'équation de Schrödinger à une dimension avec un potentiel parabolique centré en $-y_k$. Les valeurs propres et énergies propres sont donc de la forme :

$$\chi_{n,k}(y) = u_n(q + q_k)$$
$$E(n,k) = E_c + (n + 1/2)\hbar\omega_c \tag{2.33}$$

On retrouve ici un résultat très semblable à celui obtenu pour le confinement d'un gaz électronique bi-dimentionnel par un potentiel électrostatique. Pourtant, malgré une description mathématique quasi identique, les propriétés physiques des niveaux de Landau (voir équation 2.33) et des sous bandes électriques obtenues pour des

électrons confinés dans un potentiel électrostatique, sont très différentes (voir figure 2.14). Si on regarde par exemple la vitesse de groupe associée à ces niveaux :

$$v_{n,k} = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial E(n,k)}{\partial k} = 0 \tag{2.34}$$

Comme E est indépendant de k, la vitesse de groupe est nulle. Un paquet d'onde appartenant à un de ces états est donc localisé en x.

La densité d'états d'un niveau de Landau est $d = geB/h$, elle augmente li-

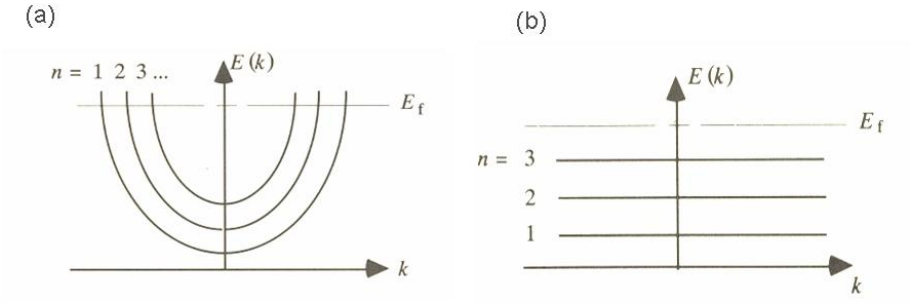

FIGURE 2.14 – (a) Relation de dispersion pour des sous bandes électroniques provenant d'un confinement électrostatique d'un gaz 2D d'électron. (b) Relation de dispersion pour des niveaux de Landau (sous bandes magnétiques) dans un gaz 2D non confiné soumis à un champ magnétique non nul. D'aprés [Datta 1995]

néairement avec le champ magnétique. Plus le champ magnétique est grand, plus la densité de porteurs que pourra accueillir un niveau de Landau est grande. Pour une densité de porteurs n donnée le nombre de niveaux de Landau occupés, c'est-à-dire le nombre de niveaux de Landau situés sous le niveau de Fermi, est donné par le facteur de remplissage $\nu = nh/(geB)$.

2.3.1.2 Etats de bords

Introduisons maintenant un potentiel de confinement $U(y)$ (voir figure 2.15), on peut alors écrire au premier ordre de la théorie des perturbations :

$$E(n,k) = E_s + (n+1/2)\hbar\omega_c + \langle n,k|U(y)|n,k\rangle \tag{2.35}$$

si le potentiel $U(y)$ est quasiment constant par rapport à l'extension spatiale des niveaux de Landau ($(\approx \hbar/m\omega_c)^{1/2}$) on peut écrire :

$$E(n,k) = E_s + (n+1/2)\hbar\omega_c + U(y_k) \tag{2.36}$$

La relation de dispersion $E(n,k)$ possède alors une forme semblable au potentiel de confinement. Au milieu de l'échantillon les états ont la forme des niveaux de Landau

d'un gaz 2D non confiné avec une relation de dispersion indépendante de k. Près des bords apparaissent des états de bord dont la vitesse de groupe est non nulle :

$$v_{n,k} = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial E(n,k)}{\partial k} = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial U(y_k)}{\partial k} = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial U(y_k)}{\partial y}\frac{\partial y_k}{\partial k} = \frac{1}{eB}\frac{\partial U(y)}{\partial y} \tag{2.37}$$

Ces états sont localisés aux deux bords de l'échantillon et portent des courants en direction opposée.

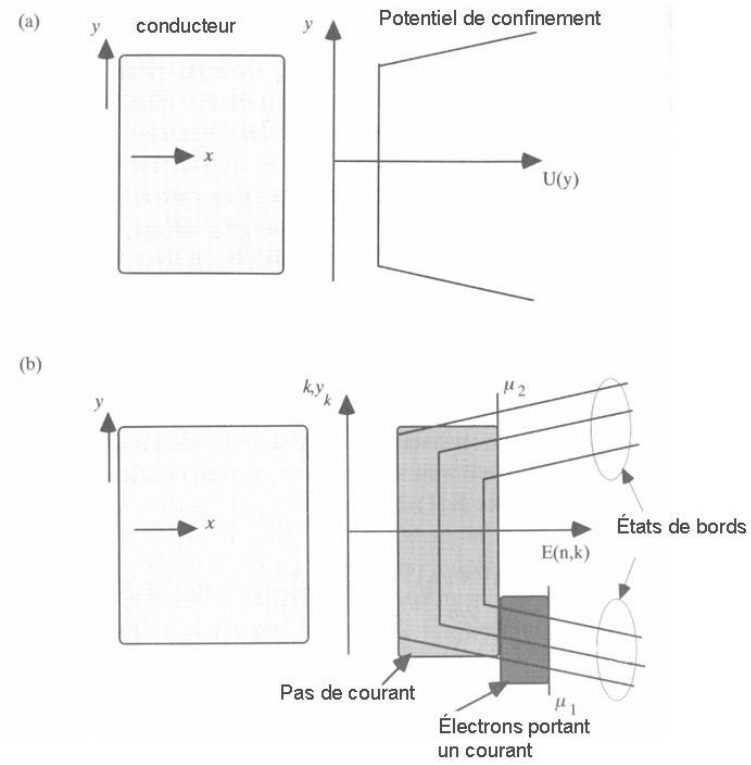

FIGURE 2.15 – (a) Conducteur rectangulaire uniforme dans la direction x et soumis au potentiel U(y) dans la direction y (b) Schéma de la relation de dispersion du conducteur en champ magnétique, une différence de potentiel $\mu_1 - \mu_2$ est appliquée aux bornes du conducteur. D'aprés [Datta 1995]

2.3.1.3 Résistance de Hall

Si ce système est soumis à une différence de potentiel $\mu_1 - \mu_2$, les états $+k$ sont alors occupés jusqu'à un quasi niveau de Fermi d'énergie supérieure aux états $-k$ (voir partie 2.1.2). La résistance est alors déterminée par le temps de relaxation des porteurs ayant un k positifs, et d'énergie comprise entre μ_1 et μ_2. Les états portant le courant dans un sens sont ici spatialement séparés des états portant le courant dans l'autre sens. Pour relaxer son impulsion, un électron doit donc passer d'un côté

de l'échantillon à l'autre, mais cela est impossible car le recouvrement entre les fonctions d'ondes est nul (exponentiellement faible), de plus aucun état n'est disponible à l'intérieur du conducteur (voir figure 2.15). En l'absence de rétro diffusions, les électrons provenant de la droite sont transmis vers le contact de gauche de manière balistique et restent donc au potentiel du contact. La différence de potentiel entre deux points situés du même coté de l'échantillon est donc nulle, alors que la différence de potentiel entre deux points situés de part et d'autre de l'échantillon est égale à $eV_H = (\mu_1 - \mu_2)$. Cela n'est vrai que lorsque le niveau de Fermi se situe entre 2 niveaux de Landau. En effet quand le niveau de Fermi est à la même énergie qu'un niveau de Landau, il existe des états disponibles au centre de l'échantillon qui autorisent le passage des électrons d'un bord à l'autre. La rétro diffusion ainsi rétablie se traduit par une augmentation de la résistance longitudinale vers un maximum. Celle-ci va retomber progressivement à zéro quand le niveau de Landau et le niveau de Fermi s'éloignent à nouveau à mesure que le champ magnétique augmente, ou que l'énergie du niveau de Fermi varie quand la densité de porteur est modifiée par l'application d'un potentiel de grille. On obtient ainsi une résistance longitudinale qui va osciller (oscillations de Shubnikov-deHass)(voir figure 2.16). Dans le régime d'effet Hall quantique le calcul de la résistance transverse passe par le calcul du courant circulant d'un contact à l'autre. En utilisant l'équation 2.13 on peut écrire :

$$I = \frac{ge^2}{h} M(\mu_1 - \mu_2) \tag{2.38}$$

où M est le nombre d'états de bords que croise le niveau de Fermi et g la dégénérescence de chaque état. On peut alors écrire :

$$R_L = \frac{V_L}{I} = 0 \qquad R_H = \frac{V_h}{I} = \frac{h}{ge^2 M} \tag{2.39}$$

Cela signifie que la résistance de Hall est quantifiée et qu'à chaque fois qu'un niveau de Landau passe au-delà du niveau de Fermi la résistance augmente. On définit $\nu = gM$ le facteur de remplissage, qui indique le nombre de niveau de Landau situés sous le niveau de Fermi.

La figure 2.16 montre un exemple de mesure de magnéto-transport dans un gaz bi-dimensionnel. Cette expérience est réalisée à densité de porteurs constante en balayant le champ magnétique de 0 à $6T$. La résistance longitudinale indexée R_{XX} sur la figure montre bien le caractère oscillant prédit. A densité de porteurs constante et pour de grands nombres quantiques, ces oscillations sont périodiques en $1/B$ (voir insert figure 2.16) avec une période $P(T^{-1})$:

$$P = \frac{2e}{nh} \tag{2.40}$$

Au-delà de 2 Tesla, les minima de la magnéto-résistance longitudinale ont une résistance nulle, la rétro diffusion entre les états de bords est alors inexistante. Bien qu'en théorie la densité d'états des niveaux de Landau soit une fonction de Dirac, en pratique, la diffusion sur des défauts entraîne un élargissement de ces niveaux.

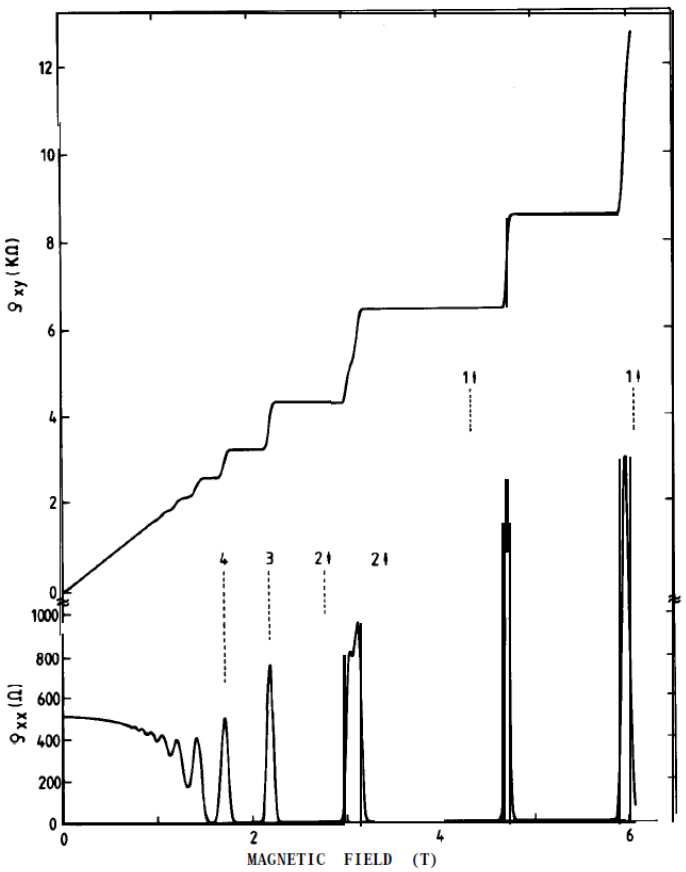

FIGURE 2.16 – Courbes expérimentales de résistance de Hall et de magnéto-résistance longitudinale d'une heterostructure en fonction du champ magnétique à densité de porteur fixée ($V_g = 0V$). La température est de 8mK . D'après [Klitzing 1985]

A faible champ magnétique, la séparation énergétique des niveaux de Landau étant faible, un recouvrement de deux niveaux consécutifs se produit, il existe donc toujours des états au coeur de l'échantillon permettant la rétro diffusion. La résistance longitudinale est alors toujours marquée d'un minimum mais celui-ci n'a plus une résistance nulle. Entre deux maxima de la magnéto-résistance, c'est-à-dire lorsque le niveau de Fermi se situe entre deux niveaux de Landau, la résistance de Hall montre comme prévu un plateau de résistance. La résistance de Hall évolue alors par plateaux successifs à chaque fois qu'un nouveau niveau de Landau passe le niveau de Fermi et que le système perd donc un canal de conduction.

2.3.2 Effet Hall quantique dans le graphène et le graphène multi-couches

Comme cela a été montré dans le chapitre 1.1.3, la séquence des niveaux de Landau du graphène est différente de celle des gaz 2D conventionnels. De plus pour le graphène multi-feuillet, le nombre de couches influence fortement la quantification en niveaux de Landau. On peut donc s'attendre à ce que l'effet Hall quantique qui découle directement de la quantification en niveaux de Landau soit différent pour chacun de ces systèmes. La figure 2.17 montre de manière schématique la densité d'états d'un semi-conducteur 2D conventionnel, du graphène et du graphène bi-couche à un champ magnétique constant, ainsi que la conductance de Hall qui en découle. Comme décrit dans la partie précédente, chaque niveau de Landau rempli va contribuer à la conductance à hauteur de ge^2/h. A champ constant, les valeurs de la conductance de Hall ne vont alors dépendre que du nombre d'états qui vont successivement se remplir lorsque le niveau de Fermi sera modifié. En considérant $g = 4$, c'est-à-dire un semi-conducteur possédant une dégénérescence de spin et de vallée, on voit clairement que la suite de facteur de remplissage pour la figure 2.17 (a) est donné par $\nu = ..., -12, -8, -4, 0, 4, 8, 12, ...$ Les plateaux de conductance vont alors former une suite ininterrompue de marches équidistantes, séparées de $4e^2/h$.

$$\sigma_{xy} = 4n\frac{e^2}{h} \tag{2.41}$$

Pour le graphène, en revanche, l'existence du niveau de Landau à énergie nulle génère une suite de facteurs de remplissage différente du cas précédent, avec $\nu = ..., -10, -6, -2, 2, 6, 10, ...$ (voir figure 2.17 (c)). Les plateaux sont, comme dans le cas précédent, équidistants et séparés de $4e^2/h$. Par contre le plateau de conductance correspondant au facteur de remplissage nul disparaît.

$$\sigma_{xy} = 4\left(n + \frac{1}{2}\right)\frac{e^2}{h} \tag{2.42}$$

Le facteur $1/2$ apparait car la moitié des états dégénérés du niveau d'énergie zéro sont occupés par des trous et l'autre moitié par des électrons. La premiere observation de l'effet Hall quantique dans le graphène a été faite par K.S Novoselov et. al. en 2005 [Novoselov 2005a] sur un échantillon de graphène produit par exfoliation mecanique et deposé sur SiO_2 (voir la figure 2.18 (a)). La mobilité de l'échantillon étant d'environ $15000cm^2/V.s$, on voit clairement apparaitre sur la figure 2.18 (a), pour un champ magnetique de $14T$, l'effet Hall quantique prédit theoriquement, avec l'apparition des plateaux de resistance à des valeurs demi-entières de ν lorsque la dégénéresecence de 4 est prise en compte. Cette observation de l'effet Hall quantique entier dans le graphène a confirmé que les porteurs de charge dans le graphène sont bel et bien des fermions relativistes sans masse.

Dans le cas du graphène bi-couche, le niveau zéro n'est plus constitué d'un niveau mais de deux, sa dégénérescence est donc double $g_{n=0} = 8$, partagée entre trous et électrons. A champ magnétique identique la densité d'états du niveau $n = 0$ du

graphène bi-couche est donc deux fois plus importante que celle du graphène (voir figure 2.17). La suite de facteur de remplissage découlant de la présence d'un tel niveau est donc $\nu = ..., -12, -8, -4, 4, 8, 12, ...$ La quantification des plateaux est donc identique à celle obtenue pour un gaz 2D conventionnel, mis à part que le plateau de conductance nulle disparaît. La conductance effectue entre le premier niveau de trou et le premier niveau électronique un saut de $8e^2/h$.

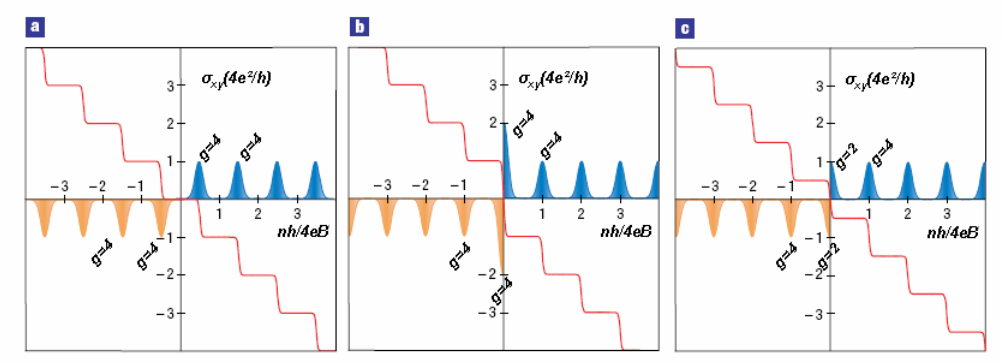

FIGURE 2.17 – Schéma de l'effet Hall quantique entier (a) gaz 2D conventionnel (b) graphène bi-couche (c) graphène. La conductance est en unité de ge^2/h, les niveaux de Landau sont tracés en fonction du facteur de remplissage nh/geB. Adapté de [Novoselov 2006].

Expérimentalement c'est en 2006 que l'effet Hall quantique entier a été mesuré pour la première fois dans le graphène bi-couche [Novoselov 2006]. La figure 2.18 (b) montre la résistance de Hall à deux champs magnétiques diffèrents $12T$ et $20T$, pour des valeurs de densité de porteur allant de $-5 \times 10^{-12} cm^{-2}$ a $-5 \times 10^{-12} cm^{-2}$. Comme attendu, les plateaux de conductance apparaissent à des valeurs entières, mais le dernier plateau à conductance nulle n'est pas présent. Cette mesure confirme que les porteurs de charge dans le graphène bi-couche sont chiraux comme ceux du graphène, mais possèdent une masse (dispersion parabolique a faible énergie).

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1.2.4, la dégénérescence du niveau d'énergie nulle pour le graphène tri-couche est égale à $g = 12$ et ce quelque soit le type d'empilement (A-B-C ou A-B-A). Le dernier plateau de la séquence d'effet Hall quantique est donc celui correspondant à $\nu = 6$.

2.3.2.1 Levée de dégénérescence

La séquence de plateaux de la conductivité de Hall exposée dans la section précédente décrit l'effet Hall quantique entier dû à la formation des niveaux de Landau pour un gaz d'électron de Dirac possédant une dégénérescence de spin et de vallée. L'application d'un champ magnétique intense sur des échantillons de fortes

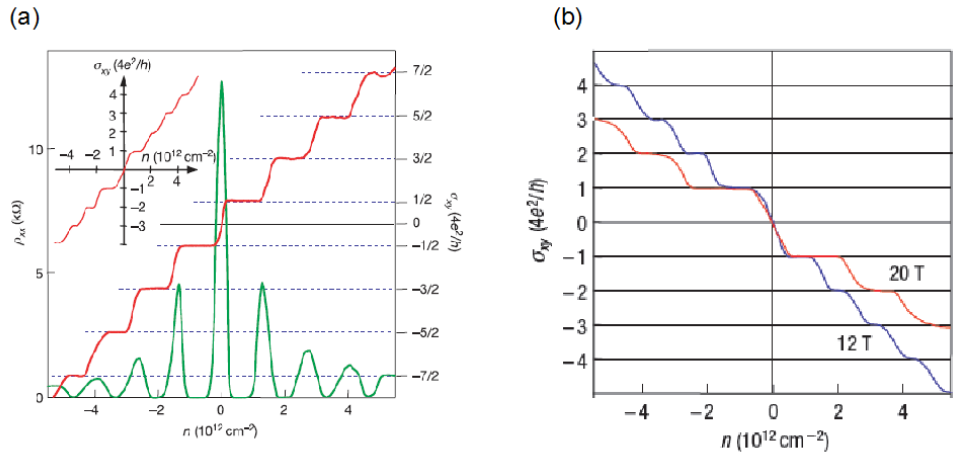

FIGURE 2.18 – (a) Conductivité de Hall σ_{xy} et résistivité longitudinale ρ_{xx} dans le graphène en fonction de la concentration de porteur à $B = 14T$ et $T = 4K$. (b) Conductivité de Hall σ_{xy} pour le graphène bi-couche en fonction de la densité de porteurs pour $B = 12T$, $20T$ et $T = 4K$. Adapté de [Novoselov 2005a] et [Novoselov 2006].

mobilités peut mener à des situations où les dégénérescences de spin et de vallée vont être levées. Cette levée de dégénérescence peut être causée par les interactions électron-phonon [Fuchs 2007], les interactions électron-électron [Abanin 2007a] ou encore l'effet Zeeman [Zhang 2006]. Les niveaux de Landau existant vont alors se scinder en plusieurs niveaux indépendants menant à l'apparition de nouveaux plateaux dans la résistance de Hall. L'énergie séparant ces nouveaux niveaux étant plus faible que celle séparant deux niveaux de Landau consécutifs, les plateaux qui en résultent sont plus difficiles à observer expérimentalement. Sur la figure 2.19, en plus des plateaux de résistivité quantifiés à 2,6 et 10 e^2/h, on peut voir apparaitre à partir de $B > 25T$ des plateaux de résistivité à 0, ± 1 et ± 4 e^2/h [Zhang 2006]. La présence de plateau à $\nu = 0, \nu \pm 1$ indique que la dégénérescence de vallée et de spin ont été levées au sein du niveau $n = 1$. Pour comprendre l'origine du plateau à $\nu = \pm 4$ la mesure a était reproduite pour plusieur orientation de l'échantillon par rapport au champ magnétique. Celles-ci ont montré que la valeur du gap énergétique induit par la levée de dégénérescence à $\nu = \pm 4$ dépend de la valeur du champ magnétique total et non pas de la valeur de champ magnétique perpendiculaire (B_{perp}). Ces résultats démontrent que la dégénérescence levée au sein du niveau de Landau n=0 est probablement la dégénérescence de spin.

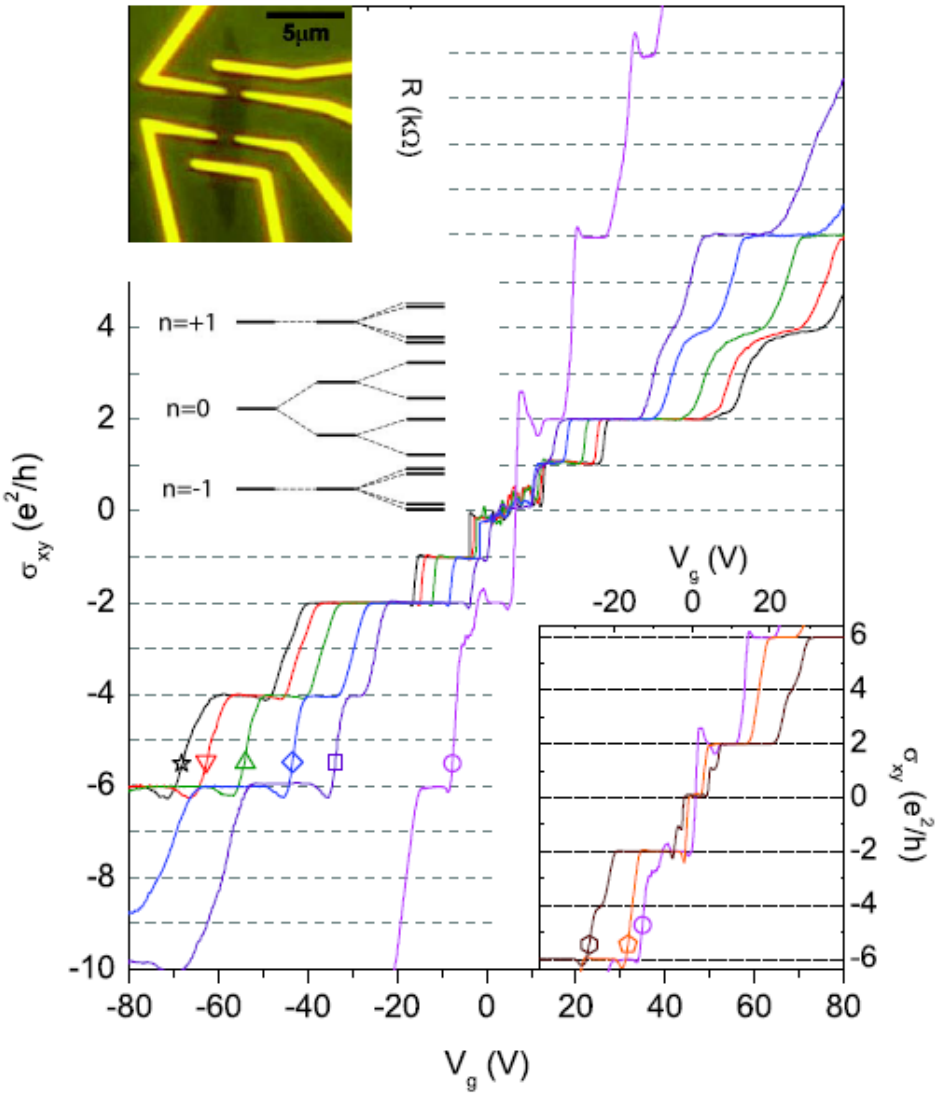

FIGURE 2.19 – Figure principale : Conductivité de Hall σ_{xy} en fonction de V_g à différents champs magnétiques : 9T (cercle), $25T$ (carré), $30T$ (diamant), $37T$ (triangle vers le haut), $42T$ (triangle vers le bas), $45T$ (étoiles). Toutes les mesures sont faites à $T = 1.4K$. Insert bas droite : Zoom près du point de neutralité de charge pour $B = 9T$ (cercle), $11.5T$ (pentagone), et $17.5T$ (hexagone) à $T = 30mK$. Insert haut gauche : Image de l'échantillon vue au microscope optique. Extrait de [Zhang 2006]

Chapitre 3

Cadre experimental

Sommaire

3.1 Caractéristiques des échantillons 59
3.1.1 Préparation des échantillons 59
3.1.2 Caractérisation des échantillons 64
3.2 Techniques de mesure : Mesures de transport électronique sous champs magnétiques intenses 66
3.2.1 Production de champs magnétiques pulsés 66
3.2.2 Mesure de transport électronique 66

Ce chapitre a pour objet la présentation des procédés de fabrication de transistors à base de graphène, ainsi que des différentes techniques de mesures employées. De nombreuses difficultés technologiques et techniques se posent pour l'étude du graphène en champ magnétique intense. Il y a une difficulté intrinsèque à contacter électriquement un échantillon de taille relativement réduite (quelques dizaines de micron carré pour 1nm environ d'épaisseur), déposé sur un substrat de taille macrométrique. Les nano-objets, de par leur nature nanométrique, sont très sensibles aux décharges électrostatiques. Une fois le graphène contacté il faut donc parvenir à le préserver le temps nécessaire à la réalisation des mesures. Un dispositif particulier permettant de s'affranchir des éventuelles décharges électrostatiques doit donc accompagner l'échantillon à chaque étape : de la fabrication à la mesure.

3.1 Caractéristiques des échantillons

3.1.1 Préparation des échantillons

Les techniques de préparation des échantillons qui seront présentées ci dessous sont en grande partie inspirées des méthodes de fabrication de transistor à base de nanotube développées en [Nanot 2009, Lassagne 2006]. L'intégralité de ces étapes s'effectuent en salle blanche au Laboratoire d'Analyse et d'Architecture des Systèmes (LAAS) avec l'aide du personnel technique.

3.1.1.1 Préparation du Substrat

Les substrats utilisés sont des plaquettes de silicium fortement dopés (dégénérés) en électrons (Si n++, $n \approx 10^{21} cm^{-3}$) de 4 pouces de diamètre. Ils présentent une résistivité de l'ordre du $m\Omega/cm$ et restent conducteurs à très basse température,

on peut ainsi les utiliser comme électrode de grille. Leur surface supérieure est recouverte d'une couche d'oxyde de silicium SiO_2 de 300 nm d'épaisseur, créé par oxidation thermique du Silicium.

Une étape de lithographie optique (UV) va permettre la définition de repères alpha-numériques à la surface du substrat. Des marques espacées de 200 μm et regroupées en matrice de 26×26 permettent la localisation précise de nano-objets à la surface du substrat, condition indispensable à leur connexion ultérieure. Les repères couvrent l'intégralité du substrat et sont réalisés comme suit : après enduction d'une résine polymère sur une plaque tournante (spin-coating), celle-ci est recuite puis insolée par de la lumiere UV au travers d'un masque sur lesquels ont été définis les motifs. La résine utilisée (AZ5214) est une résine réversible, une deuxième insolation globale est donc nécessaire, cette deuxième irradiation induit la destruction des liaisons de la résine sur les zones non insolées la première fois. La résine est alors révélée par imersion dans une solution AZ développeur pour une durée de 40s. Seule les parties non insolées vont alors se dissoudre et être retirées. On effectue alors, par évaporation sous vide, un dépôt d'Au (40nm) précédé d'une couche d'accroche de Cr (10nm) qui recouvre l'intégralité du substrat (c'est a dire à la fois les parties du substrat où la resine a été révélée et les parties où celle-ci est encore présente). Le reste de la résine est alors dissoute dans du trichloréthylène puis de l'acétone permettant de ne conserver que le métal en contact direct avec l'oxide de silicium. Une fois les repères définis, les substrats sont découpés en groupe de 4 matrices de $4 \times 4mm^2$ qui, une fois nettoyés par plasma oxygène, serviront à la déposition du graphène.

3.1.1.2 Déposition et repérage du graphène

La méthode utilisée pour déposer des feuillets de graphène sur un substrat est l'exfoliation mécanique. Elle consiste en principe à cliver les différentes couches de graphène constituant un morceau de graphite. En pratique un morceau de graphite de faible taille est exfolié par l'application successive d'un ruban adhésif. Ce morceau de ruban adhésif ainsi chargé sur toute sa surface de matériau graphitique est mis en contact avec un substrat. Ainsi la surface de l'oxyde se trouve couverte de feuillets de matériaux à base de graphène, dont la taille peut varier de quelques micromètres à quelques millimètres carré. Leur épaisseur peut aller de un à plusieurs centaines de nanomètres en fonction du nombre de couches de graphène le constituant. Les feuillets de graphène sont liés au substrat par des interactions de type Van der Walls qui sont suffisamment fortes pour permettre les étapes de connexion qui vont suivre. L'étape suivante consiste à localiser les feuillets jugés utiles pour notre étude, c'est-à-dire ceux constitués de une, deux ou trois couches de graphène. Cette étape s'effectue à l'aide d'un microscope optique. En effet, malgré l'épaisseur nanométrique d'un feuillet de graphène déposé sur l'oxyde de silicium, des phénomènes d'interférence dus à la superposition de couche d'épaisseur et d'indice optique différents (graphène/SiO2/Si), rendent possible l'observation du graphène au microscope optique [Blake 2007].

3.1.1.3 Contactage des échantillons

Une fois les feuillets de graphène déposés, et leurs positions repérées par rapport aux marques de repère alpha numérique, il convient de les contacter électriquement. Cette étape consiste à créer des électrodes reliant le graphène à des plots métalliques de taille suffisamment importante pour permettre une reprise de contact macroscopique. Pour cela deux types d'électrodes sont nécessaires :

– Les nano-électrodes :

Les échantillons sont en grande majorité gravé en forme de barre de Hall, une configuration permettant la mesure simultanée de la résistance longitudinale (parallèle au courant d'injection) et de la tension de Hall (transverse). Cette géométrie des échantillons impose un minimum de 5 contacts repartis de manière spécifique. Afin de satisfaire aux exigences d'encombrement liées à la convergence des électrodes de mesure vers une zone de taille très réduite (l'échantillon), les électrodes au voisinage et en contact avec ce dernier devront être les plus fines possible (de l'ordre de $0.5\mu m$).

– Les micro-électrodes :

Au delà d'une zone de $250 \times 250\mu m^2$ centrée autour de l'échantillon, la largeur des électrodes augmente, pour atteindre plusieurs dizaines de micron et se terminent par un "plot de contact", soit un carré de $250 \times 250\mu m^2$, à partir duquel une reprise de contact macroscopique sera effectuée. Un fil d'or de 20 à $50\mu m$ de diamètre sera soudé à ce plot de contact à l'aide d'une micro soudeuse à ultra son (voir figure 3.1).

Une fois le dessin des électrodes effectué, une étape de lithographie électronique suivi d'une étape de métallisation vont servir à définir les contacts à la surface du substrat. Le principe de lithographie électronique est similaire à celui de la lithographie optique, la lumière UV étant remplacée par un faisceau d'électron. La longueur d'onde électronique étant bien inférieure à celle de la lumière UV des motifs de taille inférieure peuvent être réalisés. La résine électro-sensible utilisée est la PMMA (poly-methylmethacrylate, positive). Elle est insolée à l'aide d'un masqueur RAITH 150. Deux champs de travail distincts sont nécessaires à la réalisation des deux types d'électrodes décrites ci-dessus :

- une zone de travail dite de "nano contact" de $250 \times 250um^2$. Dans cette zone, nous utilisons une tension d'accélération des électrons de 20kV et un courant de 140pA comme paramètre pour effectuer la lithographie.
- une zone dite de "micro contact" $800 \times 800um^2$, avec une tension d'accélération de $20kV$ et un courant de $3600pA$.

La résolution finale des électrodes est fortement liée au choix des paramètres de tension et d'intensité des électrons incidents. Ils ont été choisis pour que la valeur nominale de la largeur des contacts soit respectée à environ 5%. Une contrainte supplémentaire s'ajoute, liée à l'utilisation de forts courants dans la zone de micro-contact. Pour assurer la continuité des électrodes, celles-ci ne sont pas composées d'un seul bloc, mais de plusieurs segments rectilignes superposés de 2 à 3 μm.

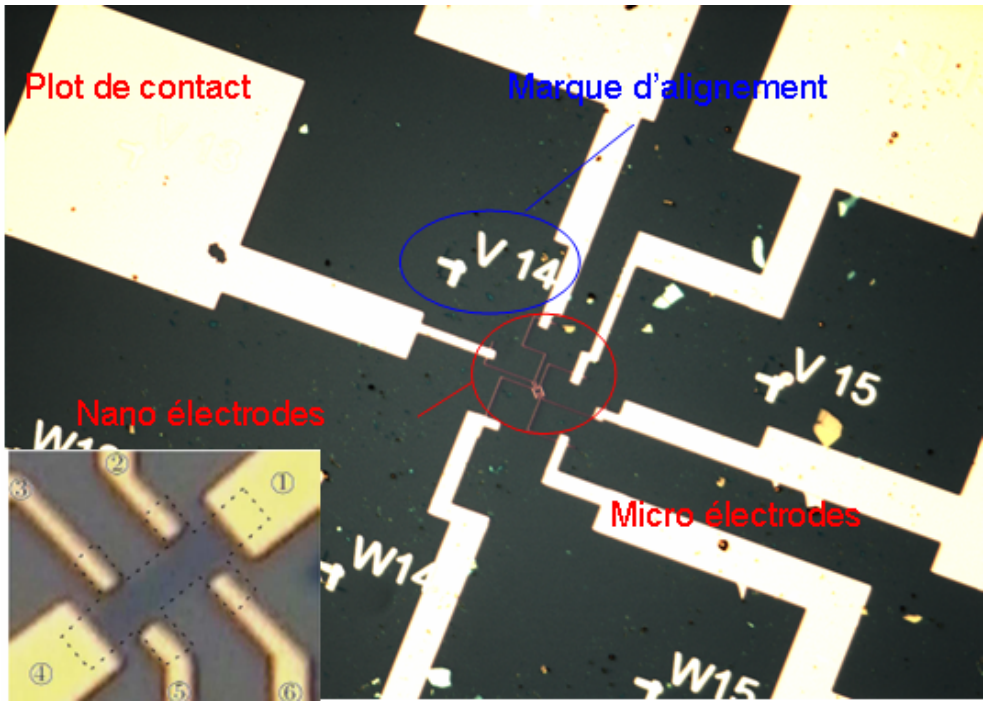

FIGURE 3.1 – Image optique d'un échantillon connecté. On voit clairement la présence des marques de repérage α-numériques, ainsi que celle des micro et nano électrodes. Insert : zoom sur échantillon découpé en barre de Hall

Il faut ensuite pouvoir donner les coordonnées exactes des zones à insoler au masqueur. Cette étape d'alignement est une étape primordiale et particulièrement sensible. Après une localisation manuelle grossière des parties à insoler à l'aide des bords du substrat, le masqueur vient détecter de manière automatique 3 des marques de repérage alpha-numérique les plus proches de l'échantillon. On peut ainsi régler la rotation et la dilatation selon les deux axes du plan. Le faisceau électronique va balayer toute la surface définies par la zone de travail, un " blanker " masque alors les zones à ne pas insoler définie selon les motifs dessinés. La résine étant positive, la rupture des liaisons chimiques se produit donc dans la zone insolée. La résine est ensuite révélée dans un solvant le MIBK : IPA 1/3 (soit 1 volume de métil-isobutyl-kétone pour 3 volume d'isopropanol). Les électrodes peuvent alors être créées par métallisation ; pour pouvoir garantir le succès de l'étape de lift-off, l'épaisseur de métal qui peut être déposée ne doit pas dépasser 1/3 de l'épaisseur de résine. Cette épaisseur de résine déposée est contrôlée par la vitesse et l'accélération du plateau tournant lors du spin coating ; pour obtenir les électrodes d'environ 50nm de haut qui nous intéressent nous utilisons des paramètres $(a = 5000t/s^{-2}\ et\ v = 3000t/s)$. Une couche de $10nm$ de titane suivit d'une couche de $40nm$ d'or sont déposés, le titane est utilisé pour ses propriétés d'accroche au SiO_2, l'or pour ses très bonnes propriétés conductrices et son caractère inoxydable.

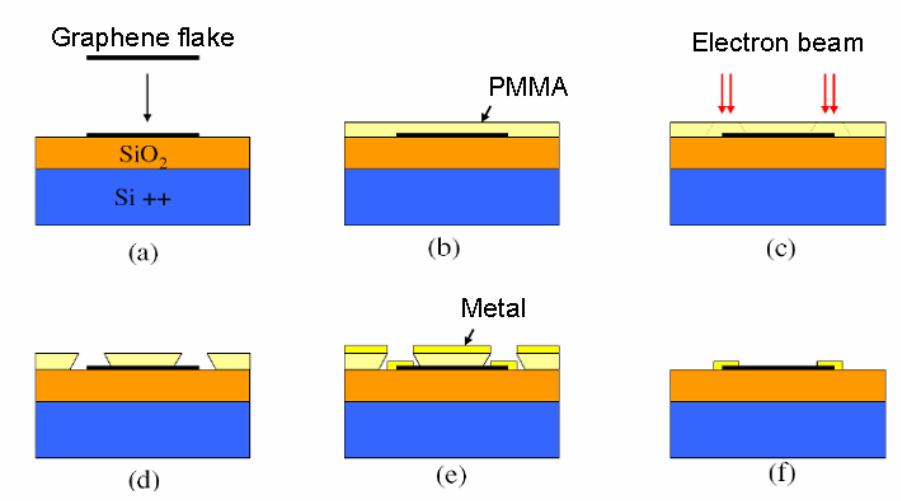

FIGURE 3.2 – Principe du lift-off (a) Dépôt des feuillets de graphène (b) Enduction de la résine positive (c) Insolation (d) Révélation (e) Dépôt d'une couche de métal par évaporation (f) Retrait de la résine lift-off (tiré de [Cleuziou 2007]).

3.1.1.4 Gravure

La dernière étape de la fabrication des échantillons est l'étape de gravure. Elle a pour but de modifier la forme du feuillet de graphène. Pour cela une étape supplémentaire de lithographie électronique est nécessaire, durant laquelle des zones du feuillet de graphène seront définies. Le substrat est exposé à un plasma de puissance très faible ($P = 300W$) durant 25 secondes, les parties du feuillet de graphène exposées sont ainsi détruites, alors que les parties du feuillet recouvertes par la résine sont protégées de la gravure.

3.1.1.5 Nanorubans

La fabrication de ruban de graphène est un problème technologique complexe. En effet pour que le confinement latéral ait des conséquences visibles sur les propriétés électroniques, des largeurs d'échantillon inférieures à la centaine de nanomètres doivent être atteintes. Cette gamme de largeur flirte avec les limites de résolution de la lithographie électronique, utilisant des résines de type PMMA. Des rubans allant jusqu'a $50nm$ de large peuvent tout de même être produits en utilisant une méthode semblable à celle décrite pour définir des barres de Hall. Un ruban de PMMA est défini, par lithographie électronique, sur un feuillet de graphène et sert de masque lors de la gravure au plasma oxygène. Pour des résines positives telle que la PMMA, pour définir un ruban qui servira de masque, il faut insoler tout le reste de la surface du feuillet de graphène. Cette façon de procéder à cause des effets de proximité est le principal limitant à la fabrication de nanoruban de taille inférieure à $50nm$. L'utilisation de résine négative telle que le HOPG permet de contourner ce problème et

d'atteindre des tailles de ruban de l'ordre de $10nm$. Lors de la gravure par plasma, le ruban est découpé selon un axe quelconque. Le ruban ainsi obtenu ne présentera donc pas une configuration unique des bords. De plus l'énergie des ions accélérés est telle que la dégradation des bords de l'échantillon est importante. Cette dégradation peut avoir des conséquences drastiques sur les propriétés de conduction des nanorubans de graphène.

D'autres méthodes de synthèse de nanorubans de graphène ont été développées pour tenter de réduire la dégradation des bords, liée à la technique de lithographie électronique. Une méthode d'exfoliation chimique a notamment été développée par le groupe de Honjie Dai à l'université de Standford [Li 2008]. Les nanorubans sont mis en solution avec un polymère spécifique, puis exfoliés par sonification. Les nanorubans ainsi produits montrent une rugosité des bords réduite et peuvent atteindre des largeurs de l'ordre $2nm$.

3.1.2 Caractérisation des échantillons

3.1.2.1 Testeur sous pointe

Après les divers processus de fabrication, tous les échantillons ne sont pas susceptibles de fonctionner correctement. En effet, certains feuillets peuvent avoir subis une rupture électrostatique et/ou présentent de mauvais contacts avec les électrodes (par exemple suite à un mauvais alignement lors de l'étape de lithographie électronique). Avant de connecter les échantillons sur la canne de mesure, la résistance électrique des échantillons est mesurée à l'aide d'un testeur sous pointe. Cette étape permet également d'avoir une première caractéristique de la résistance en fonction de la tension de grille à l'air libre et à température ambiante, afin de déterminer dans la mesure du possible la valeur du point de neutralité de charge. Pour cela, des pointes métalliques affûtées fixées à des micros manipulateurs sont mises en contact avec les plots de microsoudure. La face arrière de l'échantillon, servant de contact de grille, est connectée à un fil via un support spécifique. Les détails expérimentaux de la mesure de la résistance sont donnés au 3.2.2.1.

3.1.2.2 Connexions à la canne de mesure et recuit thermique

La connexion de l'échantillon sur la canne de mesure se fait en deux étapes. Tout d'abord les échantillons sont collés à la laque argent sur un porte substrat en alumine comportant 8 motifs d'or sérigraphiés. Une de ces électrodes permet une connexion directe à la partie arrière de l'échantillon et sert de contact de grille. Les plots de l'échantillon sont reliés aux motifs sérigraphiés par des fils d'or à l'aide d'une micro soudeuse à ultra son (Wedge bonding). Le porte échantillon est ensuite monté sur la canne de mesure, la reprise de contact entre le porte échantillon et les connecteurs de la canne de mesure est réalisée manuellement. Cette canne a pour but de placer l'échantillon au centre du champ magnétique.

Les décharges électrostatiques peuvent provoquer de forts courants, elles sont très dangereuses pour nos échantillons. Elles induisent des ruptures entre les atomes

de carbone constituant le plan de graphène. Il faut donc limiter toutes les décharges électrostatiques intempestives qui pourraient subvenir lors de la connexion d'un échantillon. Pour éviter toute différence de potentiel, l'échantillon et l'utilisateur sont connectés à une masse commune. L'utilisateur est relié à cette masse au travers d'une forte résistance de décharge de $1M\Omega$. L'échantillon, l'utilisateur, et les instruments 'non-agressifs' sont reliés à ce potentiel commun via un transformateur d'isolement. Durant les mesures sous champ magnétique pulsé, il est obligatoire d'utiliser une masse de mesure commune à l'ensemble des boxs (salles de mesures), découplée des hautes tensions utilisées pour la génération du champ. Cet environnement reste cependant très agressif en terme de décharges électrostatiques, en particulier lors du pilotage de l'automate contrôlant le générateur. Nous utilisons alors des interrupteurs et des filtres haute fréquence permettant de relier les échantillons à la masse en l'absence de mesure et de filtrer une partie importante des tensions induites par l'électronique de puissance (voir chapitre 3.2.2.1).

Les orbitales p_z des atomes de carbone qui sont libres à la surface d'un feuillet de graphène, constituent de véritables pièges pour certaines molécules présentes dans l'air. De plus lors de la fabrication des échantillons, divers résidus des produits utilisés peuvent rester à la surface de l'échantillon (résine...). Les échantillons de graphène sont donc dans la majorité des cas très dopés après les étapes de fabrication. Le point de neutralité de charge est alors inaccessible. Le taux de désordre ayant des effets très importants sur les propriétés des porteurs de charge dans le graphène [Checkelsky 2008, Chen 2009b], un système de recuit des échantillons a donc été développé pour pouvoir le contrôler. Une " chaussette " hermétique adaptable à la canne de mesure permet de maintenir l'échantillon sous un vide secondaire d'environ $1 \times 10^{-6} mbar$. Nous avons utilisé deux techniques de recuit différentes :

- Le recuit thermique : il consiste à augmenter la température de la chaussette extérieure à l'aide d'un pistolet à air chaud. La température de la chaussette va augmenter, et par rayonnement faire croître la température de l'échantillon, pouvant atteindre 450K. L'échantillon est soumis à ce traitement pendant plusieurs heures.
- Le recuit électrique : il consiste à augmenter la température de l'échantillon de manière locale en faisant circuler un courant entre les différents contacts [Moser 2007]. Un courant de quelque mA circule dans l'échantillon pendant plusieurs heures.

Les températures atteintes lors de ce type de recuit permettent de déssorber les molécules faiblement liées au graphène principalement dues à l'exposition du graphène à l'air ambiant, comme par exemple l'eau, les molécules de diazote, de dioxygene ou les résidus de résine. Ces recuits ne permettent pas de supprimer les défauts comme les lacunes, ou les déformation du réseau cristallin qui implique des énergies bien plus importantes. Une fois le recuit effectué, un gaz d'échange inerte (Hélium) est introduit dans la chaussette et servira de gaz d'échange thermique. On peut ainsi garder un échantillon plusieurs semaines au sein de la canne de mesure sans que celui-ci ne se pollue.

3.2 Techniques de mesure : Mesures de transport électronique sous champs magnétiques intenses

3.2.1 Production de champs magnétiques pulsés

Afin de générer des champs magnétiques pouvant aller jusqu'a $60T$, il est nécessaire de faire appel à un champ de type transitoire. Avant de présenter la technique utilisée dans le laboratoire, rappelons que le champ magnétique terrestre est d'environ $5 \times 10^5 T$ et que certaines étoiles (à neutrons) peuvent présenter des champs magnétiques allant jusqu'à $10^9 T$. Sur Terre, les outils disponibles pour produire du champ magnétique vont de l'aimant permanent de l'ordre du Tesla, aux champs destructifs utilisant la technique de compression de flux permettant d'atteindre quelques $1000T$. Les plus forts champs statiques sont produits à l'aide de bobines supraconductrices ($18T$), résistives ($35T$) ou hybrides (combinant les deux techniques), le record actuel étant de $45T$. Pour atteindre des champs plus intenses, il est nécessaire d'utiliser la décharge de condensateurs dans des bobines résistives renforcées mécaniquement. Cette technique permet d'atteindre jusqu'à 89T pour des pulses très courts (quelques ms) de manière non destructive. Le site toulousain du LNCMI dispose d'un banc de condensateurs de $14MJ$ (voir figure 3.3 (a)) pouvant être chargés jusqu'à $24kV$ directement à partir du secteur EDF. L'objectif est de maximiser la durée du champ et l'espace disponible pour les dispositifs de mesures. Les bobines utilisées pour ces mesures sont en Cuivre/Zylon, à densité de renforts optimisés (voir insert figure 3.3 (c)), refroidies dans un bain d'azote liquide. Elles présentent l'avantage de combiner une bonne conductivité électrique, une résistance mécanique importante et une forte chaleur spécifique. L'espace disponible pour insérer le cryostat Hélium et la canne de mesure est de $\phi = 27mm$. Le champ maximum peut atteindre $62T$ (5 bancs de condensateurs à la tension maximale) au centre de la bobine pour une durée totale du pulse de $450ms$ (voir figure 3.3 (c)). L'échauffement est ainsi minimisé mais il reste suffisamment important pour nécessiter une attente d'environ 30min (refroidissement optimisé) à 55min avant de faire un nouveau tir. Par ailleurs, afin d'augmenter leur durée de vie, les bobines sont généralement utilisées en routine à des champs de 56 à 58T. Le principe complet du montage (avec tryristors pour le déclenchement du champ, et résistances crowbar pour empêcher l'inversion du champ) est représenté sur le schéma 3.3 (b)

3.2.2 Mesure de transport électronique

3.2.2.1 Caractérisation à champ magnétique nul

Deux types de caractérisation à champ nul sont effectués de manière systématique :

-La mesure de la résistance en fonction de la tension de grille $R(V_g)$:
Un générateur multifonction Stanford Research DS360 permet d'appliquer une tension alternative V_{AC} de quelques mV et de fréquence de l'ordre de 20-40Hz. Une résistance de forte valeur est placée en série à la sortie du générateur, de sorte que

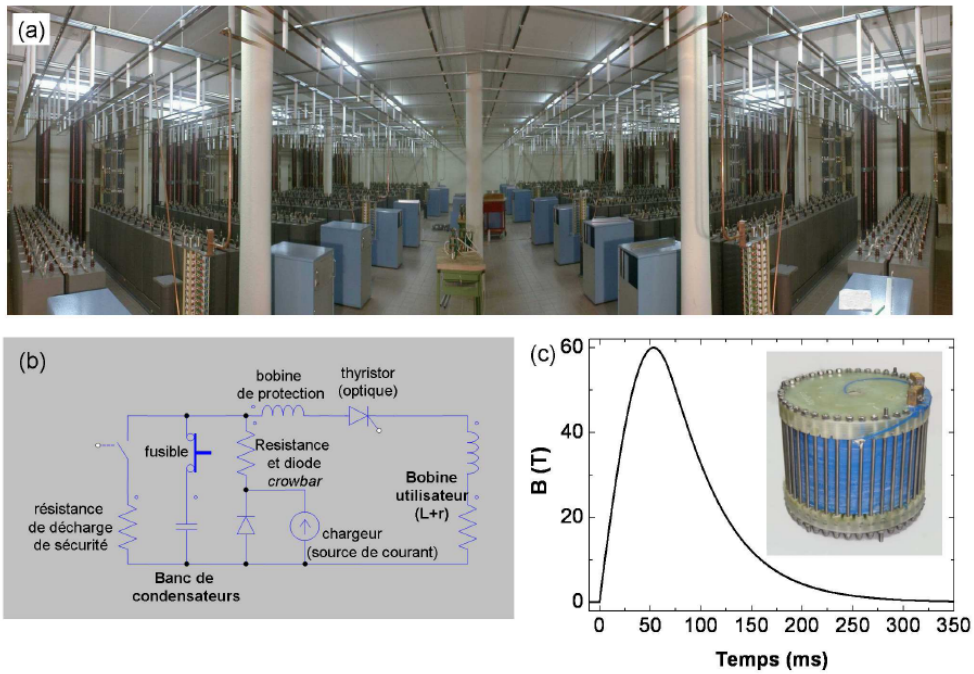

FIGURE 3.3 – (a) Vue panoramique du générateur 14 MJ du LNCMI. (b) Schéma de principe du générateur du LNCMI. (c) Profil d'une impulsion 60 T. Insert : Bobine 3 MJ à refroidissement rapide..

$R_{serie} >> R_{echantillon}$. Tant que cette condition est respectée, le courant circulant dans l'échantillon est ainsi constant quelque soit la valeur que prend $R_{echantillon}$. On utilise une détection synchrone SR830 pour démoduler la différence de potentiel induite aux bornes de l'échantillon. La résistance différentielle est ainsi mesurée pour une intensité de courant donnée. Une tension de grille V_G est ensuite appliquée entre la grille et l'échantillon avec un générateur Yokogawa 7651 bas bruit. Pour éviter d'appliquer V_G et V_b brusquement et induire des courants dynamiques importants susceptibles de détériorer l'échantillon, leur application est contrôlée par un potentiomètre voir figure 3.4. Cette mesure peut être effectuée de la même manière mais en courant continu DC, la tension générée par le générateur multifonction Stanford Research DS360 est alors continue et un préamplificateur de tension SR560 est utilisé pour amplifier et mesurer la tension induite aux bornes de l'échantillon.

-La caractéristique courant/tension $I(V_b)$:
Une tension alternative d'une fréquence de quelques mHz, avec une amplitude allant de quelques μV à quelques mV selon la conductivité de l'échantillon, est appliquée à l'aide d'un générateur de fonction. Le courant traversant l'échantillon est mesuré puis amplifié par un préamplificateur bas bruit Stanford Research SR570.

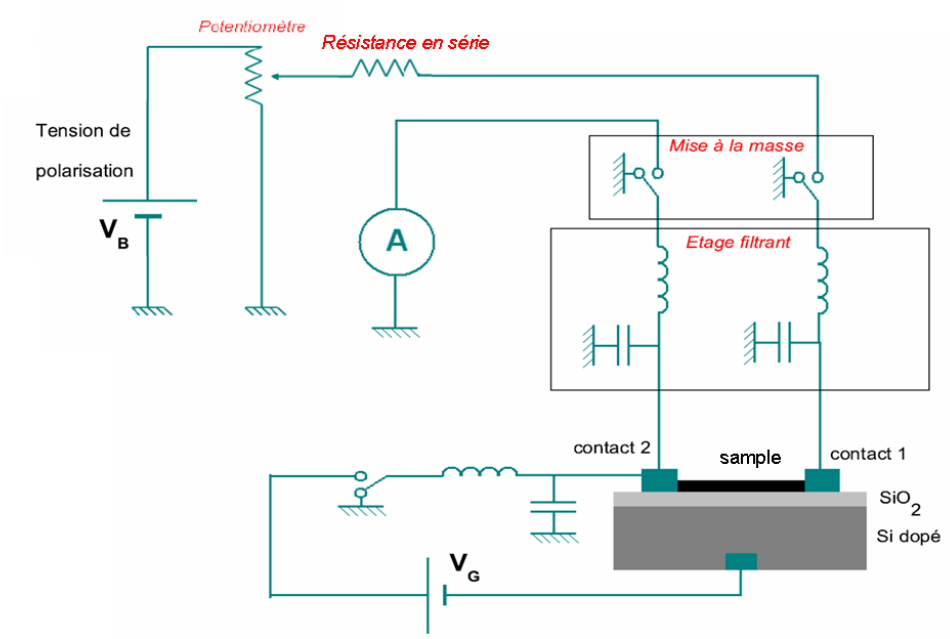

FIGURE 3.4 – Dispositif de mesure de résistance et élément de protection contre les chocs électrostatiques.

3.2.2.2 Mesures sous champ magnétique pulsé

La canne de mesure, dans laquelle est connecté l'échantillon, est introduite dans un cryostat hélium, lui-même inséré dans un cryostat azote. Les plots de mesure de la canne sont reliés à des fils torsadés par paire remontant le long de la canne vers un connecteur Jaeger. Cette précaution permet de limiter l'intensité des courants induits par la variation du champ magnétique au cours du temps. Les cannes de mesure possèdent un plateau tournant permettant d'effectuer des mesures en modifiant l'angle entre le champ magnétique et l'échantillon. Deux configurations de mesure sont possibles : la mesure continue DC et la mesure à haute fréquence modulée.

Pour les mesures de résistances différentielles, la même méthode que celle exposée en 3.2.2.1 est utilisée. Cependant la fréquence d'excitation utilisée doit être telle que $f_{excitation} >> f_{champ\ \ magnetique}$, afin de supprimer les courants induits par le champ magnétique. L'utilisation de fréquences plus élevées limite l'utilisation de la mesure AC aux échantillons dont la résistance est relativement faible (pas plus de quelques dizaines de $k\Omega$) pour pouvoir s'affranchir des effets capacitifs et inductifs.

Lorsque les mesures de magnéto-résistance sont effectuées à fréquence nulle, la même méthode que celle présentée dans la partie 3.2.2.1 est utilisée. Il est par contre nécessaire d'ajuster le gain du préamplificateur afin que sa dynamique soit compatible avec celle du champ magnétique. En configuration de mesure DC, les courants qui sont induits par la dérivé du champ magnétique en fonction du temps viennent s'ajouter à la mesure de la magnéto-résistance de l'échantillon. Il est donc

nécessaire de les supprimer à posteriori ; pour cela, nous effectuons un traitement numérique qui consiste à soustraire un signal acquis par une bobine pick-up.

La résistance de l'échantillon mesurée peut fortement varier en champ magnétique. Il arrive parfois que la résistance de l'échantillon devienne comparable à l'impédance d'entrée du préamplificateur de tension. Une partie du courant injecté dans l'échantillon va alors passer au travers du préamplificateur et la mesure en sera faussée. Dans ce cas de figure nous utilisons un amplificateur haute impédance, d'impédance d'entré $1G\Omega$. Lorsque la résistance de l'échantillon augmente fortement le courant injecté dans le système n'est plus contrôlé. En effet si la condition $R_{serie} >> R_{echantillon}$ n'est plus respectée, le courant injecté va changer à mesure que $R_{echantillon}$ va changer. Pour éviter ce cas de figure nous utilisons un générateur de courant possédant une haute impédance de sortie.

Chapitre 4

Magnéto-transport dans le graphène désordonné

Sommaire

4.1 Coexistence électron-trou dans le graphène désordonné . . 71
4.1.1 Caractérisation à champ nul 72
4.1.2 Régime classique et modèle à 2 porteurs 72
4.1.3 Régime quantique et fluctuation de la magnéto-résistance . . 75
4.1.4 Conclusions et perspectives 79
4.2 Impact du désordre sur le plateau $\nu = 2$ dans le régime d'effet Hall quantique 80
4.2.1 Caractérisation à champ nul 80
4.2.2 Coexistence électron-trou induite par le champ magnétique intense 82
4.2.3 Conclusion 88
4.3 Conclusion et perspectives 88

4.1 Coexistence électron-trou dans le graphène désordonné

Comme cela a été mentionné dans la partie 2.3.1.3, il y a quelques années une nouvelle forme d'effet Hall quantique entier a été découverte dans le graphène[Novoselov 2005a]. La conductance de Hall est quantifiée à des valeurs de conductance telle que $G_{xy} = \nu e^2/h$ pour des facteurs de remplissage $\nu = 4(n+1/2)$, avec $n = \pm 1, \pm 2$.... La dégénérescence de 4 étant due à une dégénérescence de vallée venant s'ajouter à la dégénérescence de spin. Dans certains échantillons de graphène de forte mobilité dits "propres", l'application d'un champ magnétique intense permet de lever ces dégénérescences. Des plateaux de Hall additionnels ont été expérimentalement observés pour des valeurs de facteur de remplissage $\nu = 0, \pm 1, \pm 4$ [Zhang 2006, Jiang 2007]. Le rôle des interactions éléctron-électron semble être prédominant dans l'apparition de ces nouveaux états [Adam 2007]. Le désordre affecte de manière significative les propriétés de transport du graphène, en particulier à faible densité de porteurs, où les impuretés chargées font rentrer le graphène dans une phase mixte où électrons et trous sont présents simultanément dans le système, et forment des îlots spatialement séparés [Martin 2008].

Dans ce chapitre nous étudierons les effets du désordre sur la magnéto-résistance du graphène. Nous montrerons qu'à faible champ magnétique, la magnéto-résistance observée est en accord avec les théories existantes et permet d'identifier la présence d'un phénomène de diffusion sur des impuretés de type lacunes. Près du point de neutralité de charge, la magnéto-résistance longitudinale est quasiment nulle, sans signe de divergence, comme cela a été observé pour des échantillons de forte mobilité [Jung 2009, Checkelsky 2009]. A fort champ magnétique (au delà de 10T), nous montrerons que la magnéto-résistance longitudinale et de Hall fluctuent fortement. Ces fluctuations sont interprétées comme la conséquence directe de la présence d'îlots électrons-trous. Une analyse approfondie de la variation d'amplitude de ces fluctuations a permis de déterminer la taille approximative des îlots dans l'échantillon.

4.1.1 Caractérisation à champ nul

L'échantillon a été conçu suivant les étapes de fabrication exposées dans le chapitre 3. Gravé en barre de Hall, il permet la mesure simultanée de la résistance de Hall (R_{xy}) et de la résistance longitudinale (R_{xx}). La figure 4.1 montre R_{xx} en fonction de la tension de grille V_g mesurée entre +70V et -70V. Le point de neutralité de charge se situe à $V_{CNP} = 52V$, cette valeur du point de neutralité de charge et la grande largeur à mi-hauteur de $R_{xx}(V_g)$ indique un dopage résiduel lié à un désordre important. Cet échantillon est fortement dopé en trous, ce dopage peut être dû à la présence d'impuretés chargées à la surface de l'échantillon et/ou à l'intérieur de l'oxyde de grille. L'efficacité de grille est estimée à partir des mesures d'effet Hall classique à bas champ, $C_g = 7.8 \times 10^{10} cm^{-2} V^{-1}$. En utilisant le modèle d'une capacité plane $C_g = (\varepsilon_0 \varepsilon_r)/(ed)$ où $\varepsilon_0 \varepsilon_r$ est la permittivité diélectrique du SiO_2 et d l'épaisseur de l'oxyde, on trouve une épaisseur $d = 275nm$ en bon accord avec la valeur nominale $d = 300nm$. L'insert de la figure 4.1 montre les courbes de résistance de Hall et de magnéto-résistance longitudinale à $V_g = 0V$. Un courant constant de $i = 0.5\mu A$ est injecté dans l'échantillon, à une température de $T = 1.5K$. On voit sur ces courbes le profil typique de l'effet Hall quantique entier, la résistance de Hall présente des plateaux bien définis aux valeurs $R_{xy} = h/2e^2$, $h/6e^2$, et $h/10e^2$ attendues pour le graphène. Utilisant le modèle de Drude $\sigma = ne\mu$, la mobilité de l'échantillon est estimée à $\mu = 1300 cm^2/V.s$, valeur en accord avec l'apparition des premières oscillations de Shubnikov-de Hass à $B \sim 7T$.

4.1.2 Régime classique et modèle à 2 porteurs

Pour les champs magnétiques inférieurs à $7T$ ($B \leq 7T$), le système est donc dans un régime de transport classique. Proche du point de neutralité de charge, des électrons et des trous sont présents dans le système. Les données expérimentales, dans la gamme de tension de grille où la coexistence électrons-trous se produit, peuvent donc êtres modélisées en considérant un transport par deux fluides chargés de signes opposés [Rossi 2009, Hwang 2007b]. Nous considèrerons que les électrons

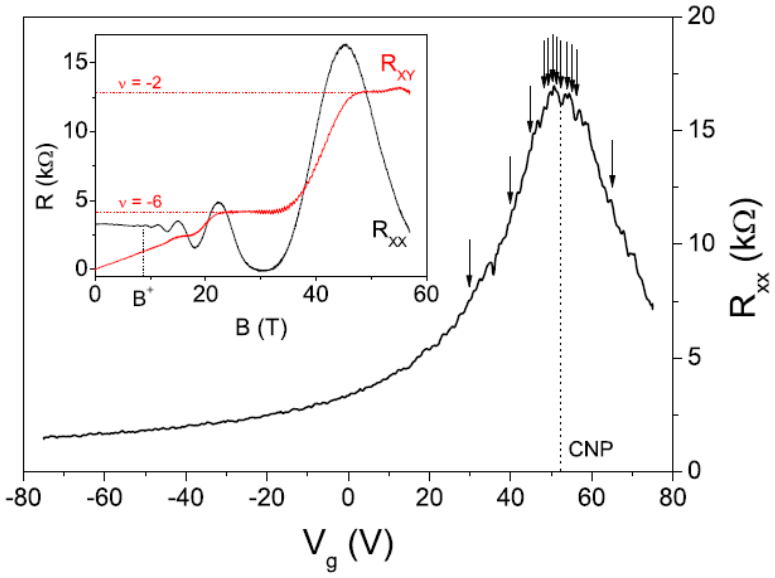

FIGURE 4.1 – Résistance longitudinale mesurée a 4 pointes en fonction de V_g à $T = 1.5K$. Les flèches indiquent les valeurs de grille spécifiques pour lesquelles une mesure de magnéto-résistance a été effectuée (voir figure 4.3). Insert : Résistance de Hall R_{xy} et résistance longitudinale R_{xx}en fonction du champ magnétique à $V_g = 0V$. On voit clairement la présence de plateaux de résistance quantifiés à $h/2e^2$ et $h/6e^2$, valeurs de quantifications caractéristiques de l'effet Hall dans le graphène.

et les trous ont une mobilité identique μ. Leur densité respective sera notée n_e et n_h. Si on définit le paramètre $\alpha = (n_h - n_e)/(n_h + n_e)$ on peut écrire :

$$R_{xx}(B) = R_{xx}(0)\frac{1+(\mu B)^2}{1+(\alpha\mu B)^2} \quad \text{et} \quad R_{xy}(B) = \frac{1}{\gamma}\alpha\mu B R_{xx}(B) \tag{4.1}$$

où $\gamma = L/W$ est le facteur de forme de l'échantillon. Dans notre cas $\gamma = 3$. Les figures 4.2 (a) et (b) montrent l'accord entre les données expérimentales et l'ajustement théorique obtenu avec α et μ comme paramètres libres. Les valeurs de $R_{xx}(0)$ sont déterminées à partir de la courbe $R(V_g)$ montrée en figure 4.1. Bien que certains raffinements du modèle, comme la prise en compte d'îlots spatialement ségrégués pourraient améliorer la qualité de l'ajustement [Tiwari 2009], nous remarquons que le modèle à deux porteurs présente un bon accord avec les données expérimentales. Les valeurs de $\alpha(V_g)$ et de $\mu(V_G)$ extraites de la procédure d'ajustement sont présentées sur la figure 4.2 (c) et (d). Le paramètre α passe continûment de 1 à -1 quand la conduction est exclusivement portée par des trous ou par des électrons respectivement. Cette zone de transition où les deux types de porteurs coexistent s'étend sur $\Delta V_g \approx 20V$. En présence de désordre de type longue portée, la théorie

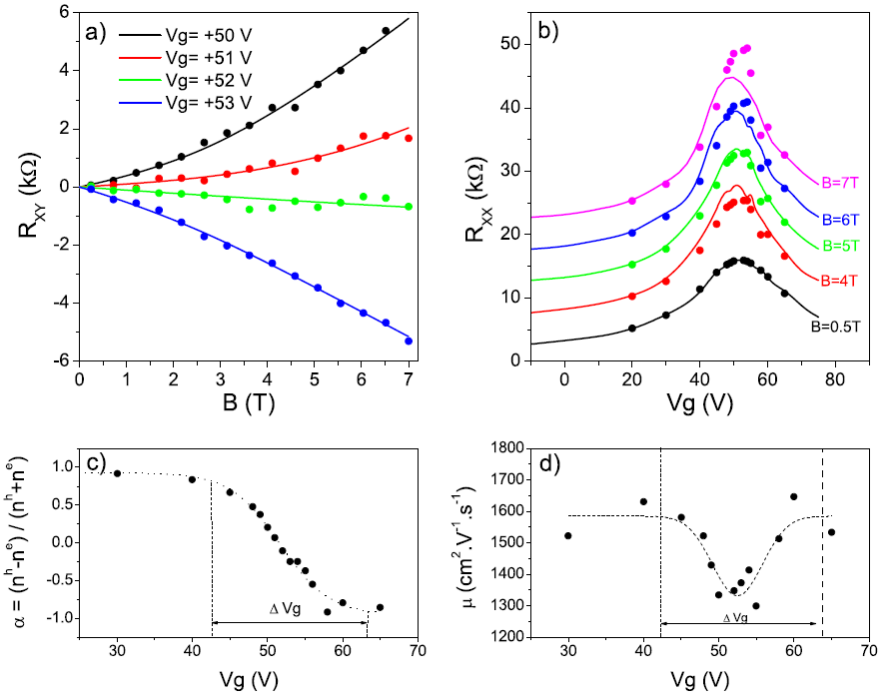

FIGURE 4.2 – Ajustement théorique utilisant le modèle à deux porteurs (a) de $R_{xy}(B)$ pour plusieurs valeurs de tension de grille et (b) $R_{xx}(V_g)$ à différents champs magnétiques. Les courbes de $R_{xx}(V_g)$ ont été successivement décalées de $5K\Omega$ pour plus de visibilité. On remarque que pour $B \geq 7T$ le modèle à deux porteurs n'est plus adapté et perd donc en précision. (c) et (d) coefficients $\alpha(V_g)$ et $\mu(V_g)$ extrait de la procédure d'ajustage présentée en (a) et (b). On remarque qu'au voisinage du point de neutralité de charge la résistance de Hall n'est plus quantifiée, du fait de la présence de deux types de porteurs.

prévoit une zone de coexistence [Hwang 2007a]

$$\Delta V_g^{th} = \frac{2n_0}{C_g} \quad \text{avec} \quad n_0 = \frac{(5 \times 10^{15}/\mu)^2}{4C_g V_{CNP}} \tag{4.2}$$

où n_0 est la densité de porteurs induite par les impuretés au point de neutralité de charge, et C_g l'efficacité de grille. Nous calculons $\Delta V_g^{th} = 23V$ en bon accord avec les données expérimentales de l'effet Hall. Les variations de la valeur de mobilité sont mal connues près du point de neutralité de charge. En effet, en utilisant le modèle de Drude, la mobilité $\mu = \sigma/en$ divergerait quand $n \to 0$, ce qui n'a aucune réalité physique. La mobilité extraite utilisant le modèle à deux fluides (voir figure 4.2 (d)) montre une décroissance claire quand $V_g \to V_{CNP}$. La dépendance de la mobilité avec la densité de porteurs en présence de différents types de désordre (de longue et courte portée) a été étudiée théoriquement. Do et Dolfus [Do 2009] ont montré qu'en présence d'un faible nombre d'impuretés de type lacune, c'est-à-dire

lorsque qu'un atome de carbone du réseau a été supprimé, la mobilité présentait une décroissance aux abords du point de neutralité de charge similaire à celle que nous observons expérimentalement.

La variation des quantités α et μ, en fonction de la tension de grille, confirme donc la présence dans notre échantillon d'impuretés chargées ainsi que d'impuretés de type lacune.

4.1.3 Régime quantique et fluctuation de la magnéto-résistance

Nous tournons maintenant notre attention sur les propriétés de transport de cet échantillon dans le régime quantique (fort champ magnétique). La figure 4.3 (a) et (b) montre la résistance longitudinale et la résistance de Hall pour plusieurs valeurs de tension de grille au voisinage du point de neutralité de charge. Toutes les courbes de magnéto-résistances longitudinales pour lesquelles $40V < V_g < 65V$ (c'est-à-dire $V_{CNP} \pm \Delta V/2$) montrent de manière générale le même comportement : (i) Tout d'abord une magnéto-résistance positive de 0 à $\sim 10T$ où la résistance présente un maximum. Ce maximum est attribué au passage des niveaux de Landau au travers du niveau de Fermi. En effet, l'énergie du niveau de Fermi étant très faible, les niveaux de Landau le traversent à faible champ magnétique, alors que leur recouvrement mutuel est encore très important. Cette situation donne lieu à la formation d'un seul maximum de résistance. (ii) La magnéto-résistance décroît alors avec le champ magnétique du fait de l'augmentation de la différence d'énergie entre les niveaux $n = 1$ et $n = 0$. (iii) Pour $B \geq 20T$, la magnéto-résistance est quasi constante (légèrement positive selon les valeurs de tension de grille) et "forme un quasi plateau" de résistance jusqu'à un champ magnétique de $60T$. Si on considère en première approximation que le niveau de Fermi est contant avec le champ magnétique ; une fois que le niveau de Landau $n = 1$ est passé au travers du niveau de Fermi, la valeur de la magnéto-résistance dépend du taux de rétro diffusion entre canaux de bords opposés. Ce taux est contrôlé par la densité d'états des états étendus à l'énergie de Fermi et donc par la position du niveau de Fermi dans le niveau $n = 0$. Quand le niveau de Fermi se situe entre les niveaux $n = 1$ et $n = 0$ comme cela est le cas pour les courbes de magnéto-résistance obtenues à $V_g = 30V$, la rétro diffusion est nulle et la résistance longitudinale s'annule. Dans le cas où $V_g \approx V_{CNP}$, lors de la quantification en niveaux de Landau, l'énergie de Fermi se situe quasiment au centre du niveau de Landau $n = 0$. La rétro diffusion est donc maximale, la résistance est alors plus importante. Pour les positions intermédiaires du niveau de Fermi, la valeur de résistance du quasi-plateau va donc varier entre ces deux valeurs extrêmes (voir insert figure 4.3(a)). Cependant l'énergie du niveau de Fermi n'est pas constante avec le champ magnétique, mais varie en raison de l'augmentation de la dégénérescence orbitale des niveaux de Landau avec le champ magnétique. L'augmentation de la dégénérescence du niveau $n = 0$ entraîne donc une diminution de l'énergie du niveau de Fermi. L'énergie de celui-ci va tendre vers 0 quand $B \to \infty$. Une augmentation de la rétro diffusion va donc se produire et explique la légère croissance du "quasi plateau" de la magnéto-résistance longitudinale (voir courbes

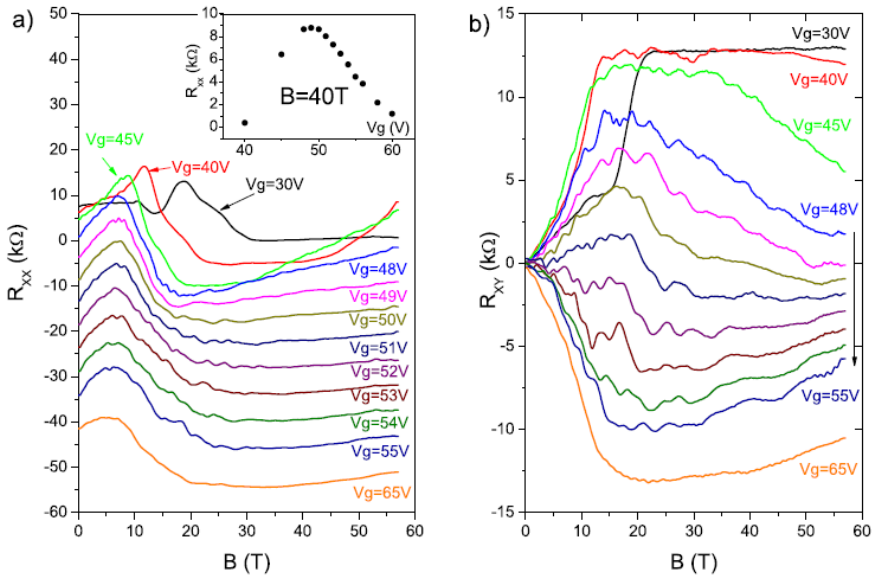

FIGURE 4.3 – Magnéto-résistance longitudinale (a) et résistance de Hall (b) en fonction du champ magnétique pour plusieurs valeurs de tension de grille (voir flèche figure 4.1). En (a) les courbes ont été artificiellement décalées de $-5k\Omega$ pour des raisons de visibilité. Insert montre $R_{xx}(V_g, B = 40T)$. On remarque, qu'au voisinage du point de neutralité de charge, la résistance de Hall ne présente plus son caractère quantifié, en raison de la présence simultané de trous et d'électrons dans le système.

à $V_g = 40V$ et $45V$). Cette croissance est d'autant plus importante que la densité d'états initiale à l'énergie de Fermi est faible. Nous notons que contrairement aux échantillons "propres", aucune divergence de la magnéto-résistance n'est observée jusqu'à $57T$ dans cet échantillon désordonné.

Commentons maintenant la résistance de Hall. Contrairement à la courbe $R(V_g = 30V, B)$ (voir figure 4.3 (b)) qui montre des plateaux de résistance clair à $12.9k\Omega$ et $4.3k\Omega$, au voisinage du point de neutralité de charge, la résistance de Hall ne présente plus de plateaux bien développés, en raison de la présence dans l'échantillon d'une proportion égale d'électron et de trou. Nous remarquons aussi que pour certaines valeurs de tension de grille, la résistance de Hall change de signe, indiquant un changement du type de porteurs majoritaires. Cet effet peut être relié à la variation de l'énergie du niveau de Fermi en champ magnétique (ce point sera détaillé de manière plus extensive dans la partie suivante).

Superposée à la variation générale de la résistance que nous venons de décrire, la magnéto-résistance longitudinale et la résistance de Hall présentent de larges fluctuations. Par inversion du tenseur de résistance on obtient :

$$\sigma_{xx} = \frac{\rho_{xx}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2}, \qquad \sigma_{xy} = \frac{-\rho_{xy}}{\rho_{xy}^2 + \rho_{xx}^2} \tag{4.3}$$

pour un échantillon rectangulaire de largeur W et de longueur L

$$G_{xx} = \sigma_{xx}\frac{W}{L}, \quad R_{xx} = \rho_{xx}\frac{L}{W}, \quad G_{xy} = \sigma_{xy}, \quad R_{xy} = \rho_{xy} \tag{4.4}$$

on en déduit que

$$G_{xx} = \frac{R_{xx}}{R_{xx}^2 + \left(\frac{L}{W}\right)^2 R_{xy}^2}, \qquad G_{xy} = \frac{-R_{xy}}{R_{xy}^2 + \left(\frac{W}{L}\right)^2 R_{xx}^2} \tag{4.5}$$

Les figures 4.4 (a) et (b) montrent les variations de la conductance, obtenues en soustrayant une conductance monotone $\overline{G}(B)$ aux données expérimentales. On voit clairement que l'amplitude des fluctuations, ainsi que la gamme de champ magnétique sur laquelle ces fluctuations se produisent, augmente au voisinage du point de neutralité de charge. Des fluctuations de la magnéto-conductance dépendantes de la tension de grille ont déjà été rapportées dans certains travaux théoriques et expérimentaux [Zhang 2006, Abanin 2007b, Giesbers 2009], mais ne sont pas systématiquement observées [Checkelsky 2008]. Leur présence dépend de la mobilité de l'échantillon, de la température et de la gamme de champ magnétique. Dans les systèmes mésoscopiques désordonnés, les fluctuations de la magnéto-conductance sont généralement attribuées à des phénomènes d'interférences entre trajectoires électroniques. Le champ magnétique induit un changement de la phase des paquets d'ondes électroniques, modifiant ainsi la figure d'interférence. Ces fluctuations sont dites universelles car leurs amplitudes ne dépendent pas de la configuration microscopique des centres diffuseurs au sein de l'échantillon (voir partie 2.1.4.2). Les fluctuations que nous observons ici n'apparaissent que proche du point de neutralité de charge et possèdent de plus une large amplitude (jusqu'à $2.5e^2/h$). Ces particularités semblent exclure l'explication liée aux fluctuations universelles de conductance. Une interprétation alternative est donc nécessaire. Suivant le modèle développé par [Hwang 2007a, Adam 2007], la densité d'impuretés chargées dans un échantillon peut être déduite de sa mobilité : $n_{imp} = 5\times10^{15}\mu^{-1}$. En utilisant $\mu = 1300cm^2/V.s$, la densité d'impuretés sur l'échantillon est donc de $n_{imp} = 3.85\times10^{12}cm^{-2}$. En considérant que la répartition d'impuretés est homogène, la distance moyenne entre deux impuretés est donc d'environ $5nm$. Dans le graphène désordonné, proche du point de Dirac, l'écrantage électronique est réduit et les impuretés chargées entraînent la formation d'îlots d'électrons et de trous. Martin et *al* [Martin 2008] ont montré, par des procédés d'imagerie par transistor à électron unique qu'au point de neutralité de charge la taille des îlots est du même ordre de grandeur que les distances caractéristiques de la distribution des impuretés chargées. Il est raisonnable de considérer, au point de neutralité de charge, l'échantillon comme un système inhomogène constitué de zones chargées de tailles finies réparties sur toute la surface de l'échantillon. Ces zones dopées en électrons ou en trous sont dépendantes de la configuration spatiale des particules chargées, elles possèdent une forme irrégulière mais leur dimension minimale a une distribution de taille centrée sur la distance moyenne entre deux impuretés ($l_{imp} \approx 5nm$) (voir figure 4.5). Quand le champ magnétique augmente, la longueur magnétique l_B diminue et peut devenir plus petite que la dimension

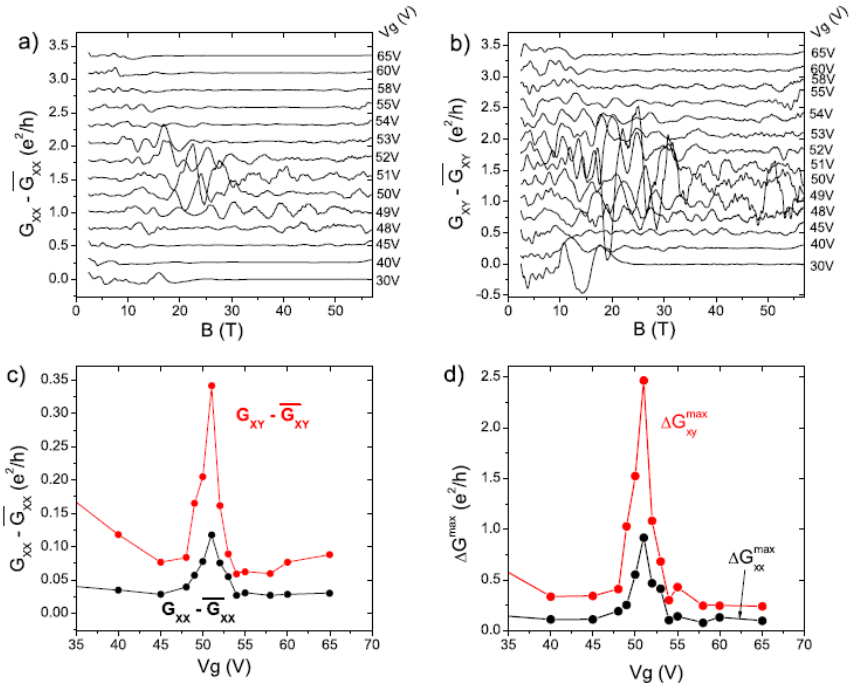

FIGURE 4.4 – Fluctuations de la magnéto-conductance (a) longitudinale, (b) de Hall à plusieurs valeurs de tension de grille. Les courbes ont été décalées pour plus de clarté. (c) déviation standard des courbes montrées en (a) (ligne noire) et (b) (ligne rouge). (d) Demi amplitude maximale pic-pic des fluctuations. On remarque que l'amplitude des fluctuations est plus importante proche du point de neutralité de charge.

minimale des îlots. L'orbite cyclotron peut alors être accommodée à l'intérieur de l'îlot (voir insert figure 4.5). De ce fait les îlots rentrent successivement dans le régime quantique à des champs magnétiques dépendant de leur taille, modifiant ainsi le processus de conduction. En conséquence la magnéto-conductance fluctue, et le maximum d'amplitude est attendu quand $l_{B_C} = \sqrt{h/eB_C} = 5nm$, c'est-à-dire au champ magnétique où le maximum d'îlots entrent dans le régime quantique. Au point de neutralité de charge, pour $l_{imp} = 5mn$, les fluctuations de la magnéto-conductance sont maximales, pour $B_C = 25T$, cette valeur est en très bon accord avec la valeur expérimentale (voir figure 4.4 (a) et (b)). Quand l'énergie du niveau de Fermi s'éloigne de zéro, la taille des îlots augmente. Le champ magnétique nécessaire pour que la longueur magnétique l_B devienne égale à la taille des îlots va donc diminuer. Le maximum d'amplitude des fluctuations se déplace donc vers un champ magnétique plus faible à mesure que V_g s'éloigne de V_{CNP} (voir figure 4.4 (a), (b)). De plus, à mesure que la taille moyenne des îlots augmente, leur nombre diminue, l'amplitude des fluctuations décroît donc. Ces prévisions sont en très bon accord qualitatif avec les variations de l'amplitude des fluctuations observées expé-

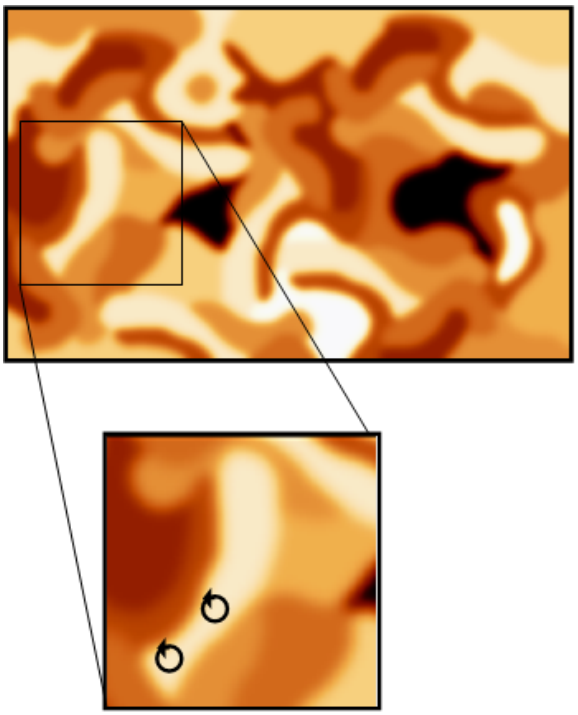

FIGURE 4.5 – Schéma de l'inhomogénéité spatiale de densité de porteurs présente sur un échantillon au point de neutralité de charge. Les densités de porteurs sont représentées par le code de couleur. Insert : zoom, et schéma de l'accommodation d'une orbite cyclotron à l'intérieur d'un îlot.

rimentalement.

4.1.4 Conclusions et perspectives

Dans ce paragraphe nous avons montré que les propriétés électroniques du graphène désordonné sont dominées, au voisinage du point de neutralité de charge, par la présence des îlots de trous et d'électrons. A faible champ magnétique la magnétorésistance peut être décrite en utilisant le modèle à deux porteurs. Ce modèle a permis d'étudier la variation de la mobilité au voisinage du point de neutralité de charge révélant ainsi une chute de la mobilité compatible avec la présence de défauts de type "lacune" dans l'échantillon. A champ magnétique plus important, la magnéto-conductance montre de fortes fluctuations. L'amplitude de ces fluctuations dépend du champ magnétique et de la tension de grille. Leur existence peut être expliquée par la présence des îlots électrons-trous transitant progressivement vers le régime quantique, et induisant une modification aléatoire des processus de conduction.

Bien que dans le modèle décrit ci-dessus les fluctuations de la magnéto-conductance trouvent une explication, la variation globale de la résistance de Hall

R_{xy} dans la zone de coexistence reste inexpliquée. Du fait de la forte influence du désordre sur le comportement de l'effet Hall au voisinage du point de neutralité de charge, l'étude de la magnéto-résistance en fonction du désordre est d'un intérêt primordial pour tenter de comprendre les phénomènes physiques sous-jacents. Cette étude sera l'objet de la partie suivante.

4.2 Impact du désordre sur le plateau $\nu = 2$ dans le régime d'effet Hall quantique

Comme nous l'avons énoncé précédemment, dans le graphène "propre", la levée des dégénérescences de vallée et de spin entraîne l'apparition de plateaux dans la conductance à des facteurs de remplissages de $\nu = 0, \pm 1, \pm 4$ [Zhang 2006, Jiang 2007]. La formation de tels états sont compris théoriquement dans le cadre de deux théories : le ferromagnétisme quantique de Hall [Nomura 2006], qui prévoit une levée de dégénérescence de spin, due à un effet Zeeman amplifié par des phénomènes d'échange, suivit d'une levée de dégénérescence de vallée. La formation de gap d'énergie exitonique [Gusynin 2006], qui prévoit une levée de la dégénérescence de vallée, liée à une forte interaction électron-électron, suivie par une levée de dégénérescence de spin. Il est intéressant de noter qu'alors que les plateaux $\nu = \pm 1, \pm 4$ sont expérimentalement observés à la fois dans la résistance et la conductance de Hall, l'état $\nu = 0$, pour lequel la divergence de la résistance longitudinale est observée, reste très peu rapporté dans les mesures de résistances de Hall [Amado 2010].Outre les difficultés expérimentales intrinsèques liées à la mesure d'une résistance de Hall nulle combinée avec une résistance longitudinale divergente, la présence de désordre, résultant en une inhomogénéité spatiale de la densité de porteurs, joue un rôle prédominant.

Dans cette partie nous étudierons l'influence du désordre sur la quantification de la résistance de Hall. Nous observons une décroissance de la valeur absolue de résistance du plateau quantifié à $\pm h/2e^2$ vers une valeur proche de zéro. Nous montrerons que cette décroissance de la résistance de Hall se produit pour un facteur de remplissage dépendant du taux de désordre dans l'échantillon. Une analyse minutieuse démontre que ce phénomène ne peut être expliqué par une levée de dégénérescence du niveau de Landau $n = 0$. Nous proposons une interprétation alternative basée sur une modification du ratio électrons-trous due au déplacement du niveau de Fermi au sein d'un potentiel électrostatique fluctuant.

4.2.1 Caractérisation à champ nul

L'échantillon étudié dans cette partie est le même que celui étudié dans la partie précédente. Pour pouvoir étudier l'effet du désordre, l'échantillon a été recuit sous vide ($10^{-5} mbar$) à 360K pendant plusieurs heures (voir partie 3.1.2.2). La figure 4.6 présente la caractéristique $R(V_g)$ pour l'échantillon avant et après recuit. Avant le recuit l'échantillon sera nommé $S1$; on retrouve comme exposé dans la partie

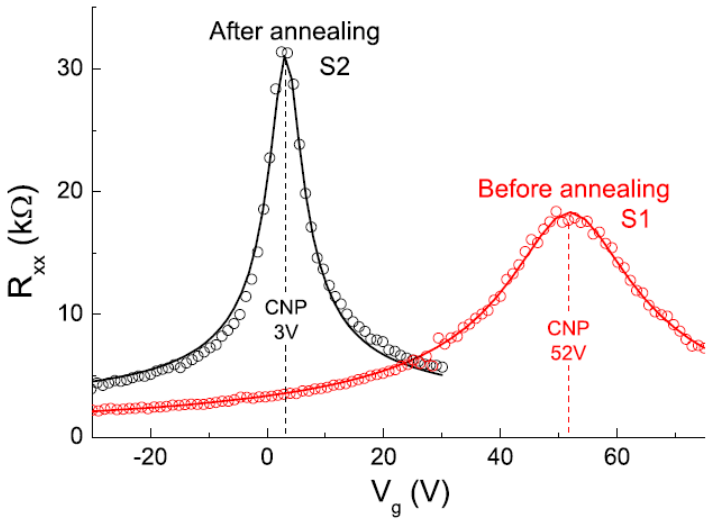

FIGURE 4.6 – (Courbe pointillé) Résistance longitudinale en fonction de la tension de grille, avant et après recuit (S1 et S2 respectivement), $T = 1.6K$. Les lignes continues sont les courbes extraites de l'ajustement théorique [Kim 2009] duquel nous avons extrait les mobilités et les densités de porteurs résiduelles au point de neutralité de charge.

précédente un point de neutralité de charge à $52V$ et une mobilité de $1300cm^2/V.s$. Pour l'échantillon après recuit ($S2$) le point de neutralité de charge a été déplacé à $V_{CNP} = 3V$. La mobilité de $S2$ déduite de la courbe $R(V_g)$ utilisant la relation [Kim 2009] :

$$R_{Tot} = R_C + \frac{\gamma}{\mu e\sqrt{n_0^2 + (C_g(V_g - V_{CNP}))^2}} \tag{4.6}$$

où R_C est la résistance de contact. Cette relation se déduit du modèle de Drude en considérant qu'une densité de porteurs résiduelle n_0 est induite au point de neutralité de charge par la présence d'impuretés chargées. La valeur de mobilité pour l'échantillon $S1$ est $\mu = 3500cm^2/V.s.$ en accord avec la mobilité extraite des courbes d'effet Hall. Le recuit a donc profondément modifié les propriétés de transport de l'échantillon, en supprimant une part des éléments absorbés à la surface ou au voisinage de l'échantillon. La densité de porteurs induite par la présence d'impuretés chargées au point de neutralité passe de $n_0 = 7.5 \times 10^{15}m^{-2}$ pour $S1$ à $n_0 = 1.7 \times 10^{15}m^{-2}$ pour $S2$. La zone de tension de grille pour laquelle la coexistence électrons-trous est attendue ($\Delta V_g^{th} = 2n_0/C_g$) passe alors de $20V$ à $5V$, en bon accord avec les résultats expérimentaux. On remarquera que d'autres sources de désordre telles que les lacunes, les impuretés chargées piégées dans l'oxyde ou les déformations (ripples) ne peuvent être supprimées en utilisant cette méthode de recuit.

4.2.2 Coexistence électron-trou induite par le champ magnétique intense

La résistance de Hall et la résistance longitudinale sont mesurées simultanément en présence d'un champ magnétique transverse sur une large gamme de tension de grille. La partie centrale de la figure 4.7 montre, pour $S1$ et $S2$, la résistance de

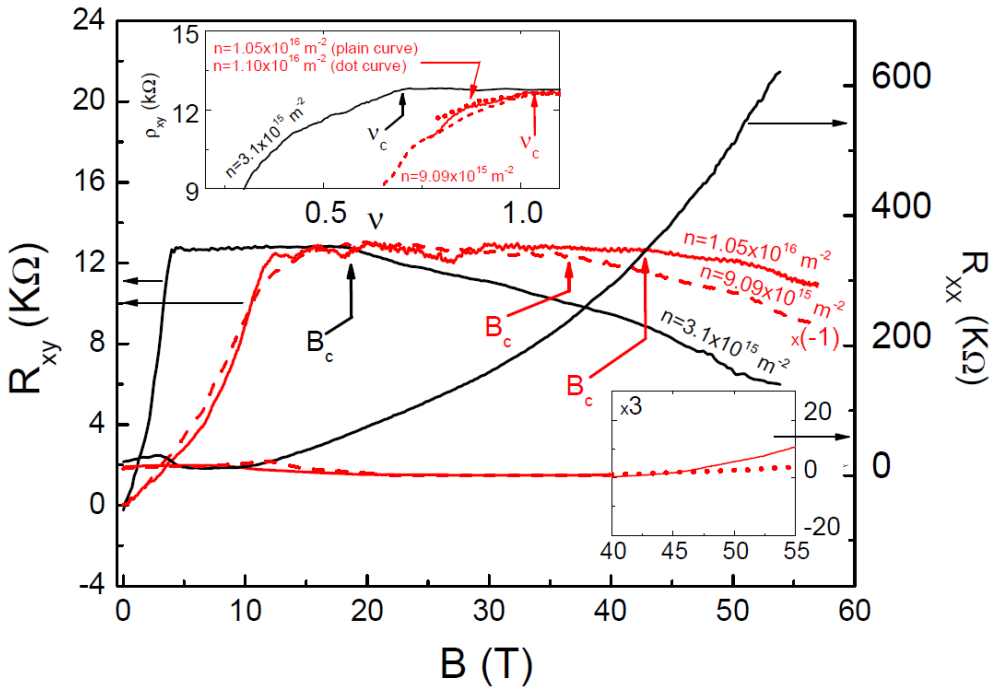

FIGURE 4.7 – $R_{xy}(B)$ et $R_{xx}(B)$ pour les échantillons S1 et S2 à différentes valeurs de dopage électrostatique. La courbe noire continue représente la magnéto-résistance de l'échantillon S2 à $V_g = 0$ et $n = 3.1 \times 10^{15} m^{-2}$. Courbe rouge continue : S1, $V_g = 40V$ et, $n = 1.05 \times 10^{16} m^{-2}$; Courbe rouge pointillé long : S1, $V_g = 60V$ et, $n = 9.09 \times 10^{15} m^{-2}$. On voit clairement que la résistance de Hall quitte le plateau quantifié à 12950Ω, et commence à diminuer. Insert bas droite : Zoom ($\times 3$) sur $R_{xx}(B)$ entre 40 et $55T$ pour S1. Insert haut gauche : les mêmes courbes R_{xy} mais tracées en fonction du facteur de remplissage $\nu = nh/eB$, plus une nouvelle courbe représentant $R_{xy}(\nu)$ pour S1 à $V_g = 60V$, $n = 1.1 \times 10^{16} m^{-2}$ (pointillé court rouge). On remarque que pour toutes les valeurs de dopages, les courbes de magnéto-résistances de l'échantillon S1 quittent le plateau correspondant à $\nu = 2$ au même facteur de remplissage. La valeur du facteur de remplissage critique pour l'échantillon S2 est quant à lui inférieur à celui observé pour S1.

Hall $R_{xy}(B)$, et la résistance longitudinale $R_{xx}(B)$, à $1.6K$ et à différentes densités de porteurs, à la fois dans le régime de dopage en trous et en électron pour $S1$ et

uniquement dans le régime de dopage en trous pour $S2$. Les conditions de dopage sont choisies pour qu'un seul type de porteurs de charge soit présent dans l'échantillon, comme cela est confirmé par la variation linéaire de la résistance de Hall à champ faible. Dans le régime de champ magnétique intense, on peut voir pour tous les dopages présentés, le plateau de résistance de Hall quantifié à $12.9k\Omega$, correspondant à $\nu = 2$. Ce plateau est stable jusqu'à une valeur de champ magnétique B_C, indiqué par une flèche sur la figure, au delà duquel la valeur absolue de la résistance de Hall commence à diminuer. Dans le même temps, la résistance longitudinale de l'échantillon $S2$ augmente fortement avec le champ magnétique (courbe noire figure 4.7). Cette évolution est différente de celle observé pour $S1$, où $R_{xx}(B)$ reste quasiment constant sur toute la gamme de champ magnétique accessible. L'insert en bas à droite de la figure 4.7 est un zoom ($\times 3$) des courbes $R_{xx}(B)$ de l'échantillon S1 entre 40 et $55T$. On remarque que, malgré une augmentation plus forte de $R_{xx}(B)$ pour $V_g = 40V$ que pour $V_g = 60V$, la décroissance de la résistance de Hall se produit à champ magnétique plus important sur $R_{xy}(B)$ à $V_g = 40V$. Dans l'insert en haut à gauche de la figure 4.7, les courbes de résistance de Hall sont tracées en fonction du facteur de remplissage $\nu = nh/eB$. Les valeurs de $\nu_C = nh/eB_C$, où R_{xy} commence à dévier du plateau quantifié de résistance sont clairement visibles, du fait de la large variation de la pente de $R_{xy}(\nu)$. Les valeurs de ν_C extraites pour $S1$ sont comprises entre 1.00 et 1.03 ; et est égale à $\nu_C = 0.71$ pour $S2$. Nous remarquons donc que ν_c différe d'un échantillon à l'autre et semble être liée au taux de désordre de l'échantillon de manière directe : un désordre plus fort induit une décroissance de la résistance de Hall à des facteurs de remplissage plus élevés, et donc a des champs magnétiques plus faibles à densité de porteurs équivalente.

La figure 4.8 reporte les mesures de magnéto-transport au point de neutralité de charge. Les courbes de résistances de Hall pour les deux échantillons $S1$ et $S2$ présentent qualitativement le même comportement : (i) une croissance non linéaire à faible champ magnétique, signature d'une conduction impliquant deux types de porteurs, les trous étant légèrement majoritaires. (ii) Après avoir atteint un maximum, la résistance de Hall décroît et change de signe à $\sim 36T$ et $\sim 40T$ pour $S2$ et $S1$ respectivement. Les courbes de magnéto-résistance longitudinale quant à elles, sont complètement différentes l'une de l'autre. La valeur de résistance $R_{xx}(B)$ pour l'échantillon $S1$ est insensible au champ magnétique alors que pour $S2$ elle croît fortement sur toute la gamme de champ magnétique.

Plusieurs éléments de la description des donnés expérimentales ci-dessus nous indiquent qu'une levée de dégénérescence du niveau $n = 0$ ne peut être à l'origine du comportement observé de la magnéto-résistance. Premièrement, la valeur de ν_C plus faible pour l'échantillon le plus propre est incompatible avec une levée de dégénérescence du niveau $n = 0$. En effet, l'élargissement des niveaux de Landau, avec l'augmentation du taux de désordre, devrait décaler la levée de dégénérescence vers des champs magnétiques plus intenses (à concentration de porteurs identique). Deuxièmement aucune corrélation n'est observée entre l'augmentation de la résistance longitudinale et la décroissance de la résistance de Hall. Finalement la résistance de Hall ne montre pas de plateau de résistance nulle mais change de signe,

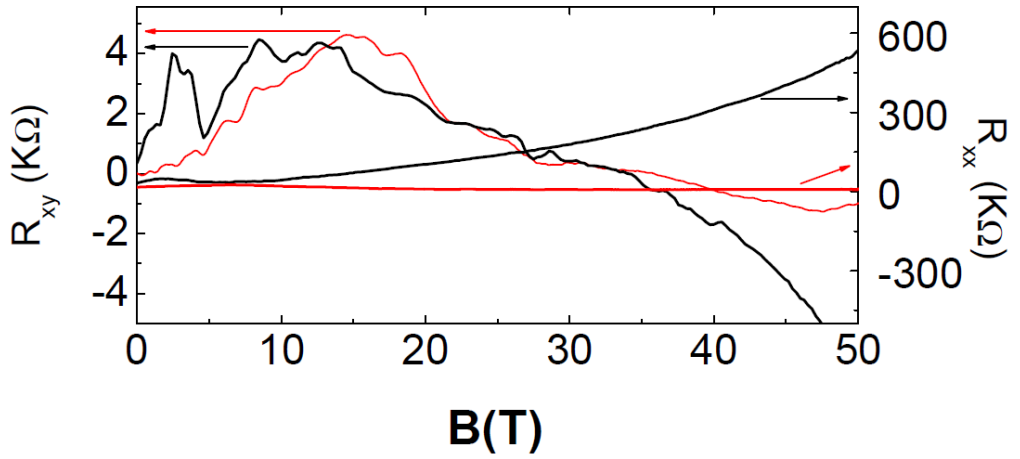

FIGURE 4.8 – $R_{xy}(B)$ et $R_{xx}(B)$ pour les échantillons S1 et S2 au point de neutralité de charge, courbe rouge et noire respectivement. On remarque un changement de signe de l'effet Hall pour les deux courbes, signature d'un changement de porteurs majoritaires.

ce qui démontre une modification du type de porteurs majoritaires. Nous proposons donc une explication alternative basée sur une dépendance en champ magnétique des densités relatives de trous et d'électrons.

Pour tenter de comprendre l'influence du champ magnétique sur la concentration de porteurs, nous avons étudié la variation de la résistance de Hall en fonction de la valeur de tension de grille pour l'échantillon $S1$ (voir figure 4.9 (a)). La décroissance de la valeur absolue de la résistance de Hall à fort champ magnétique est observée quelque soit la tension de grille, et est quasiment symétrique entre trou et électron. La figure 4.9 (b) est une carte récapitulant toute les courbes de magnéto-résistance obtenues sur l'échantillon $S1$, la variation de la résistance de Hall est représentée en fonction du champ magnétique et de la tension de grille. Les zones bleue et rouge, correspondent aux plateaux de résistances à $\nu = 2$ et $\nu = -2$ respectivement. La zone verte indique la zone de coexistence électrons-trous où la valeur absolue de la résistance de Hall est inférieure à $h/2e^2$. On voit clairement sur la figure que pour les champs magnétiques supérieurs à $26T$, la taille de la zone de coexistence augmente (voir ligne pointillé). Pour quantifier ce phénomène, nous avons étudié la variation de $\alpha = (n_h - n_e)/(n_h + n_e)$, ratio réduit entre la densité de porteurs de trous et d'électrons, en fonction du champ magnétique. Sur la figure 4.9 (c) sont tracées les courbes $\alpha(V_g)$ obtenues à 0, 20 et $55T$. A champ magnétique nul, $\alpha(V_g)$ est déduit en utilisant le modèle à deux porteurs comme décrit dans la partie 4.1.2 [Poumirol 2010a]. A $20T$ et $55T$ les courbes $\alpha(V_g)$ sont déduites en considérant qu'à ces champs magnétiques, tous les porteurs sont distribués dans le niveau $n = 0$

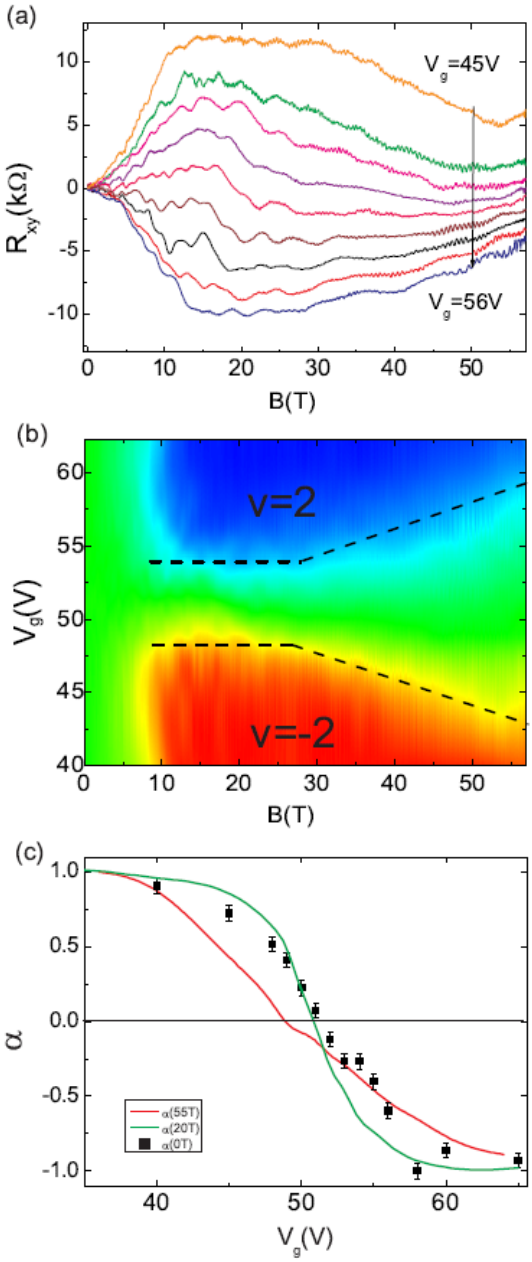

FIGURE 4.9 – (a) $R_{xy}(B)$ mesurée au voisinage du point de neutralité de charge pour l'échantillon S1, les valeurs de V_g varient de 45 à 56V par pas de 1V. (b) Carte 2D de $R_{xy}(B, V_g)$. Les lignes pointillé sont des guides pour les yeux qui délimitent la zone de coexistence électrons-trous dans le régime quantique. (c) $\alpha(V_g)$ à 0, 20 et $55T$.

et qu'aucune levée de dégénérescence n'a eu lieu. Ces hypothèses se justifient par le fait qu'aux tensions de grille limites $V_g = 30V$ et $V_g = 65V$, là où la densité

de porteurs est plus importante, ces conditions sont vérifiées. Le coefficient α peut s'écrire alors simplement comme $\alpha(V_g, B) = 2R_{xy}(V_g, B)e^2/h$. On remarque que la transition entre le régime de conduction électronique ($\alpha = -1$) et le régime de conduction de trous, devient plus "douce" sous champ magnétique intense. Ainsi, quelque soit la valeur de la tension de grille, entre $20T$ et $55T$, α est réduit. On voit aussi que la valeur de la tension de grille pour laquelle $\alpha = 0$, (c'est-à-dire que $n_e = n_h$) passe de $52V$ à champ nul, à $49V$ à $55T$. Pour cet échantillon l'application d'un champ magnétique supérieur à $30T$ induit donc de profondes modifications du ratio électrons-trous.

La partie supérieure de la figure 4.10 (a) est une vue schématique de la surface de l'échantillon. Les zones bleues (rouges) représentent le potentiel électrostatique négatif (positif) à longue portée des impuretés chargées. La partie inférieure de la figure 4.10(a) illustre les modulations spatiales, découlant de la présence de ces impuretés, de l'équipotentielle d'énergie nulle E_0 au sein de l'échantillon [Gallagher 2010]. Quand un champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan de graphène, la quantification en orbite cyclotron se produit. La variation spatiale du potentiel électrostatique induit la formation "d'échelles de Landau" spatialement ségréguées, dont l'énergie relative varie les unes par rapport aux autres en fonction du dopage local de l'échantillon. L'énergie du niveau $n = 0$, E_0, suit les variations du potentiel électrostatique [Sarma 2009]. A l'exception du niveau $n = 0$, l'énergie des niveaux de Landau ($n > 1$) va augmenter avec le champ magnétique. Lorsque $\nu = 2$, seul le niveau $n = 0$ se situe encore en dessous du niveau de Fermi. La figure 4.10 (b) illustre la dépendance en champ magnétique de la densité d'états pour trois zones arbitraires de l'échantillon qui sont respectivement : (3) dopée en électron, (2) dopée en trous, et (1) neutre, lorsque le niveau de Fermi est à énergie nulle (0.0 sur la figure 4.10 (a) inférieure). Le niveau de Fermi est choisi de telle manière qu'à champ magnétique nul, seul des électrons sont présents dans le système. Le champ magnétique $B1$ est choisi assez grand pour que tous les porteurs de charges soit distribués dans le niveau $n = 0$ pour les trois zones. Trois règles nous permettent de prédire l'effet du champ magnétique sur ce système : (i) l'énergie des niveaux de Landau $n = 0$ dans les trois zones, notée E_0 sur le schéma, ne varie pas avec le champ magnétique et est seulement déterminée par le potentiel électrostatique local dans l'échantillon, (ii) la dégénérescence orbitale des niveaux de Landau $n = 0$ augmente avec B et (iii) le niveau de Fermi est uniforme sur l'échantillon. On en déduit donc que quand le champ magnétique passe de $B1$ à $B2$ ($B2 > B1$) , l'énergie de Fermi diminue pour accommoder l'augmentation de la densité d'états à E_0 dans les trois zones. Pour les champs magnétiques assez intenses, la densité d'états du niveau de Landau $n = 0$ de la zone (3) devient suffisamment importante pour accommoder l'intégralité des porteurs. L'énergie du niveau de Fermi converge donc vers le niveau $n = 0$ de plus basse énergie (celui de la zone (3)). L'énergie du niveau de Fermi est alors inférieure à E_0 pour les zones (1) et (2). La conséquence évidente d'un tel processus est l'apparition d'états de trous au dessus du niveau de Fermi dans les zones (1) et (2). Ces états de trous peuplés ont un impact direct sur l'effet Hall : les deux types de porteurs sont présents dans le système, il en découle une

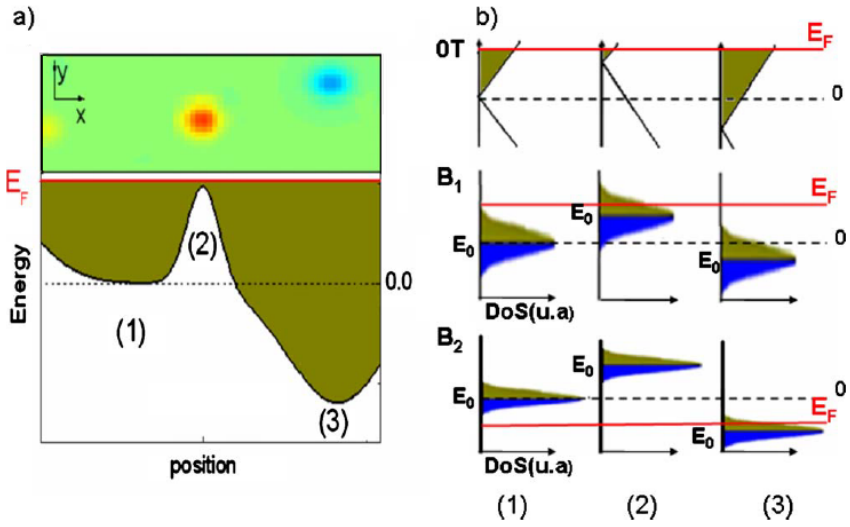

FIGURE 4.10 – (a) Partie supérieure : schéma 2D représentant en échelle de couleur le potentiel électrostatique local sur un échantillon de graphène. La couleur verte représente les zones neutres, les impuretés chargées sont représentées par les points rouges (positives) et bleus (négatives). Partie inférieure : modulation spatiale de l'équipotentielle d'énergie nulle induite par les impuretés chargées. La ligne rouge continue représente un niveau de Fermi arbitraire dans le cas d'un échantillon dopé en électron. La ligne noire pointillé représente le niveau d'énergie zéro pour le graphène pristine. (b) Densité d'états au voisinage de zéro pour trois zones sélectionnées de l'échantillon à différents champs magnétiques. L'énergie du niveau de Fermi est marquée par une ligne rouge.

diminution de la résistance de Hall dans le régime des champs magnétiques intenses comme cela est observé expérimentalement. Nous remarquerons ici que, bien que, par commodité nous ayons choisi de décrire sur la figure 4.10 un échantillon initialement dopé en électron, le même raisonnement s'applique à un échantillon qui serait initialement dopé en trous. Dans le modèle présenté ici, la coexistence électrons-trous induite par le champ magnétique est directement reliée à la configuration du désordre dans l'échantillon. Ceci est en accord avec la valeur unique de ν_c reportée expérimentalement quelque soit la concentration de porteurs pour une configuration de désordre donnée. Ce scénario valide aussi la valeur de ν_C plus faible quand la force du désordre est réduite. Proche du point de neutralité de charge, quand les électrons et les trous coexistent à champ nul, l'explication proposée reste valide et le champ magnétique tend à équilibrer les deux densités de porteurs. Notons tout de même que la légère variation de la valeur du point de neutralité de charge avec le champ magnétique est inattendue dans le modèle présenté ci-dessus (voir figure 4.9). Cela est susceptible d'être expliqué par une légère asymétrie entre électrons et trous à basse énergie. Les effets des contacts sur le dopage local des porteurs peuvent

être avancés comme une explication possible, mais des expériences complémentaires sont nécessaires.

4.2.3 Conclusion

Dans cette partie, nous avons étudié un comportement non conventionnel de l'effet Hall quantique du graphène sous champ magnétique intense. A fort champ magnétique, au delà du plateau de résistance correspondant à $\nu = 2$, la résistance perd son caractère quantifié, la valeur absolue de la résistance décroît. Cette décroissance a été étudiée pour plusieurs taux de désordre dans le même échantillon et en fonction de la concentration en porteurs. Nous avons montré que le taux de désordre (plus précisément l'extension énergétique de celui-ci) en présence de champ magnétique induit une variation de la densité de porteurs relative électrons/trous. Cette modification du coefficient α est liée à l'apparition d'états de trous (électrons) au dessus (en dessous) du niveau de Fermi. Ces niveaux proviennent des fluctuations locales du potentiel électrostatique au sein de l'échantillon. Ils deviennent accessibles suite à la chute du niveau de Fermi induit par l'augmentation de la densité d'états des niveaux de Landau $n = 0$ avec le champ magnétique. Ce travail démontre l'existence d'un régime de transport différent dans le graphène induit par le désordre. En effet, dans un échantillon de graphène propre, ce régime de transport ne peut être observé du fait que l'amplitude des variations du potentiel électrostatique à la surface de l'échantillon est plus petite que les énergies impliquées dans la levée de dégénérescence.

4.3 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre nous avons étudié l'influence de la formation des îlots électrons-trous sur les propriétés électroniques du graphène. Dans la première partie, c'est la configuration spatiale de ces îlots que nous avons sondé. En effet, à l'aide de mesures de magnéto-transport, nous avons pu donner une estimation de la distribution de taille moyenne de ces îlots. Dans la deuxième partie, c'est la configuration énergétique des îlots à laquelle nous avons été sensibles expérimentalement. Les expériences en champ magnétique ont permis de mettre en évidence une variation de l'énergie de Fermi qui en parallèle avec un potentiel électrostatique fluctuant induisent une modification de l'effet Hall quantique. Pour les études à venir, étudier du graphène déposé sur nitrure de bore semble très prometteur. En effet, des études ont montré que les fluctuations de densité de charge sont réduites deux ordres de grandeurs par rapport à celles observées avec le graphène déposé sur SiO_2 [Xue 2011]. Cela permettrait une étude plus poussée des propriétés électroniques du graphène à faible densité de porteurs et fort champ magnétique.

Chapitre 5

Graphène multi-feuillet

Sommaire

5.1 Effet Hall quantique entier dans le graphène tri-couche . . 89
5.1.1 Caractérisation à champ nul 90
5.1.2 Effet Hall et détermination de l'empilement 91
5.1.3 Effet du désordre 97
5.1.4 Conclusion et perspectives 101
5.2 Magnéto-transport dans le graphène multi-couche 102
5.2.1 Caractérisation à champ nul 103
5.2.2 Quantification en niveaux de Landau et phase de Berry . . . 104
5.2.3 Résistance de Hall 107
5.2.4 Conclusion 108
5.3 Conclusion et perspective 108

5.1 Effet Hall quantique entier dans le graphène tri-couche

Dans le graphène, l'existence d'un niveau de Landau à énergie nulle, indépendant du champ magnétique, implique l'apparition d'un effet Hall non conventionnel [Novoselov 2005b]. Les plateaux de conductivité sont quantifiés à des valeurs $\sigma_{xy} = 4(n + 1/2)e^2/h$ [Novoselov 2005a]. Dans le cas du graphène bi-couche, la dégénérescence du niveau à énergie nulle est doublée et donne naissance à une troisième forme d'effet Hall quantique pour lequel la séquence des plateaux de Hall est identique à celle de l'effet Hall quantique conventionnel, excepté pour le plateau à $\sigma_{xy} = 0$ qui n'apparaît pas [Novoselov 2006]. A chaque fois qu'une nouvelle couche est ajoutée pour former un système de graphène à N couches, il est prévu, théoriquement, que la dégénérescence du niveau d'énergie nulle devienne égale à $N \times g$ avec $g = 4$. Dans le graphène tri-couche, le niveau de Landau $n = 0$ est donc 12 fois dégénéré. La séquence des plateaux de Hall est donc identique à celle du graphène, mais le plateau correspondant à $\nu = 2$ ne devrait pas être visible. A notre connaissance, l'effet Hall quantique dans le graphène tri-couche a surtout été étudié théoriquement [Min 2008a, Nakamura 2008a, Nakamura 2008b, Aoki 2007], bien que des études expérimentales récentes commencent à apparaître dans la littérature [Liyuan Zhang 2011, Thiti Taychatanapat 2011]. Le petit nombre de réalisations expérimentales peut en partie être expliqué par les faibles mobilités relevées dans le

graphène tri-couche. En effet, les mobilités du graphène tri-couche déposé sur SiO_2 se situent aux alentours de $1000cm^2/V.s$ [Bao 2010, M. 2009, Zhu 2009]. Un champ magnétique $B > 10T$ est alors nécessaire à l'observation des phénomènes quantiques.

Sur la base de mesure de magnéto-transport et de spectroscopie Raman, nous avons clairement identifié un échantillon comme un graphène tri-couche. Nous reportons ainsi un quatrième type d'effet Hall quantique entier. A l'aide de simulations numériques auto-consistantes basées sur le modèle des liaisons fortes Slonczewski-Weiss-McClure (SWMC), effectuées dans le cadre d'une collaboration avec D. P. Arovas et M. M. Fogler, nous avons pu identifier le type d'empilement des couches de graphène composant notre échantillon.

5.1.1 Caractérisation à champ nul

L'échantillon a été déposé par exfoliation mécanique de graphite naturel sur un substrat de SiO_2. Sur la figure 5.1 (a) et (b) on peut voir que le contraste optique révèle clairement que l'échantillon est composé de plus d'une couche atomique de graphène. Le spectre de diffusion Raman de cet échantillon a été mesuré à température ambiante à l'aide d'un micro Raman confocal utilisant un laser He-Ne de longueur d'onde $\lambda = 280nm$. Le profil de la bande 2D (aussi appelé G') de l'échantillon est tracé sur la figure 5.1 (c) et est comparé à un profil obtenu pour un échantillon de graphène sur le même substrat. Le profil observé est clairement multimodal, caractéristique des échantillons multi-couches, à comparer avec le spectre Raman monomodal observé pour le graphène. L'élargissement et le décalage du pic montrent donc clairement que l'échantillon est composé de plus d'une couche de graphène.

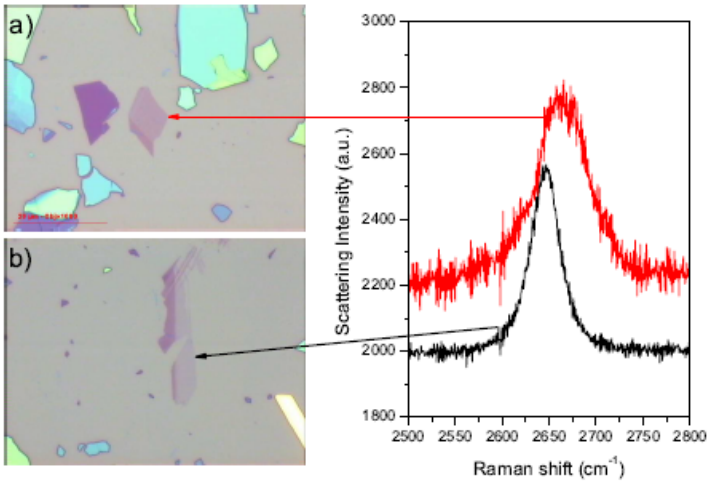

FIGURE 5.1 – Image optique de graphène (a) tri-couche, (b) monocouche, déposé sur SiO_2. (c) Spectre Raman des deux échantillons présentés en (a) et (b). Longueur d'onde d'excitation laser 633nm.

Après déposition des contacts de Ti(5nm)/Au(40nm) par évaporation et gravure en barre de Hall, l'échantillon a été recuit à plusieurs reprises. Du fait des faibles mobilités observées dans le graphène tri-couche, cette étape est indispensable. La figure 5.2 montre le profil des courbes $R(V_g)$ après les recuits successifs sous vide et sous atmosphère d'Hélium à $410K$. On voit que le point de neutralité de charge (CNP) est atteint pour $V_{CNP} = -13.8V$, indiquant la présence d'un dopage de type n résiduel. Au CNP la densité de porteurs résiduel est estimée à $n_0 = 8.5\times10^{11}cm^{-2}$. Si on compare cette valeur avec celle obtenue dans l'échantillon de graphène $S1$ présenté dans le chapitre 4, on remarque que bien que la valeur de V_{CNP} soit plus faible dans le cas du tri-couche, le nombre de porteurs résiduels est plus important. Ceci souligne une fois de plus la difficulté à obtenir des échantillons intrinsèques de graphène tri-couche malgré des étapes de recuit successif. Les mobilités des porteurs extraites de la caractéristique $R(V_g)$ sont $\mu_e = 1300\pm100cm^2/V.s$ pour les électrons et $\mu_h = 900\pm300cm^2/V.s$ pour les trous.

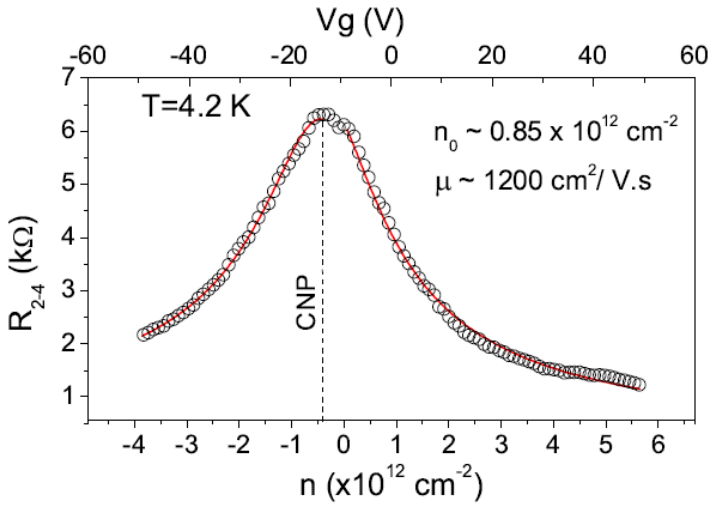

FIGURE 5.2 – (a) Marques circulaires : résistance longitudinale en fonction de la concentration en porteur, à T=4.2K. Ligne continue : ajustement théorique utilisant le modèle développé en [Kim 2009] duquel les valeurs n_0 et μ ont été déduites.

5.1.2 Effet Hall et détermination de l'empilement

5.1.2.1 Confirmation de la nature tri-couche de l'échantillon

La figure 5.3 (a) montre le profil de la résistance de Hall mesuré dans l'échantillon, en parallèle avec la résistance de Hall obtenue expérimentalement pour un échantillon de graphène et un échantillon bi-couche. Les densités de porteurs pour les trois échantillons sont comparables, en effet les pentes de l'effet Hall classique à bas champ sont quasiment identiques. L'insert de la figure 5.3 (a) est une représen-

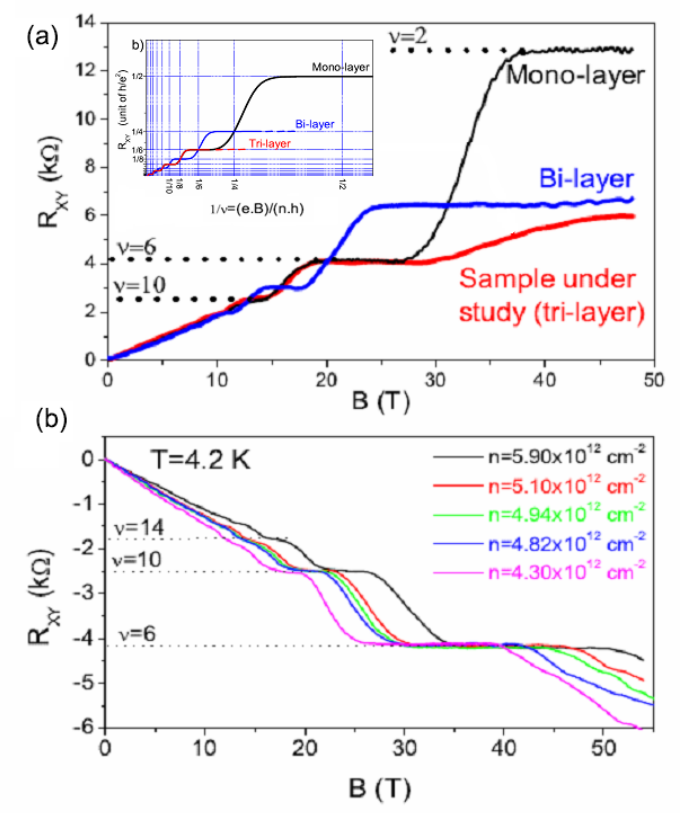

FIGURE 5.3 – (a)Magnéto-résistance de Hall pour un échantillon de graphène mono, et bi-couche comparée à celle obtenue dans l'échantillon étudié ici. Les densités de porteurs pour les trois cas sont identiques $n \approx 3.4 \times 10^{12} cm^{-2}$ et les mobilités des différents échantillons sont comparables. On voit, pour l'échantillon étudié, que la résistance est quantifiée en plateaux de Hall à des valeurs de $R_{xy} = h/10e^2$ et $R_{xy} = h/6e^2$ sans signe du plateau à $h/2e^2$ que l'on peut observer pour le graphène. Insert : représentation schématique de l'effet Hall quantique entier dans du graphène mono, bi et tri-couche. La dégénérescence du niveau d'énergie zéro est partagée entre les électron et les trous, et prend une valeur $f = g = 4$ dans le cas du monocouche, $f = 2 \times g = 8$ dans le cas du bi-couche et $f = 3 \times g = 12$ dans le cas du tri-couche. (b) Résistance de Hall mesurée dans notre échantillon pour plusieurs valeurs de densité de porteurs, loin du point de neutralité de charge.

tation schématique de la résistance de Hall attendue pour les trois configurations mono, bi et tri-couche de graphène en fonction de l'inverse du facteur de remplissage. Pour notre échantillon, la séquence des plateaux de résistance est décrite par la suite $R_{xy} = h/\nu e^2$ avec $\nu = 6, 10, 14...$ L'effet Hall quantique entier pour l'échantillon est donc indiscernable de celui du graphène sauf à fort champ magnétique où le plateau correspondant à $\nu = 2$ est absent. Ces observations, ainsi que les résultats obtenues en spectroscopie Raman et microscopie optique, confirment que l'échantillon

est composé de trois couches de graphène. La figure 5.3 (b) montre la résistance de Hall pour plusieurs valeurs de la densité de porteurs n, différentes de celles montrées en 5.3 (a). On voit que la quantification de la résistance de Hall est reproductible, et que les plateaux se décalent vers les champs magnétiques plus faibles à mesure que la densité de porteurs diminue. On remarque aussi que la valeur de $R_{xy}(B)$ quitte le plateau $\nu = 6$ à fort champ magnétique. Aucun nouveau plateau de résistance n'apparaît, la résistance augmente de manière quasi linéaire jusqu'a 55T. Cette augmentation de la résistance de Hall au delà du plateau $h/6e^2$ est probablement liée au début de la levée de dégénérescence du niveau $n = 0$ avec le champ magnétique.

5.1.2.2 Description du modèle théorique

La structure de bande de l'échantillon a été calculée par D. P. Arovas (university of California, San diego) en utilisant la méthode des liaisons fortes SWMC (voir partie 1.1.2). Les interactions entre atomes voisins sont prises en compte en utilisant les paramètres de saut γ_n [Slonczewski 1958, McClure 1957]. La figure 5.4 (a) est une représentation schématique des intéractions entre atomes pour un échantillon tri-couche de graphène, dans le cas d'un empilement Bernal et rhomboédrique. L'énergie locale d'un site est proportionnelle au nombre de plus proches voisins intra-couche. Dans les calculs qui seront présentés $\gamma_0 = 3eV$, $\gamma_1 = 0.4eV$, $\gamma_2 = -20meV$, $\gamma_3 = 0.3eV$, $\gamma_4 = 150meV$ et $\gamma_5 = 38meV$. Les interactions colombiennes sont traitées dans ces simulations via une approche auto-cohérente de Hartree. Le champ magnétique $\vec{B}$ est introduit par le facteur de phase de Pierls (voir partie 1.1.3). L'Hamiltonien du système a été raffiné pour prendre en compte l'effet Zeeman, qui s'écrit sous la forme :

$$H_Z = \frac{1}{2} g \mu_B \vec{\sigma}.\vec{B} \tag{5.1}$$

où g est le facteur de Landé ($g = 2$ dans notre cas). Du fait de la faible mobilité dans l'échantillon, les effets du désordre sont importants, et ce notamment au niveau de l'élargissement des niveaux de Landau. Pour déterminer un ordre de grandeur de la valeur de l'élargissement des niveaux de Landau nous utilisons la relation :

$$\mu B = \omega_c \tau = 1 \tag{5.2}$$

où $\omega_c = eB/m$ est la pulsation cyclotron, avec $m = 0.052m_0$ la masse effective des porteurs dans le graphène tri-couche [M. 2009] et τ est le temps moyen de diffusion élastique. On déduit alors un élargissement des niveaux de Landau de l'ordre de $W = \hbar/\tau \sim 20meV$. Dans le modèle, l'effet du désordre est pris en compte par une convolution de la densité d'états avec une fonction porte de demi largeur $W_0 = 10meV$.

l'étude d'un échantillon multi-couche sous l'effet d'une tension grille, necessite de connaitre la distribution des charges au sein des différentes couches. En effet, comme cela a été montré dans la partie 1.2.4, une différence de potentiel entre les différentes couches peut induire de profondes modifications de la structure de bande. La figure 5.4 (b) montre le cas général d'un échantillon composé de p couches de

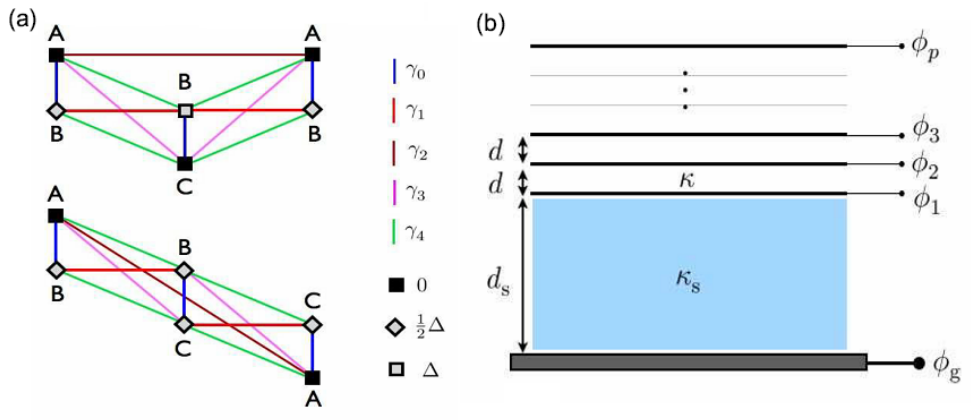

FIGURE 5.4 – (a) Partie supérieure : Schéma des interactions entre atomes prises en compte dans les simulations présentées dans ce chapitre pour un échantillon de graphène tri-couche d'empilement Bernal. Partie inférieure : idem pour tri-couche d'empilement rhomboédrique. L'énergie des sites atomiques est montrée et dépend du nombre de voisins verticaux. Les noms des sites A, B, C correspondent aux différents types de sous réseaux (voir 1.2.4). (b) Schéma d'un échantillon multi-couche dans une configuration avec une seule grille inférieure. Le potentiel de chaque couche est indiqué par les termes ϕ_i, avec ϕ_0 le potentiel de la grille.

graphène. En intégrant le théorème de Gauss sur les différentes couches, on obtient p équations :

$$\phi_{j-1} - \phi_j = \frac{4\pi e d_j}{\kappa_j} \sum_{i=1}^{p} n_i \tag{5.3}$$

avec $\phi_0 = \phi_g$ le potentiel de grille, j est l'indice de la couche allant de 1 à p et les termes n_i sont les densités d'états totales de la couches i en unité de $-e$. La valeur d_i représente la distance entre 2 couches et κ_i la constante diélectrique entre deux couches consécutives. De plus le potentiel électrochimique total du système doit être égal à celui aux bornes de la capacité globale formée par la grille et l'échantillon de graphène multi-couche. On peut alors écrire :

$$eV_g = \zeta - \zeta_g \tag{5.4}$$

où ζ est le potentiel électrochimique du graphène multi-couches et ζ_g le potentiel de grille. Au sein de la grille métallique on peut écrire que $\zeta_g = -e\phi_0$. On en déduit que :

$$eV_g = \zeta + e\phi_0 \tag{5.5}$$

Pour le graphène tri-couche, on obtient donc un système de trois équations qu'il faut résoudre de manière auto-cohérente pour pouvoir déterminer le potentiel des différentes couches. Nous faisons l'hypothèse que le système contient des charges disposées aléatoirement sur la couche supérieure de l'échantillon. Ces charges

rendent compte de la valeur de tension de grille non nulle du point de neutralité de charge V_{CNP}. La densité de porteurs de la couche supérieure s'écrit alors $\widetilde{n}_3 = n_3 + \Delta n_3$, où Δn_3 est la densité d'impuretés chargées. On ne connait pas à priori la densité d'impuretés, mais en considérant de manière simple le dispositif "graphène tri-couche/grille" comme une capacité plane unique, nous pouvons écrire $\Delta n = \kappa V_{CNP}/4\pi ed$.

5.1.2.3 Détermination de l'empilement

La partie centrale de la figure 5.5 montre la variation énergétique des niveaux de Landau, pour les deux types d'empilement A-B-A et A-B-C, à une valeur constante de tension de grille de $50V$, l'énergie du niveau de Fermi en fonction du champ magnétique est elle aussi indiqué. On remarque, tout d'abord, que la quantification en niveaux de Landau pour les deux types d'empilements est très différente de celle que l'on peut observer dans le graphène. On voit par exemple l'existence d'un gap d'énergie de plusieurs dizaines de meV, dû à l'application de la tension de grille. On remarque également une forte asymétrie entre les niveaux de Landau d'électrons et ceux de trous, qui n'apparaît pas dans le graphène. Le profil des niveaux de Landau pour le graphène tri-couche est aussi fortement différent entre l'empilement de type Bernal et le cas rhomboédrique, cette différence est majoritairement liée à la dégénérescence de vallée. En effet, à tension de grille nulle, le graphène tri-couche d'empilement Bernal ne présente pas une symétrie d'inversion du réseau et de ce fait, la dégénérescence devalée est levée, au contraire du cas rhombrohédrique [Koshino 2010b]. Par contre, à tension de grille non nulle, comme c'est le cas ici, la présence du champ électrique induit une redistribution des charges entre les différentes couches, qui brise la symétrie d'inversion du réseau [Aoki 2007, Koshino 2010a] et induit une levée de dégénérescence de vallée même dans le cas A-B-C. Malgré tout, l'amplitude de la levée de dégénérescence K-K' induite par le champ électrique dans le cas A-B-C reste plus faible que dans le cas A-B-A. On voit clairement sur la figure 5.5 (a) et (b) que les niveaux de Landau provenant des points K (lignes continues) et des points K' (lignes pointillés) sont très distincts dans le cas A-B-A, alors qu'ils restent à des énergies comparables pour le cas A-B-C. Sous champ magnétique intense, les niveaux de Landau de la configuration rhomboédrique évoluent donc par groupe de 4 niveaux d'énergies très semblables.

La partie inférieure de la figure 5.5 montre les courbes de résistance de Hall théorique pour les deux configurations. Celles-ci sont calculées à température nulle, en considérant que la conductivité de Hall varie par pas de e^2/h quand le niveau de Fermi traverse un niveau de Landau. Comme cela a été démontré dans le chapitre 6, à faible nombre quantique, la variation de l'énergie du niveau de Fermi avec le champ magnétique est importante et doit être prise en compte (voir courbe verte dans la partie supérieure de la figure 5.5). L'élargissement des niveaux de Landau lié à la prise en compte dans le calcul du temps de diffusion, entraîne une transition progressive du niveau de Fermi au travers des niveaux de Landau. Lorsque la différence d'énergie entre deux niveaux de Landau est faible face à W ($20meV$ dans

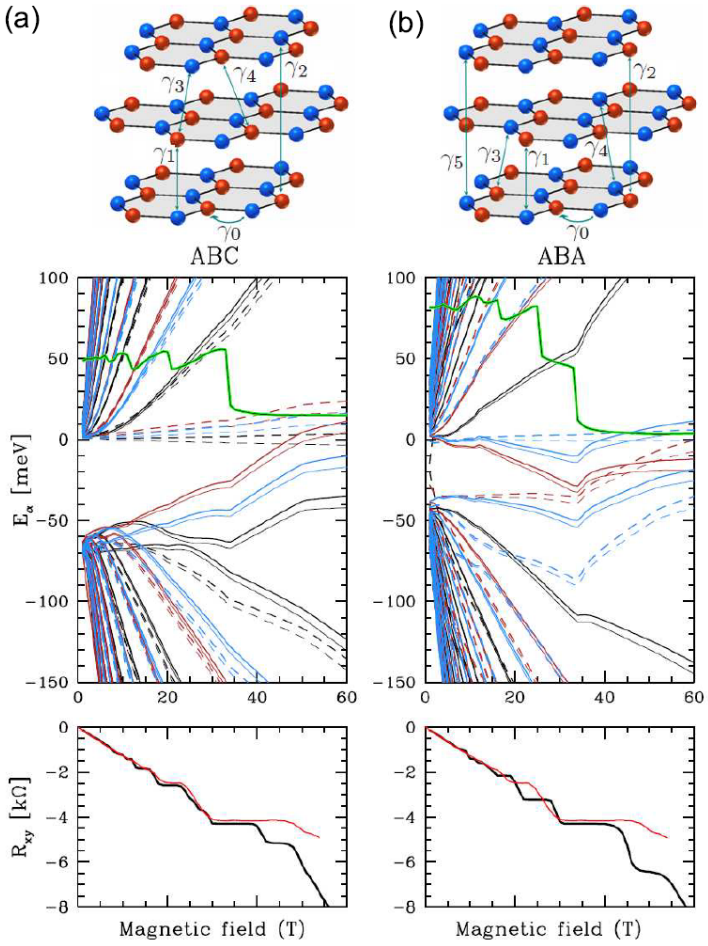

FIGURE 5.5 – (a) Partie Supérieure : schéma des interactions pour un échantillon de graphène tri-couche de type A-B-C. Partie Centrale : Structure des niveaux de Landau pour le graphène tri-couche A-B-C avec $Vg = 50V$, $V_{CNP} = -13.75V$, $T = 4.2K$, $W = 10meV$ et $g = 2$. Partie inférieure : comparaison entre la courbe de résistance de Hall expérimentale à $V_g = 50V$ et la courbe de résistance de Hall calculée théoriquement utilisant les paramètres ci dessus. La courbe de résistance de Hall a été calculée théoriquement en considérant les intersections entre le niveau de Fermi et les niveaux de Landau. (b) Même information que dans (a) mais pour le graphène tri-couche A-B-A. On remarque que dans la résistance de Hall calculée pour l'échantillon de type A-B-A des plateaux de résistance à $R_{xy} = h/8e^2$ et $R_{xy} = h/12e^2$ sont observables, alors qu'ils n'apparaissent pas sur les mesures.

notre cas), le passage du niveau de Fermi à travers ces niveaux induit alors un saut de résistance égal à $2e^2/h$. Dans le cas rhomboédrique, le fait que les niveaux de Landau évoluent par groupe de 4 niveaux d'énergies très semblables entraîne l'apparition d'un effet Hall quantique variant par pas de $4e^2/h$ en très bon accord avec

les résultats expérimentaux. Au contraire, la courbe de résistance de Hall, calculée pour les cas Bernal, montre des plateaux de Hall correspondant à des facteurs de remplissage $\nu = 8$ et $\nu = 12$ qui n'apparaissent pas dans les courbes expérimentales. On remarque néanmoins que l'accord entre la résistance de Hall théorique et expérimentale, dans le cas rhomboédrique, n'est pas bon sur toute la gamme de champ magnétique. En effet, au delà de $40T$, la résistance théorique est marquée par un nouveau plateau correspondant à un facteur de remplissage de $\nu = 4$, puis croît de manière linéaire jusqu'a $8k\Omega$. Dans la partie suivante nous proposerons une hypothèse selon laquelle ce désaccord est lié à la présence d'un fort taux de désordre. Il a été démontré que le type d'empilement dans le graphène tri-couche peut être déterminé grâce à la spectroscopie Raman [Lui 2011]. La signature spectrale Raman du type d'empilement est relativement subtile, et est difficile à déterminer sur notre spectre expérimental. Malgré tout, notre analyse de l'effet Hall quantique entier permet de déterminer de manière fiable le type d'empilement de notre échantillon. Nos résultats sont en accord avec les résultats trouvés en [Liyuan Zhang 2011], où une suite de plateaux de Hall identique à celle que nous avons trouvé a été observée dans un échantillon de graphène tri-couche identifié A-B-C à l'aide de la spectroscopie Raman. Par contre, nos résultats semblent en désaccord avec les mesures d'effet Hall quantique effectuées en [Thiti Taychatanapat 2011], où dans un échantillon de type Bernal, les plateaux correspondant aux facteurs de remplissages $\nu = 8$ et $\nu = 12$, attendus dans le cadre de notre modèle, n'ont pas été observés et ce malgré une très bonne mobilité (de l'ordre de $110000cm^2/V.s$).

La figure 5.6 montre la comparaison entre les courbes de résistance de Hall théorique et les résultats expérimentaux et ce pour plusieurs valeurs de tension de grille comprises entre $V_g = 20V$ et $V_g = 60V$. On voit que de manière générale, l'accord est bon avec l'empilement de type A-B-C et ce quelque soit la tension de grille, du moins pour des facteurs de remplissages $\nu \geq 6$. Certains désaccords peuvent tout de même apparaître, mais ceux-ci ne remettent pas en cause la détermination du type d'empilement. La présence de plateaux de Hall marqués à $8e^2/h$ et $12e^2/h$ étant toujours attendue pour le graphène tri-couche A-B-A pour toutes les tensions de grille montrées ici.

5.1.3 Effet du désordre

Pour les faibles facteurs de remplissages $\nu < 6$, ainsi que pour les valeurs de tension de grille inférieures à 20V, on remarque que le modèle théorique ne permet pas de reproduire convenablement les variations de la résistance de Hall. Pour comprendre d'où provient ce désaccord, une analyse de la résistance de Hall au voisinage du point de neutralité de charge est nécessaire. La figure 5.7 (a) reporte les mesures de l'effet Hall pour des tensions de grille allant de 40V à -30V. La courbe correspondant à $V_g = 40V$ ($n = 4.3 \times 10^{12} cm^{-2}$) présente des plateaux de Hall bien définis. A mesure que $V_g \to V_{CNP}$, les plateaux de Hall correspondant au même facteur de remplissage se produisent à des champs magnétiques plus faibles, comme cela est prévu dans la théorie de l'effet Hall quantique entier. Quand $-30V < V_g < 0V$,

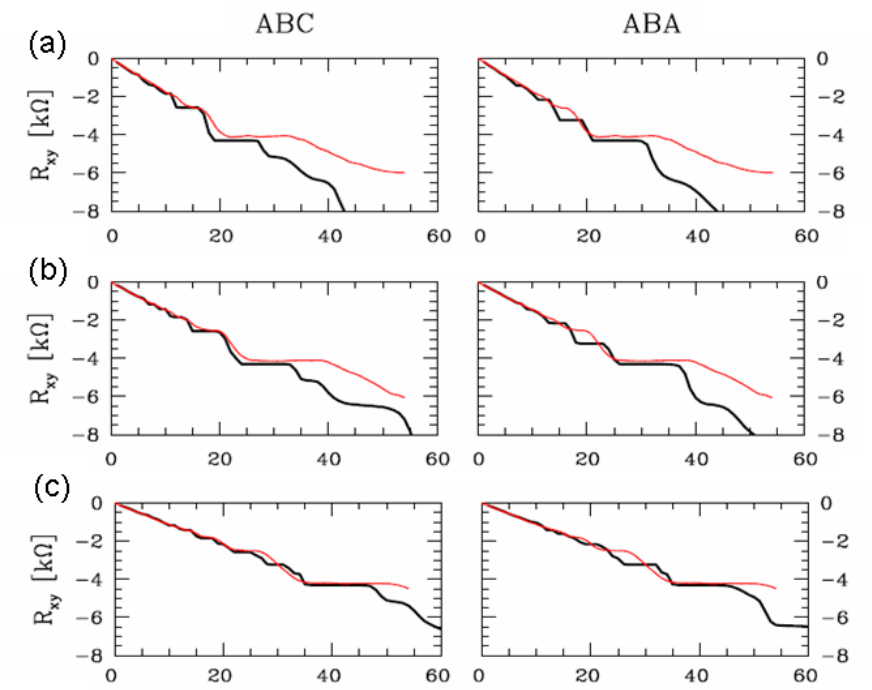

FIGURE 5.6 – Comparaisons entre les courbes de résistance de Hall expérimentales et théoriques pour les deux types d'empilement A-B-C (gauche), et A-B-A (droite) pour plusieurs valeurs de tension de grille (a) $V_g = 30V$, (b) $V_g = 40V$ (a) $V_g = 60V$. L'accord entre les données expérimentales et les calculs théoriques est meilleur pour la configuration A-B-C que pour la configuration A-B-A et ce quelle que soit la tension de grille, on remarque pourtant qu'au delà du plateau de résistance $R_{xy} = h/6e^2$, les calculs théoriques ne permettent plus de modéliser correctement la resitance de Hall.

l'effet Hall à bas champ magnétique devient non linéaire, mettant en évidence un régime de conduction où à la fois des électrons et des trous participent au transport. Cette large zone de tension de grille pour laquelle deux types de porteurs coexistent, indique que l'extension énergétique caractéristique des îlots électrons/trous est importante.

5.1.3.1 Modèle de conduction au point de neutralité de charge

Contrairement à celle observée dans le graphène, la caractéristique $R(V_g)$ mesurée pour l'échantillon varie fortement avec la température (voir figure 5.7 (b)). Pour le graphène bi-couche tout comme pour le graphène tri-couche, les courbes $R(V_g, T)$ présentent une forte caractéristique isolante. H.Hwang et al [Hwang 2010] ont déterminé que ce comportement provient de la présence des îlots de trous et d'électrons qui induisent la coexistence d'un mécanisme de transport de type métallique avec

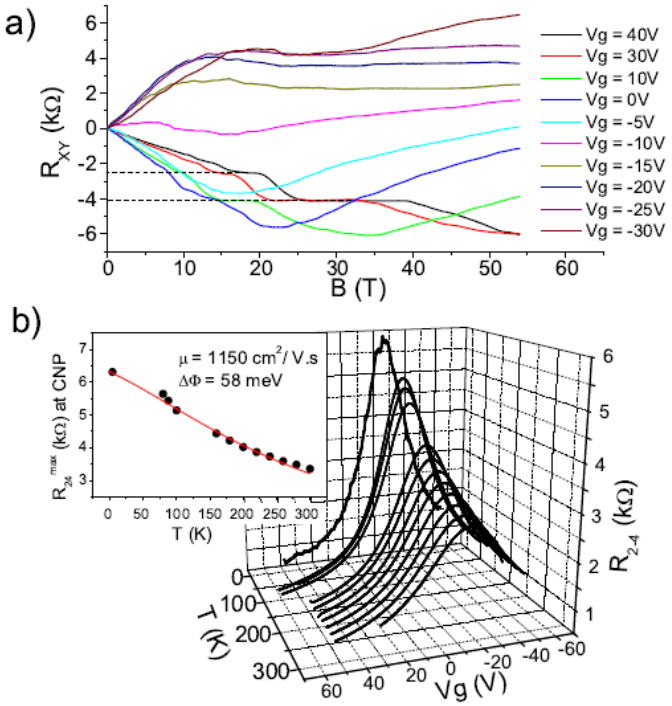

FIGURE 5.7 – (a) Résistance de Hall pour plusieurs valeurs de tension de grille au voisinage du point de neutralité de charge. (b) Résistance longitudinale en fonction de la tension de grille et de la température. Insert : Variation de la valeur du maximum de résistance en fonction de la température et ajustement théorique utilisant le modèle théorique développé ci-dessous inspiré de celui réalisé par [Hwang 2010].

un transport activé thermiquement. L'étude de la variation en température de la résistance peut donc permettre de quantifier le désordre lié aux îlots dans l'échantillon. Commençons par faire l'hypothèse que les fluctuations du potentiel électrostatique induites par le désordre sont décrites par une fonction de distribution $P(V)$ où $V = V(\vec{r})$ est la valeur du potentiel électrostatique au point $\vec{r} = (x, y)$. On approxime $P(V)$ par une distribution Gaussienne [Hwang 2007a] :

$$P(V) = \frac{1}{\sqrt{2\pi s^2}} e^{-V^2/2s^2} \tag{5.6}$$

où s est la déviation standard du potentiel. En présence des îlots de trous et d'électrons la densité d'états électroniques $D_{ilot}(E)$ est donc réduite d'une fraction correspondant aux zones autorisées.

$$D_{ilot}(E) = \int_{-\infty}^{E} D(V)P(V)dV \tag{5.7}$$

avec $D(E) = \gamma_1^{4/3}/(v_F^2 E^{1/3})$ la densité d'états du graphène tri-couche de type A-B-C. Sans la présence d'un champ électrique pour rompre la symétrie des couches, le graphène tri-couche est un semi conducteur de gap nul. La densité de porteurs à température finie augmente du fait de l'excitation thermique entre la bande de valence et la bande de conduction.

$$n_e = \int_{-\infty}^{\infty} = D_{ilot}(E)\frac{dE}{e^{\beta(E-E_F)+1}} \tag{5.8}$$

Au point de neutralité de charge la densité de trous et d'électrons sont égales. A mesure que l'énergie du niveau de Fermi augmente, de plus en plus d'électrons entrent dans le système, et occupent une fraction de l'échantillon de plus en plus importante. Quand les îlots d'électrons occupent plus de "place" que les îlots de trous, la plupart des électrons suivent le chemin de conduction formé par les îlots sur toute la surface de l'échantillon, mais, à cause de la température non nulle, la conduction thermiquement activée des électrons par dessus la barrière de potentiel formée par les îlots de trous est à prendre en compte. Les trous au sein des îlots de trous eux se propagent librement, mais quand ils rencontrent un îlot d'électrons, des trous thermiquement activés peuvent conduire par delà les îlots électroniques. Si σ_e et σ_h sont les conductivités moyennes des îlots d'électrons et de trous respectivement, alors les conductivités activées s'écrivent :

$$\sigma_e^a(V) = \sigma_e e^{\beta(E_F-V)} \qquad \sigma_h^a(V) = \sigma_h e^{\beta(V-E_F)} \tag{5.9}$$

où σ_e et σ_h sont les conductivités moyennes dépendantes de la densité d'états, données par la théorie de Boltzmann $\sigma_{e,h} = n_{e,h}e^2\langle\tau\rangle/m$ avec τ le temps de relaxation qui dépend des mécanismes de diffusion. Pour une valeur positive quelconque du niveau de Fermi E_F, on peut alors définir deux zones, zone 1 et zone 2 concernant les porteurs situés en dessous et en dessus du niveau de Fermi respectivement. Leurs conductivités respectives s'écrivent :

$$\sigma_1 = \frac{1}{p}\int_{-\infty}^{E_F}(\sigma_e + \sigma_h^a)P(V)dV \qquad \sigma_2 = \frac{1}{q}\int_{-\infty}^{E_F}(\sigma_e^a + \sigma_h)P(V)dV \tag{5.10}$$

avec $p = \int_{-\infty}^{E_F} P(V)dV$ la proportion d'espace occupée par la zone 1 et $q = 1-p$ celle occupée par la zone 2. Au point de neutralité de charge la proportion de l'espace occupée par les électrons et les trous est égale, $p = q = 1/2$ et $\sigma_1 = \sigma_2$. On en déduit la conductivité totale : $\sigma_t = \sqrt{\sigma_1\sigma_2} = \sigma_1$.

L'insert de la figure 5.7 montre l'évolution de la résistance du point de neutralité de charge en fonction de la température et l'ajustement théorique utilisant le modèle décrit ci-dessous avec pour paramètres ajustables la mobilité μ et la force du désordre s. Un bon accord avec les résultats expérimentaux est obtenu pour une mobilité de $\mu = 1150cm^2/V.s$ et une déviation standard du potentiel de désordre de $s = 58meV$. Ces valeurs sont plus importantes que celles reportées dans la littérature dans le cas du graphène bi-couche [Zou 2010, Deshpande 2009], mais cela est un résultat attendu avec l'augmentation du nombre de couches [M. 2009]. Si l'énergie du niveau de Fermi devient inférieure à $58meV$, le transport est perturbé par la présence des îlots électrons-trous.

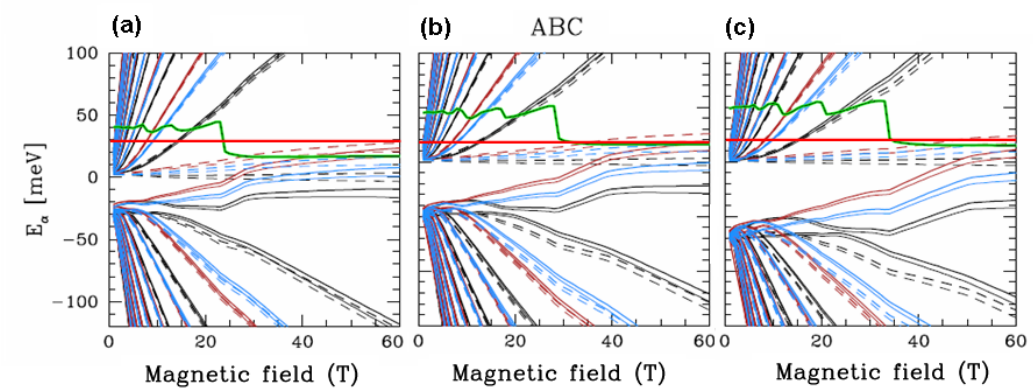

FIGURE 5.8 – Variation des niveaux de Landau pour graphène tri-couche et évolution de l'énergie de Fermi (courbe verte) en fonction du champ magnétique pour plusieurs valeurs de tension de grille : (a) $V_g = 30V$, (b) $V_g = 40V$, (c) $V_g = 50V$. Le début de la zone de coexistence électrons-trous est marquée par une ligne rouge continue.

5.1.3.2 Ancrage du niveau de Fermi

A mesure que le champ magnétique augmente, la densité d'états des niveaux de Landau augmente, l'énergie du niveau de Fermi décroît donc, comme on le voit sur la figure 5.5, pour accommoder les porteurs dans un nombre limité de niveaux. Pour les valeurs de $\nu < 6$ l'énergie du niveau de Fermi devient inférieure à s et pénètre donc dans la zone où le désordre est prépondérant, et ce, quelle que soit la valeur de tension de grille (voir figure 5.8). On peut supposer que comme dans le cas du graphène présenté dans le chapitre 4, une modification du ratio entre électrons et trous se produit alors. L'effet de la modification du rapport électrons/trous sera d'autant plus important que la densité de porteurs à champ nul est faible. Sur la figure 5.7 (a) on remarque que les courbes d'effet Hall correspondant aux tensions de grille $V_g = 10V$ et $V_g = 0V$ présentent, comme les courbes obtenues pour des tensions de grille supérieures, une quantification en plateaux aux facteurs de remplissages $\nu = 6, 10$, suivi d'une légère augmentation de la résistance comme cela est prévu théoriquement. Cette augmentation de la résistance est néanmoins suivie par une décroissance brutale de la résistance de Hall semblable à celle observée en [Poumirol 2010c] et révélatrice d'une modification du ratio électrons-trous par le champ magnétique.

5.1.4 Conclusion et perspectives

Nous reportons dans ce chapitre une des premières observations de l'effet Hall quantique dans le graphène tri-couche et ce pour plusieurs valeurs de tension de grille. La séquence des facteurs de remplissages associée à l'apparition des plateaux de la résistance de Hall est identique à celle du graphène excepté pour le plateau

$\nu = 2$ qui n'apparaît pas. Une analyse théorique montre que la prise en compte de la dissymétrie des couches introduites par l'application d'un potentiel de grille, induit une quantification en niveaux de Landau différente pour les deux types d'empilement existants. Cette différence permet la détermination sans ambiguité qu'un empilement de type A-B-C est à l'origine de l'effet Hall quantique observé expérimentalement dans l'échantillon. Nous avons aussi étudié l'effet de la présence d'îlots d'électrons et de trous sur les propriétés de conduction. La variation de la résistance longitudinale en fonction de la température, a permis de quantifier les effets des impuretés chargées dans l'échantillon. Les simulations de la variation énergétique du niveau de Fermi avec le champ magnétique permettent de mettre en évidence un phénomène de modification du ratio électrons-trous, se manifestant par une chute de la valeur de la résistance de Hall à faible valeur de facteur de remplissage.

Le graphène tri-couche est un système très complexe, où de nombreux paramètres comme le type d'empilement, l'application d'un champ électrique, ou encore le désordre peuvent avoir des conséquences drastiques sur les propriétés électroniques. Pour les systèmes composés de N couches de graphène, cette complexité est attendue croissante. Cependant leur étude expérimentale est très attendue afin de comprendre la transition progressive entre le graphène et le graphite.

5.2 Magnéto-transport dans le graphène multi-couche

Le graphite est un matériau tridimensionnel composé d'un nombre très important de couches de graphène faiblement couplées. Connues depuis très longtemps, ses propriétés électroniques ont été étudiées de manière intensive depuis les années 50 [Woollam 1970, Wallace 1947, Berlincourt 1955]. L'isolement plus récente d'une couche unique de graphène et la découverte des propriétés tout à fait particulières des porteurs de Dirac [Novoselov 2005a], ont permis d'apporter un nouvel éclairage sur les propriétés électroniques fondamentales du graphite [Orlita 2009, Luk'yanchuk 2004]. Les systèmes multi-couches composés d'un nombre fini de couches de graphène constituent des systèmes intermédiaires entre le graphène et le graphite. Ils montrent eux aussi des propriétés non usuelles, comme la possibilité d'ouvrir un gap dans leur structure de bande à l'aide d'un champ électrique perpendiculaire au plan [Aoki 2007]. Les propriétés électroniques au croisement entre le graphite (3D) et le graphène (2D) ont été étudiées théoriquement et montrent des propriétés dépendant du nombre total de couches et de leur type d'empilement [Min 2008b].

Dans ce chapitre, nous présentons la première mise en évidence de la quantification en niveaux de Landau dans un échantillon de graphène multi-couche. Nous démontrerons, à l'aide d'une étude de la phase des oscillations de la magnéto-résistance, que deux types de porteurs de charge, de phases de Berry différentes, sont présents dans l'échantillon. Malgré une efficacité de grille réduite due aux phénomènes d'écrantage dans le graphène multi-couche, nous avons pu étudier les variations de l'effet Hall quantique pour des densités de porteurs allant de 3 à $7.5 \times 10^{12} cm^{-2}/V.s$.

Nous mettons en évidence la transition d'un plateau de résistance correspondant à $R_{xy} = h/4e^2$, vers un plateau correspondant à $R_{xy} = h/2e^2$, à mesure que l'énergie du niveau de Fermi diminue. Cette transition ne peut être expliquée qu'en invoquant une levée de dégénérescence de vallée. La quantification en niveaux de Landau dans le graphène multi-couche est complexe et semble dépendre de manière non triviale de la tension de grille et du champ magnétique.

5.2.1 Caractérisation à champ nul

Suivant la procédure standard de fabrication, l'échantillon a été déposé sur un substrat Si/SiO_2. Identifié par contraste optique et imagerie AFM comme un échantillon de graphène multi-couche, il a ensuite été gravé en forme de croix (voir figure 5.9 (b)). Cette géométrie permet la mesure simultanée de la résistance longitudinale deux pointes et de l'effet Hall. La figure 5.9 (a) montre la variation de la résistance longitudinale deux pointes en fonction de la tension de grille pour différentes températures. Dans la gamme de tension de grille $-70V < V_g < +70V$, les courbes $G(V_g)$ montrent un profil monotone décroissant à mesure que la tension de grille augmente. Les courbes de conductance ne présentent pas de minimum. L'échantillon est donc fortement dopé et le point de neutralité de charge n'est pas accessible. Nous remarquerons que quelle que soit la température, le profil général des courbes $G(V_g)$, est identique : une conductance faiblement décroissante lorsque V_g augmente. Cela indique que dans la gamme de tension de grille l'influence des îlots d'électrons et de trous est faible. En effet comme cela a été évoqué dans la partie 5.1, la présence d'îlots électrons-trous dans un système multi-couche entraîne une variation de la résistance en fonction de la température.

Nous pouvons en conclure que le point de neutralité de charge se situe relativement loin de la zone accessible de tension de grille. Lorsque la température diminue la caractéristique $G(V_g)$ est progressivement déformée par l'apparition de fluctuations reproductibles. Ces fluctuations proviennent d'effet d'interférences quantiques et sont caractéristiques des systèmes mésoscopiques désordonnés. Les mesures d'effet Hall à faible champ magnétique indique que la densité de porteurs varie de $n = 7.3 \times 10^{12} cm^{-2}$ pour $V_g = -70V$ à $n = 3.8 \times 10^{12} cm^{-2}$ pour $V_g = +20V$. Une efficacité de grille de $C_g = 3.92 \times 10^{12}$ est déduite de la pente $\Delta n/\Delta V_g$. Comme attendu, cette valeur est bien inférieure à la valeur trouvée pour le graphène. Cela s'explique par le phénomène d'écrantage des différentes couches et par le couplage inter-couche. Par contre, on s'attend à ce que l'effet de l'écrantage soit fortement non linéaire et donc que la valeur C_g varie avec la tension de grille. Nous n'observons pas cette non linéarité, cela provient probablement du fait que l'échantillon est fortement dopé. En effet si la densité de porteurs induite par la modification de la tension de grille est faible devant la densité de porteurs induite par le dopage, l'effet de la non linéarité de l'écrantage sera faible. La mobilité déduite des courbes d'effet Hall quantique à bas champ est égale à $\mu \approx 400 cm^{-2}/V.s$.

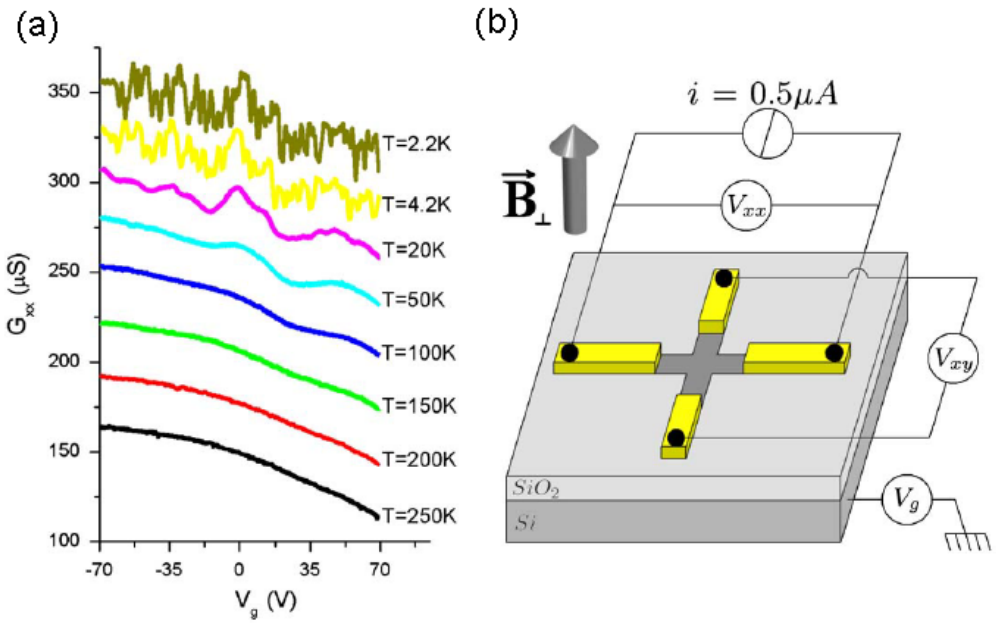

FIGURE 5.9 – (a) Conductance 2 pointes $G_{xx}(V_g)$ pour plusieurs températures. Pour plus de clarté les courbes ont été décalées vers le haut d'un pas de $30\mu S$ depuis la courbe de référence à T=250K. (b) Représentation schématique de la méthode de mesure de V_{xx} et V_{xy}.

5.2.2 Quantification en niveaux de Landau et phase de Berry

Dans un premier temps, considérons l'évolution de la résistance longitudinale en fonction du champ magnétique. La figure 5.10 montre les courbes de magnéto-résistance $\Delta R_{xx}(B)$ (c'est-à-dire qu'une magnéto-resistance monotone a été soustraite aux courbes expérimentales) pour plusieurs valeurs de tension de grille allant de $-70V$ à $+70V$. Pour $V_g = -70V$ on voit clairement apparaître au-delà de $20T$ des oscillations de la magnéto-résistance. La position des maxima de résistance varie avec la tension de grille. Ces oscillations de Shubnikov de Hass périodiques en $1/B$ sont dues aux passages des niveaux de Landau au travers du niveau de Fermi, leur présence démontre qu'au-delà de $20T$ la quantification en niveaux de Landau a lieu dans l'échantillon. Cette valeur de champ magnétique, au-delà de laquelle la quantification en orbite cyclotron peut avoir lieu, est en accord avec la mobilité déduite de l'effet Hall à faible champ magnétique.

Dans le graphène monocouche la structure de bande électronique à basse énergie est décrite par des particules chirales possédant une dispersion linéaire. Ces particules obéissent aux équations de Dirac et possèdent une phase de Berry de π [Novoselov 2005a, Zhang 2005]. Dans le graphène bi-couche les porteurs sont chi-

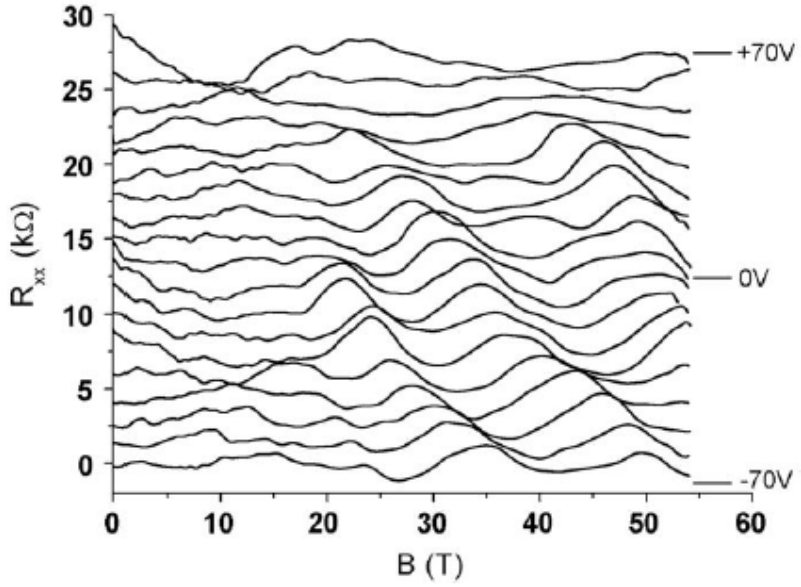

FIGURE 5.10 – Partie oscillatoire de $R_{xx}(B)$ après soustraction d'un fonction monotone. Chaque courbe a été décalée d'une valeur de $1.5k\Omega$ pour plus de clarté. La tension de grille varie par pas de 10V pour $-70V < V_g < -20V$ et $20V < V_g < 70V$ et par pas de 5V pour $-20V < V_g < +20V$.

raux, suivent une relation de dispersion quadratique et possèdent une phase de Berry de 2π. En présence d'un champ magnétique perpendiculaire au plan, la valeur de la phase de Berry détermine la phase des oscillations de Shubnikov de Hass [Luk'yanchuk 2004, Liyuan Zhang 2011]. Utilisant la formule de Ando-Lifshitz-Kosevich on peut écrire :

$$\Delta\sigma_{xx}(B) = -A(B,T)cos\left[2\pi\left(\frac{B_0}{B}\right) - \pi + \beta\right] \tag{5.11}$$

où β est la phase de Berry des porteurs. A est un terme d'amplitude non oscillant. Nous obtenons la phase β en traçant la valeur inverse du champ magnétique correspondant aux maxima de conductance en fonction de l'indice i du niveau de Landau correspondant. L'extrapolation linéaire des points expérimentaux en $B^{-1} = 0$ donne le facteur de phase. Si on ne connait pas de manière absolue l'indice correspondant à la première oscillation, on peut tout de même discriminer les particules dont la phase de Berry $\beta = N\pi$, s'écrit avec une valeur de N paire ou impaire. En effet quelle que soit la suite d'indice consécutifs choisie, la phase β prendra des valeurs entières dans le cas où N est impair, et des valeurs demi-entières dans le cas où N est pair. Une analyse fréquentielle a été effectuée sur la partie non monotone du signal $\Delta G_{xx}(B^{-1})$.

Le spectre de Fourier est montré en figure 5.11 (a) pour certaines valeurs de grille choisies. Malgré la faible résolution des spectres due au petit nombre d'oscillations,

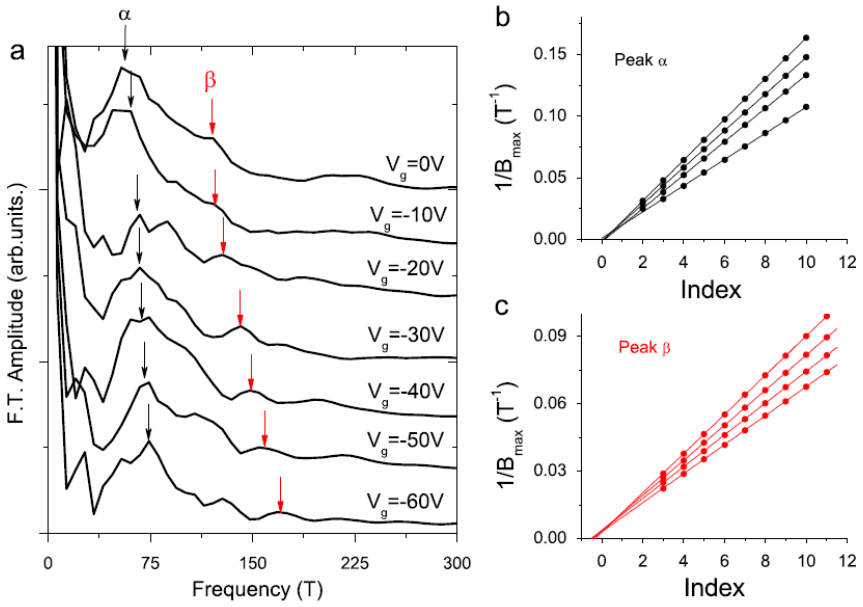

FIGURE 5.11 – (a) Intensité spectrale des oscillations de R_{xx}(B) pour certaines valeurs de grille choisies. (b) et (c) Extrapolation linéaire utilisé pour déterminer la phase des oscillations correspondant aux pics α et β respectivement.

deux pics sont clairement identifiables (nommé α et β sur la figure). Ces deux pics α et β sont reproductibles quel que soit le type de fenêtrage et les différentes fréquences d'échantillonnage utilisées. D'autre pics sont visibles sur les spectres de Fourier présentés dans cette figure, mais seuls les deux énoncés ci-dessus sont présents quelle que soit la méthode d'analyse et ce sur une large plage de tension de grille. Le pic α est relié à la période d'oscillation principale visible sur la figure 5.10. Le pic β d'amplitude plus faible est malgré tout visible pour toutes les tensions de grille. La présence de ces deux composantes fréquentielles indique la participation au transport de deux types de porteurs différents. Les figures 5.11 (b) et (c) présentent les résultats de l'analyse de la phase de ces deux pics. Les résultats montrent pour le pic α, une valeur $\beta = 0 \pm 0.1$ alors que pour le pic β la la phase de Berry est de $\beta = 1/2 \pm 0.1$ et ce quelle que soit la valeur de la tension de grille. On met alors en évidence dans le système la coexistence de porteurs possédant une phase de Berry $N\pi$ avec N impair et N pair. Les calculs numériques basés sur le modèle des liaisons fortes [Min 2008b, Min 2008a] prédisent que la structure de bande du graphène multi-couche est fortement dépendante du nombre de couches et de leur type d'empilement. Pour un nombre de couches égal à 5, le nombre de séquence d'empilement stable sans faute d'empilement est égal à 8. La coexistence de porteurs ayant une phase de Berry paire et impaire est prévue pour la majorité des structures de bandes calculées pour ces configurations.

5.2.3 Résistance de Hall

La figure 5.12 montre les courbes de résistance de Hall pour des tensions de grille allant de $-70V$ à $70V$. Pour $V_g = -70V$, la résistance de Hall croit linéairement jusqu'à l'apparition à environ $50T$ d'un plateau de résistance . Ce plateau est quantifié à une valeur de $R_{xy} \approx 6.4k\Omega$ correspondant à un facteur de remplissage $\nu = 4$. Il est présent sur toutes les courbes de magnéto-transport allant de $V_g = -70$

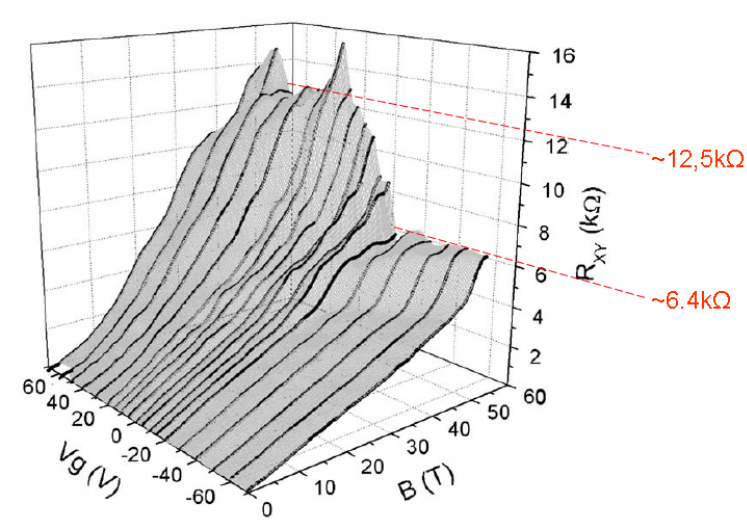

FIGURE 5.12 – Carte 3D de la résistance de Hall R_{xy} en fonction du champ magnétique et de la tension de grille (V_g variant de -70V à 70V.)

à $V_g = -20V$. Pour les valeurs de tensions de grille supérieures, la quantification disparaît et la valeur de la résistance de Hall dépasse $6.4k\Omega$ sans présenter de nouveaux plateaux. Pour les valeurs de $V_g > 20V$, un nouveau plateau de résistance semble se former, avec $R_{xy} \approx 13k\Omega$. Cette valeur de résistance correspond à un facteur de remplissage $\nu = 2$. L'apparition d'une quantification de la résistance de Hall pour des facteurs de remplissage de $\nu = 2$ et $\nu = 4$, indique que la dégénérescence des niveaux de Landau est de $g = 2$. Une dégénérescence des niveaux de Landau égale à 2, implique qu'une levée de dégénérescence a eu lieu. L'hypothèse la plus probable est que la dégénérescence de vallée ait été levée à cause de l'application d'une tension de grille. En effet, comme nous l'avons vu dans le cas du graphène tri-couche, la répartition des porteurs de charge entre les différentes couches, lors du dopage électrostatique, induit une brisure de symétrie, responsable de la levée de dégénérescence K, K'.

On remarque aussi que pour un échantillon composé de N couches la dégénérescence du niveau d'énergie nulle est attendue égale à $g = 4N$. Si aucune levée de dégénérescence n'a lieu, on s'attend à ce que le dernier plateau quantifié ait une valeur de résistance égale à $h/2Ne^2$. Or on observe des plateaux correspondant à des facteurs de remplissage de 2 et 4. Cela implique que le niveau de Landau $n = 0$,

qui dans le modèle des liaisons fortes Slonczewski-Weiss-McClure au premier voisin est insensible au champ magnétique, est en fait fortement modifié par l'application d'un champ magnétique.

Les études portant sur l'effet Hall quantique dans le graphite ont montré que la valeur des plateaux de résistance est fortement inférieure à h/e^2 avec des valeurs de l'ordre de l'Ohm [Luk'yanchuk 2004, Kopelevich 2009]. Ceci serait dû à une conduction en parallèle des différentes couches constitutives du graphite, très faiblement couplées les unes aux autres. Les valeurs de résistance des plateaux de Hall que nous reportons, semblent donc indiquer que les différents feuillets se comportent comme une seule entité définissant ainsi un système multi-couche. Pourtant l'efficacité de grille est réduite, mettant en évidence un phénomène d'écrantage. Ces comportements, qui pourraient paraître contradictoires, peuvent être expliqués, si l'on envisage que l'échantillon comporte une faute d'empilement. Dans ce cas, l'échantillon serait en fait composé de deux systèmes indépendants, l'un en dessous de l'autre. Le système inférieur écranterait en partie le champ électrique de grille, diminuant ainsi l'efficacité de grille dans le systeme superieur. Les plots de contact déposés à la surface de l'échantillon permettent alors de sonder les propriétés électroniques du seul système supérieur.

5.2.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons observé la quantification en niveaux de landau d'un échantillon de graphène multi-couche. Nous avons démontré la coexistence de deux types de porteurs ayant une phase de Berry différente. Nous avons aussi démontré la possibilité d'observer l'effet Hall quantique entier dans le graphène multi-couche et ce malgré la faible mobilité. La suite de facteur de remplissage observée dans l'effet Hall quantique semble indiquer que la dégénérescence de vallée est probablement levée pour certaines valeurs de tension de grille. Les faibles valeurs de facteur de remplissage pour lesquelles un plateau d'effet Hall a pu être observé, montre la complexité de la quantification en niveau de Landau dans le graphène multi-couche.

5.3 Conclusion et perspective

La connaissance des propriétés électroniques du graphène multi-couche est aujourd'hui bien moindre que celle du graphène mono ou bi-couche. De nombreuses études théoriques et expérimentales devront encore y être consacrées. Deux conditions semblent indispensables à une étude approfondie de ces systèmes : l'obtention de mobilité importante et le contrôle du champ électrique entre la couche inférieure et la couche supérieure. Déposer des échantillons sur du nitrure de Bore comme cela a déjà été fait en [Thiti Taychatanapat 2011] pour le graphène tri-couche permet d'obtenir des mobilités après recuit de l'ordre de $100000 cm^2/V.s$, c'est-à-dire 2 ordres de grandeur supérieure aux mobilités observées sur SiO_2. Le dépôt d'une grille supérieur en plus de la grille inférieure permet un meilleur contrôle du champ

électrique transverse et permettrait de sonder avec précision les propriétés électronique de ces systèmes.

Chapitre 6

Etude de la formation des états de bords dans les nanorubans de graphène

Sommaire

6.1 Introduction . . . 111
6.2 Effet Hall quantique dans les nanorubans de graphène . . . 112
6.2.1 Caractérisation à champ magnétique nul . . . 112
6.2.2 Quantification en niveaux de Landau anormaux . . . 116
6.2.3 Effet du désordre sur les canaux de bords . . . 125
6.2.4 Conclusion et perspectives . . . 127
6.3 Etude de la formation des états de bords dans les nanorubans de graphène ultra étroits . . . 128
6.3.1 Caractérisation à champ magnétique nul et détermination de la chiralité . . . 129
6.3.2 Formation des états de bords en présence de désordre . . . 131
6.3.3 Conclusion . . . 138
6.4 Conclusion et perspectives . . . 139

6.1 Introduction

Le graphène possède des propriétés de transport électronique tout à fait particulières qui font de lui un élément très prometteur du point de vu technologique. Il a pourtant été réalisé très tôt que le minimum de conductivité serait un obstacle majeur à la fabrication de transistor à base de graphène. La fabrication de nanorubans de graphène de géométrie quasi 1D permet d'ouvrir un gap d'énergie dans la structure de bande du graphène et donc d'obtenir un mode "off" compatible avec la fabrication de transistor. Comme nous l'avons vu dans la partie 1.3, le gap de confinement est inversement proportionnel à la largeur du ruban [Wakabayashi 1999], mais dépend fortement des conditions de bords du ruban ("armchair" ou zigzag). Comme cela a été évoqué dans la partie 2.2.4.2, le désordre a un effet important sur les propriétés électroniques des nanorubans de graphène. Une chute drastique de la mobilité est observée avec la réduction de la largeur des rubans [Wang 2008].

L'étude de la formation des états 1D dans les nanorubans de graphène ainsi que l'étude des effets du désordre sur les propriétés de transport de ces états sont d'un intérêt primordial.

6.2 Effet Hall quantique dans les nanorubans de graphène

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, en présence d'un champ magnétique perpendiculaire au plan de graphène, la structure de bande électronique des nanorubans de graphène évolue. Les sous bandes électroniques se transforment en sous bandes magnéto-électroniques à mesure que le confinement magnétique devient plus important que le confinement électronique. Il est étonnant de remarquer l'absence d'expérience mettant en évidence la quantification en niveaux de Landau dans les nanorubans de graphène de taille inférieure à $200nm$.

Ce paragraphe se centrera sur l'étude du transport en champ magnétique intense (jusqu'à 60T) de deux nanorubans de graphène lithographiés de 100 et 70 nanomètres de large. La magnéto-résistance mesurée à deux pointes montre une signature claire de la formation progressive des sous bandes magnéto-électroniques, révélée par des oscillations Shubnikov-de Hass anormales à faibles champs magnétiques. Nous montrerons aussi que la formation des niveaux de Landau entraîne une quantification de la résistance longitudinale. Cette quantification associée à une large variation de l'énergie du niveau de Fermi, met en évidence une levée de dégénérescence de vallée, permettant ainsi de déterminer sans équivoque la géométrie des bords de l'échantillon. Des simulations de l'effet du désordre sur l'extension spatiale des courants de bords ont été effectuées pour comprendre la dégradation de la quantification de la conductance dans le régime de Hall.

Les échantillons ainsi que les mesures de magnéto-transport présentées dans ce chapitre ont été effectués par Rebeca Ribeiro, thésarde au laboratoire des champs magnétique intense à Toulouse. Les simulations quantiques : calcul de structures de bandes, calcul de l'extension spatiale des niveaux de bords ainsi que l'influence du désordre sur la distribution des courants ont été effectués par le Dr Alessandro Cresti du LETI, MINATEC, CEA à Grenoble. J'ai, pour ma part, participé à la conception des échantillons et contribué activement à l'analyse globale des résultats, incluant les simulation du régime Fabry-Pérot ainsi que de la magnéto-conductance à deux contacts).

6.2.1 Caractérisation à champ magnétique nul

Les échantillons sont conçus selon la méthode exposée dans la partie 3.1.1.5. Deux nanorubans appelés A et B de largeur $W = 100nm$, et $W = 70nm$, et de longueurs respectives $L = 350nm$ et $L = 750nm$ seront étudiés ici (voir insert figure 6.1). Après un recuit thermique, sous vide ($T = 420K$, $P = 10^{-6}mbar$, $t = 24h$), pour dessorber les contaminants, la conductance en fonction de la tension de grille

$G(V_g)$ présente la caractéristique ambipolaire classique du graphène, avec un point de neutralité de charge proche de zéro volt, $V_{CNP} = 2.5V$ et $-0.5V$ respectivement pour A et B (voir figure 6.1 (a)). Ces faibles valeurs de tension de grille associées au point de neutralité de charge soulignent la quantité de dopants très faible présents sur les échantillons. En négligeant la contribution des interférences quantiques sur la conductance, une estimation du libre parcours moyen peut être faite à partir de la caractéristique $G(V_g)$. En utilisant l'équation 2.19 et en prenant en compte les résistances de contacts on peut écrire :

$$G_C = \frac{2e^2}{h} N \frac{l_e}{l_e(1 + R_C N) + L} \tag{6.1}$$

avec l_e le libre parcours élastique moyen, R_C la résistance de contact en unité de

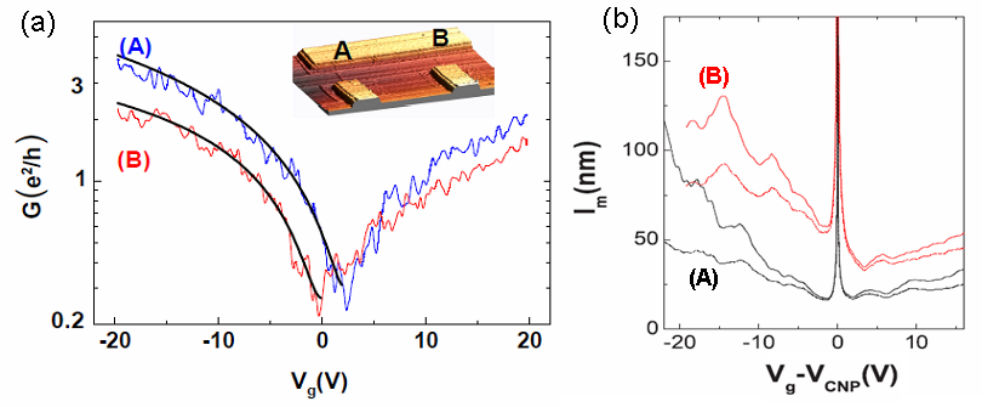

FIGURE 6.1 – (a) Conductance $G(V_g)$ mesurée à 4.2K pour les échantillons A ($L = 350nm$, $W = 100nm$) (ligne continue bleue) et B ($L = 750nm$, $W = 70nm$) (ligne continue rouge). La ligne continue noire représente l'ajustement théorique utilisant le modèle présenté au chapitre 4 permettant de déduire la mobilité par effet de champ. Insert : Image AFM des échantillons. (b) Estimation du libre parcours moyen l_e déduite à partir de la mesure de conductance $G(V_g)$ pour une résistance de contact variant de $1K\Omega$ (ligne du bas) à $4K\Omega$ (ligne du haut).

$h/2e^2$ et N le nombre de canaux de conduction actifs. Proche du point de neutralité de charge, N est défini pour les rubans larges comme :

$$N(E) \sim \frac{1}{\hbar v_F} |E - E_F| \tag{6.2}$$

ce qui donne : $N \approx 1.11 \times 10^{-3} E(meV) \times W(nm)$. La résistance de contact a été estimée entre 1 et $4K\Omega$ par loi d'échelle suivant [Wang 2008]. Nous déduisons alors le libre parcours moyen en fonction de la tension de grille (la figure 6.1 (b)). L'efficacité de grille est calculée en prenant en compte la courbure des lignes de champs électrique due à la taille réduite de l'échantillon (calculé en utilisant http ://www.fasteldsolvers.com), le nombre de porteurs est alors estimé à

$n(cm^{-1}) \approx 1.5 \times 10^{15}(V_g(V) - V_{CNP})$. Une estimation de la variation du niveau de Fermi en fonction de la tension de grille peut donc être déduite de la densité d'états du graphène $E_F(meV) = \hbar v_F\sqrt{\pi n} \approx 40 \times \sqrt{V_g(V) - V_{CNP}}$. Comme nous le montre la figure 6.1 (b) à $V_g = -20V$, le libre parcours moyen atteint des valeurs de $l_e = 50 - 120nm$ ($l_e = 80 - 120nm$) pour l'échantillon A (B). Les valeurs de l_e sont donc dans les deux cas proches de la largeur de l'échantillon et dans un rapport de 2 à 7 comparé à la longueur de l'échantillon. Ces valeurs indiquent que le régime de transport est faiblement diffusif. Les mobilités déduites des courbes $G(V_G)$ confirment la bonne qualité des échantillons $\mu_{A(B)} = 1200(3500)cm^2/(Vs)$ [Kim 2009] (voir traits pleins noirs figure 6.1 (a)).

Ce régime faiblement diffusif est aussi confirmé par la présence à basse température ($2K$) de modulations Fabry-Pérot de la conductance de l'échantillon A (voir figure 6.2). Dans le régime Fabry-Pérot, la conductance est contrôlée par le coefficient de transmission T_n, des modes de conduction autorisés, définis par les conditions de bords aux contacts [Du 2008]

$$T_n = \left| \frac{k_n}{k_n cos(k_n L) + i\frac{\mu}{\hbar v_F} sin(k_n L)} \right|^2 \tag{6.3}$$

avec

$$k_n = \sqrt{\left(\frac{\mu}{\hbar v_F}\right)^2 - q_n^2}; \quad q_n = \frac{1}{W}\pi(n + 1/2) \tag{6.4}$$

où q_n est le vecteur d'onde transverse quantifiée par le confinement latéral, μ est l'énergie de Fermi et k_n le vecteur d'onde longitudinale. La figure 6.2 (c) montre la conductance différentielle en fonction de l'énergie du niveau de Fermi pour une valeur de V_{biais} nulle, calculée à partir de :

$$G = \frac{4e^2}{h}\sum_n T_n \tag{6.5}$$

Lorsque l'énergie de Fermi augmente, plusieurs bandes 1D peuvent être impliquées dans le transport donnant lieu à un spectre Fabry-Pérot multimode non trivial.

En effet bien que la probabilité de transmission d'une sous bande montre des oscillations en fonction de l'énergie, qui deviennent périodiques quand $k_n >> q_n$ avec $k_n = \mu/\hbar v_F$ (voir chapitre 1), la présence de plusieurs sous bandes donne lieu à des battements de la conductance qui se développent principalement en bas de chacune. Sur la figure 6.2 (c) l'énergie à laquelle les deux premières sous bandes rentrent dans le processus de conduction est indiquée par une flèche. Les oscillations de conductance ne présentent un caractère quasi périodique que sur des plages énergétiques réduites (voir insert figure 6.2). La figure 6.2 (b) montre la conductance en régime Fabry-Pérot simulée à partir de l'équation 6.5, en considérant une taille de cavité égale à celle du ruban et en faisant varier les tensions de grille et de polarisation. Le profil en losange calculé théoriquement a été superposé aux données expérimentales, un bon accord est obtenu confirmant un régime Fabry-Pérot multimodes dans l'échantillon. On peut noter les oscillations rapides autour de la tension

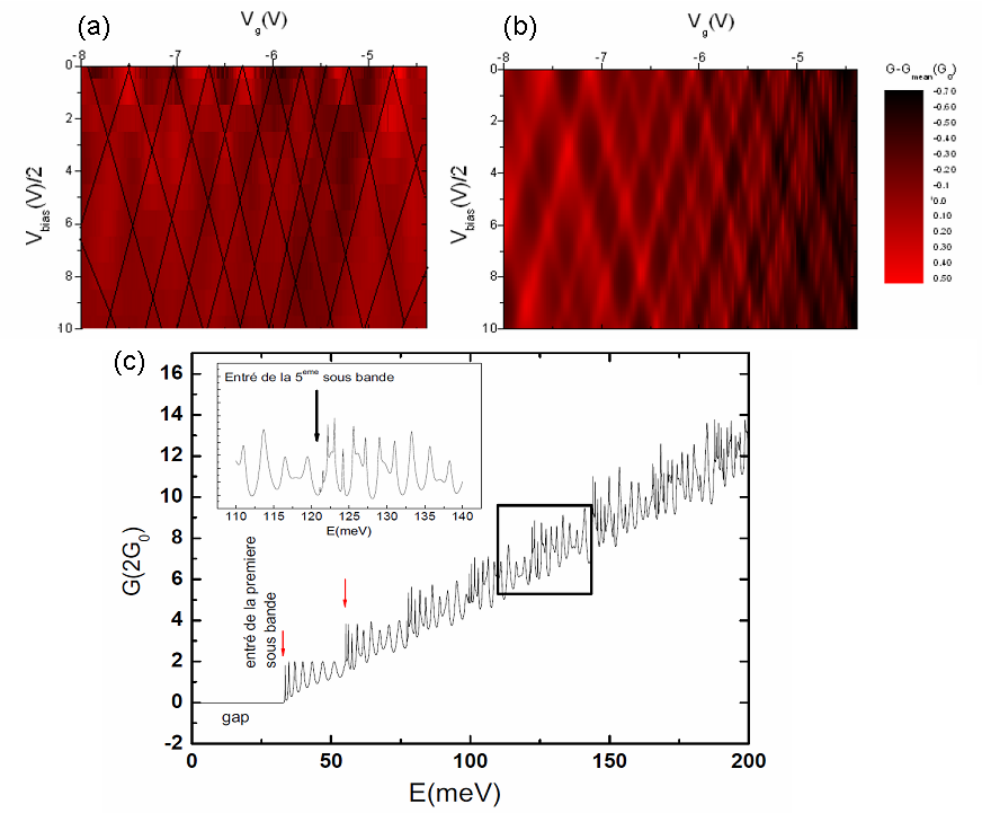

FIGURE 6.2 – (a) Carte 2D de la conductance différentielle pour l'échantillon A en fonction de V_G et V_{biais} mesurée à 2K. Les lignes noires superposées sont les maxima de la conductance, déduits de la simulation Fabry-Pérot multi-mode présentée en (b). Le calcul considère une taille de cavité $L = 350nm$ et $W = 100nm$. (c) Simulation de la conductance en fonction de l'énergie du niveau de Fermi μ pour $V_{biais} = 0$ et $T = 0K$. Les flèches rouges indiquent l'énergie pour laquelle la 1^{er} et la 2^{eme} sous bande commencent à participer au processus de conduction. Insert : Zoom sur la partie oscillatoire de la conductance simulée sur la gamme d'énergie $110 - 140meV$ correspondant à la fenêtre de tension de grille présentée en (a) et (b). La flèche noire indique l'entrée de la 5^{me} sous bande. On remarque que plus le nombre de bandes impliquées dans le processus de conduction est élevé, plus le profil des oscillations est complexe, avec l'apparition de battements.

de grille $V_g = -5.5V$, celles-ci sont dues à l'entrée du cinquième mode transverse (voir insert figure 6.2 (c)). Les oscillations deviennent ensuite quasi périodiques vers $V_g = -7/-8V$ sous l'effet de la contribution de plus en plus importante de cette cinquième bande à mesure que l'énergie de Fermi augmente. Dans ces gammes de tension de grille, l'énergie séparant deux résonances consécutives est d'environ $6mV$, ce qui est en très bon accord avec la valeur nominale $\hbar v_F/2L \approx 5.9meV$ (voir partie 2.1.4.1).

6.2.2 Quantification en niveaux de Landau anormaux

6.2.2.1 Oscillations de Shubnikov-de Hass et signature du confinement 1D

Pour un nanoruban, la résistance mesurée à deux pointes lors de l'application d'un champ magnétique perpendiculaire a un profil complexe directement lié au rapport de forme de l'échantillon. Les courbes de magnéto-résistance montrent à la fois des caractéristiques liées à l'effet Hall, c'est à dire des plateaux de résistance pour des facteurs de remplissage $\nu(n_e h/eB) = 4(n + 1/2)$ et des caractéristiques liées à la résistance longitudinale pour les valeurs de facteurs de remplissage intermédiaires [Abanin 2008]. Pour des rubans allongés, un plateau de résistance marquant le passage du niveau de Fermi entre deux niveaux de Landau consécutifs, sera précédé et suivi d'un maximum de résistance (voir figures 6.3 et 6.6). La figure 6.3 montre

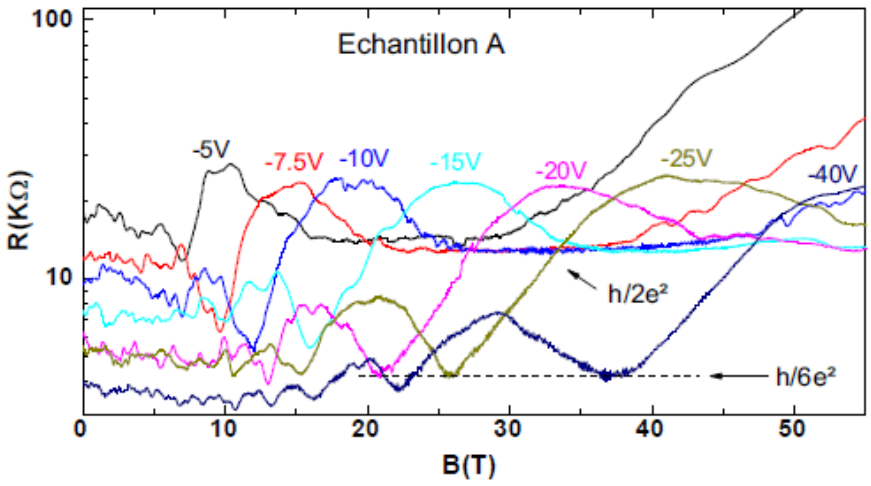

FIGURE 6.3 – Magnéto-résistance mesurée à deux pointes et 4.2K sur l'échantillon A pour différentes valeurs de tension de grille. On remarque la quantification de la résistance aux valeurs $h/2e^2$ et $h/2e^2$.

la magnéto-résistance mesurée à deux pointes jusqu'à $55T$ pour le ruban A, à plusieurs valeurs de tension de grille. La résistance oscille avec le champ magnétique, des minima quantifiés à $(h/6e^2)$ ou des plateaux de résistance $(h/2e^2)$ sont clairement visibles et persistent pour plusieurs valeurs de tension de grille. La magnéto-résistance tracée en fonction de $1/B$ montre les oscillations périodiques de Shubnikov-de Hass attendues dans le cas d'un gaz d'électron 2D (voir figure 6.4). A faibles champs magnétiques, une déviation de la périodicité en $1/B$ est observée. En effet, pour les grandes valeurs de N (avec N le nombres de niveaux occupés) , le confinement électronique devient prépondérant sur le confinement magnétique quand le rayon cyclotron $l_c = k_F l_B^2$ devient plus grand que $W/2$. Deux différentes approches ont

été utilisées pour simuler l'impact du confinement sur les oscillations Shubnikov-de Hass. La première est basée sur les règles de quantification semi classique de Bohr-Sommerfeld [Beenakker 1991] adaptées aux porteurs sans masse de Dirac dans un puits de potentiel carré. Le nombre de sous bandes occupées $N = N(1/B)$ s'écrit alors :

$$N = Int\left(\frac{\hbar\beta V_g}{eB}\right)\left[arcsin\left(\frac{W}{2l_c}\right) + \frac{W}{2l_c}\left(1 - \left(\frac{W}{2l_c}\right)^2\right)^{1/2}\right] \quad \text{Si} \quad l_c > W/2 \quad (6.6)$$

et

$$N = Int\left(\frac{\hbar\beta V_g}{eB}\right) \quad \text{Si} \quad l_c < W/2 \quad (6.7)$$

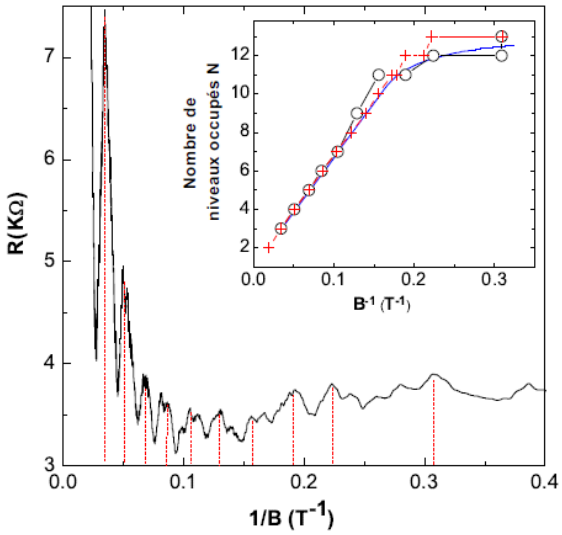

FIGURE 6.4 – Magnéto-résistance de l'échantillon A à $V_g = -40V$ ($T = 4.2K$) tracée en fonction de $1/B$. Les lignes verticales indiquent les maxima des oscillations de Shubnikov-de Hass. Insert : les cercles représentent l'indice du niveau de Landau en fonction de $1/B_i$ déduit des données expérimentales (figure principale). La courbe bleue est la variation $N(1/B)$ calculée avec l'approche semi-classique (équations 6.6 et 6.7). Les croix rouges sont les $(N, 1/B_i)$ déduits directement du calcul de la structure de bande.

La linéarité et la déviation de la linéarité au-delà de $N \sim 9$ sont bien reproduites pour un couplage électrostatique $\beta = 1.5 \times 10^{15} m^{-2}$ et une largeur $W = 90nm$, qui sont en accord avec les valeurs nominales de l'échantillon (courbe bleue insert figure 6.4). La deuxième approche utilise la structure de bande calculée avec la méthode des liaisons fortes pour un nanoruban de type "armchair" dont la largeur est constituée de $N = 814$ dimères de carbone ($814a - GNR$). En considérant

l'intersection du niveau de Fermi avec chaque sous bande, on déduit la position des maxima des oscillations (croix rouge insert figure 6.4) en très bon accord avec les résultats expérimentaux.

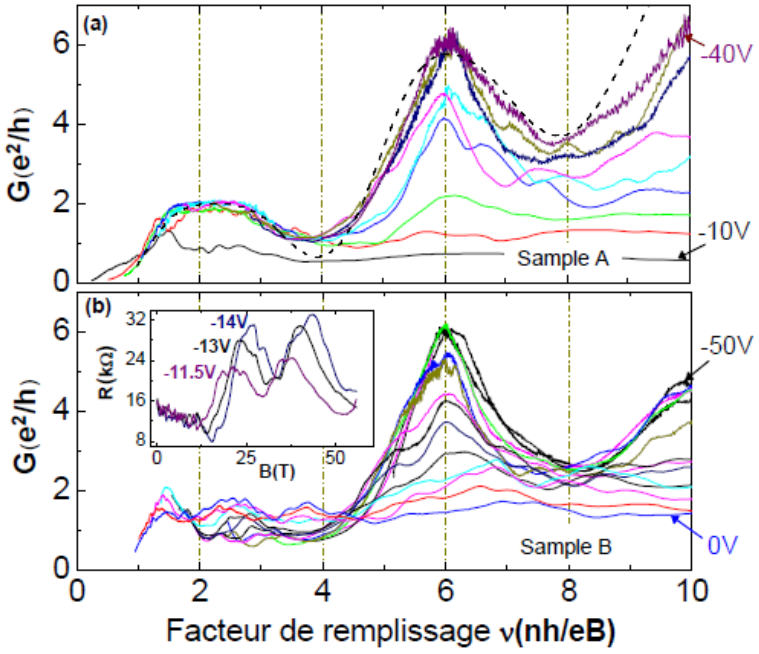

FIGURE 6.5 – (a) Magnéto-conductance expérimentale pour l'échantillon A en fonction du facteur de remplissage, pour V_g allant de $-10V$ (courbe du bas) à $-40V$ (courbe du haut) par pas de 5V. La courbe pointillée est la conductance simulée, utilisant la méthode de calcul exposée dans la partie 6.2.2.2, en prenant en compte un facteur de forme $\xi = 4.1$ (à comparer avec $\xi = 3.5$ expérimentalement) . (b) Magnéto-conductance expérimentale pour l'échantillon B en fonction du facteur de remplissage, pour V_g allant de $0V$ (courbe du bas) à $-50V$ (courbe du haut) par pas de 5V. En insert sont montrées trois courbes de magnéto-résistance représentatives, sur lesquelles on peut voir l'apparition d'un double pic de résistance après le passage du minimum de résistance correspondant à $\nu = 6$.

6.2.2.2 Facteur de forme et magnéto-conductance 2 pointes

La figure 6.5 montre la conductance en fonction du facteur de remplissage pour les deux rubans. Les courbes sont déduites des courbes de magnétorésistance expérimentales, c'est-à-dire qu'à densité de charge constante, le champ magnétique est balayé de 0 à $55T$. Cela signifie que l'élargissement des niveaux de Landau n'est pas constant en fonction du facteur de remplissage, mais diminue quand ν diminue.

Pour l'échantillon A (figure 6.5 (a)) on voit clairement un plateau de conductance de valeur $2G_0$ apparaître pour $\nu = 2$, ce plateau est une preuve directe que l'échantillon est du graphène. Les valeurs de facteur de remplissage supérieures, ne sont plus marquées par des plateaux mais par des maxima de conductance du fait de l'élargissement supérieur des niveaux de Landau.

Le profil de la magnéto-conductance mesuré à 2 pointes dans le régime d'effet Hall quantique dépend du facteur de forme de l'échantillon. Une méthode de calcul de la conductance a été développée par Abanin et. al. [Williams 2009, Abanin 2008]. Cette méthode consiste, dans un premier temps, à déterminer les valeurs de $\sigma_{xx}(\nu)$ et $\sigma_{xy}(\nu)$ à l'aide d'une approche du milieu effectif. La contribution d'un niveau de Landau n à la conductivité longitudinale ($\delta_n\sigma_{xx}$) et la conductivité de Hall ($\delta_n\sigma_{xy}$) s'écrit :

$$\delta_n\sigma_{xx}^2 + (\delta_n\sigma_{xy} - \sigma_{xy,n}^{(0)})(\delta_n\sigma_{xy} - \sigma_{xy,n'}^{(0)}) = 0 \tag{6.8}$$

où $\sigma_{xy,n}^{(0)} = \nu_n e^2/h$ et $\sigma_{xy,n'}^{(0)} = \nu_{n'} e^2/h$ sont les conductivités quantifiées de Hall, avec n et n' des entiers consécutifs. La conductivité longitudinale montre des pics centrés sur les niveaux de Landau qui sont modélisés par une Gaussienne

$$\delta_n\sigma_{xx}(\nu) = \frac{1}{2}C_n e^{\lambda[\nu - 1/2(\nu_n+\nu_{n'})]^2} \tag{6.9}$$

où λ décrit l'élargissement des niveaux de Landau. On écrit ensuite (voir figure insert 6.6 (b)) :

$$\sigma_{xx}(\nu) = \sum_n \delta_n\sigma_{xx}(\nu), \quad \sigma_{xy}(\nu) = \sum_n \delta_n\sigma_{xy}(\nu) \tag{6.10}$$

Les distributions de courant et de champ électrique local sont alors calculées en tout point de l'échantillon. Par intégration, la différence de tension V entre drain et source et le courant total I, circulant d'un contact à l'autre, sont calculés. La figure 6.6 (a) montre la conductance calculée pour plusieurs facteurs de formes. Pour un échantillon carré, on retrouve bien une magnéto-conductance qui peut être décrite par la formule $G = \sqrt{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2}$. Pour les échantillons de facteurs de forme $\xi = L/W$ différents de 1, la forme de la transition plateau-plateau dépend fortement de la valeur de ξ. Pour $\xi < 1$ ($\xi > 1$), la conductance va être marquée par un maximum (minimum) de conductance entre deux plateaux consécutifs, ce maximum (minimum) sera d'autant plus prononcé que L est petit (grand) devant W. La figure 6.6 (b) illustre l'effet de l'élargissement des niveaux de Landau. A facteur de forme constant, le recouvrement de deux niveaux de Landau consécutifs détruit la quantification de la conductance dans le régime d'effet Hall quantique. Ce formalisme permet de reproduire de manière satisfaisante les résultats expérimentaux pour un facteur de forme $\xi_{fit} = 4.1$ (à comparer à $\xi_{exp} = 3.5$), et un élargissement $\Delta\nu \approx 0.84$ et 1.05 pour $\nu = 2$ et 6 respectivement (voir figure 6.5). Malgré l'élargissement plus important à $\nu = 6$, le maximum de conductance a bien la valeur de conductance attendue $6G_0$.

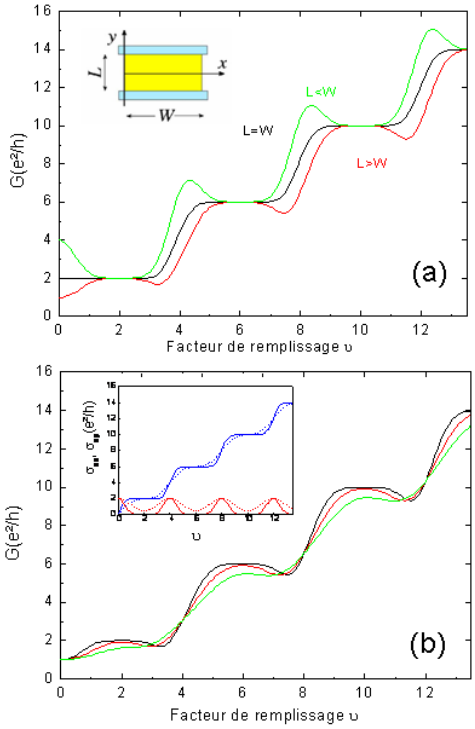

FIGURE 6.6 – (a) Conductance deux pointes pour des échantillons de graphène avec pour rapport de forme $\xi = L/W = 2, 1, 0.5$ (de bas en haut), avec l'élargissement des niveaux de Landau $\lambda = 2$. (b) Conductance à deux pointes pour différentes valeurs de $\lambda = 2$ (courbe noire), $\lambda = 1$ (courbe rouge) et, $\lambda = 0.5$ (courbe verte). Le facteur de forme est identique $\xi = L/W = 2$ pour toutes les courbes. Insert : Conductivité de Hall (courbes bleues) et longitudinale (courbes rouges) pour 2 valeurs de λ : $\lambda = 2$ (courbe continue) et $\lambda = 0.5$ (courbe pointillé).

Remarques importantes :

En dépit du bon accord qualitatif obtenu avec les considérations précédentes, certains points expérimentaux restent inexpliqués et demandent une analyse plus poussée : (i) Le maximum de résistance qui précède l'apparition du plateau à $h/2e^2$ pour l'échantillon A, (dû au passage du niveau $n = 1$ à travers le niveau de Fermi) s'élargit sensiblement pour les courbes de magnéto-résistance effectuées à grandes valeurs de V_g (voir figure 6.3). (ii) De manière surprenante, l'échantillon B qui est 30% plus étroit que l'échantillon A, ne présente pas de plateau de conductance à $2G_0$, même si la quantification à $6G_0$ est conservée pour $\nu = 6$. La disparition de ce plateau à $2G_0$ s'accompagne d'un dédoublement du maximum de résistance précédant l'apparition du plateau attendu à $\nu = 2$ (voir insert figure 6.5 pour trois tensions de grille différentes). (iii) Les deux échantillons montrent une suppression progressive de la conductance à $6G_0$ pour le facteur de remplissage $\nu = 6$. Ces trois

caractéristiques expérimentales, associées aux oscillations de SdH non périodique en 1/B definissent la mise en évidence d'un spectre de Landau que nous qualifirons "d'anormal" car différent de celui du graphène 2D. L'analyse ci -dessous permettra de réveler la contribution du confinement électronique sur ce spectre.

6.2.2.3 Encrage du niveau de Fermi et levée de dégénérescence

Pour comprendre l'origine physique de ces trois phénomènes, les structures de bandes sous champ magnétique de deux rubans "armchair" composés de 814 et 571 dimères de large ont été calculées par A. Cresti (a-814GNR et a-571GNR correspondant respectivement à $W \sim 100nm$ et $W \sim 70nm$). Du fait de la largeur importante des rubans, les résultats obtenus ne dépendent pas du nombre exact de dimères. Pour déterminer la structure de bande du nanoruban "armchair", le modèle des liaisons fortes avec une orbitale par atome a été adopté. L'énergie des sites est mise à zéro dans tout le système, le paramètre de saut est $\gamma_0 = -2.7eV$ pour les atomes de coeurs et 12% plus important au bord pour rendre compte de la réduction de la distance C-C [Son 2006].

La présence du champ magnétique est prise en compte par le facteur de phase de Pierls (voir chapitre 1.1.3). La figure 6.7 (a) et (b) montrent la structure de bande pour le ruban $a-571GNR$ à $0T$ et $50T$, respectivement. On remarque qu'à champ magnétique nul la dégénérescence de vallée est levée par le confinement électronique. A $50T$, les niveaux de Landau se forment en centre de zone et la dégénérescence des points K, K' est rétablie (voir chap 1.3.3). Lorsque k augmente, ces niveaux se séparent en deux bandes non dégénérées dont une a une énergie croissante et l'autre commence par diminuer puis augmente à l'approche du bord de zone (voir chap 1.3.3). Sur les figures 6.8 et 6.9, les lignes noires (continues et pointillé) indiquent l'énergie du minimum de chaque bande en fonction du champ magnétique. Au-delà de $10T$, les minima commencent à varier en $\sqrt{B}$. Il est intéressant de noter que la levée de dégénérescence de vallée induite par le confinement est alors amplifiée par la présence du champ magnétique.

Pour relier les oscillations quantiques à la structure de bande, nous déterminons la position en champ magnétique des intersections du niveau de Fermi avec les magnéto-sous bandes, que nous comparons avec la position des maxima de la magnéto-résistance. Si on fait l'hypothèse que le niveau de Fermi est constant sous champ magnétique (courbe bleue pointillé sur les figures 6.8)), un bon accord entre les positions des pics de résistance (courbe rouge) et la dépopulation des sous bandes est obtenu pour les grands nombres quantiques (rencontrés à faibles champs magnétiques). L'insert de la figure 6.8 montre comment les croix rouges de la figure 6.4 ont été obtenues. Quand le champ magnétique augmente, le nombre quantique des niveaux qui se dépeuplent diminue et un écart de plus en plus important apparaît entre les positions des maxima (marquées par des traits verticaux pointillés) et le passage des niveaux au travers du niveau de Fermi. En dessous de $n = 2$ cette différence peut atteindre plusieurs Tesla (voir figure 6.8). Cet écart provient du fait que dans un gaz 2D, l'énergie du niveau de Fermi n'est pas constante mais varie pour

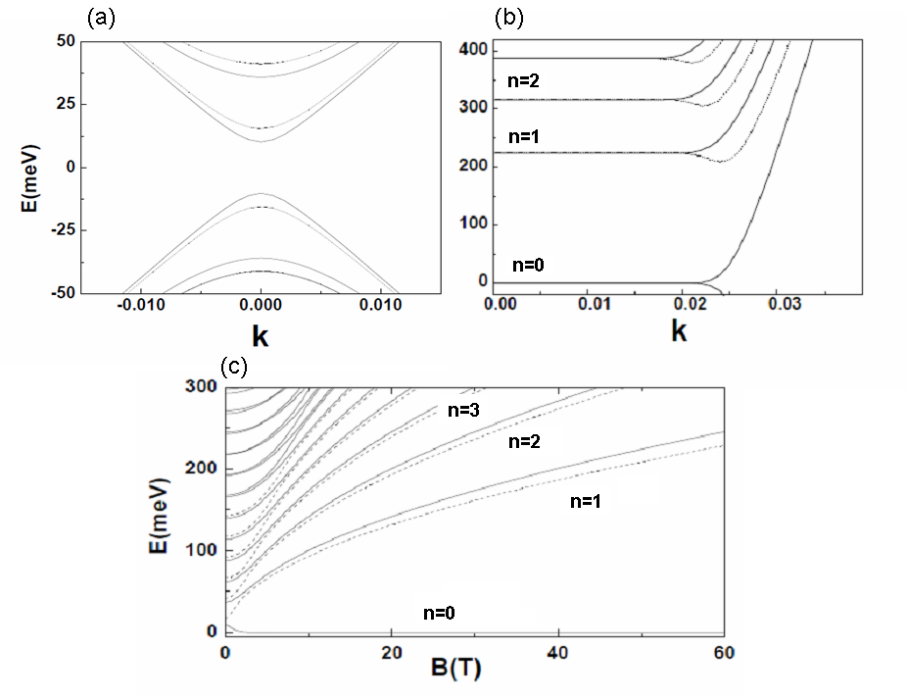

FIGURE 6.7 – (a) et (b) Structure de bande pour un $571-aGNR$ autour du point de neutralité de charge à 0 et $50T$, respectivement. Les courbes noires continues (pointillés) représentent les bandes 1D liées au point K (K'). On remarque que la dégénérescence de vallée est déjà levée à champ magnétique nul. L'application d'un champ magnétique entraîne la formation des niveaux de Landau en centre de zone. En bords de zone on observe l'apparition d'un deuxième minimum local dans la structure de bande pour les k non nuls. (c) Sous bandes magnéto-électroniques pour un nanoruban $571-aGNR$ où le trait noir continu (pointillé) représente la variation énergétique du minimum de la structure de bande en $k=0$ ($k\neq 0$) en fonction du champ magnétique.

accommoder le nombre de porteurs dans les sous bandes disponibles, dont le nombre dépend du champ magnétique. Pour déterminer la variation de l'énergie du niveau de Fermi sous champ magnétique, il faut calculer les densités d'états de chaque sous bande et leur variation avec le champ magnétique. En utilisant la relation reliant l'énergie de Fermi à la tension de grille appliquée, nous déduisons $E_F(V_g, B)$. Dans le système expérimental, à V_g constant, l'énergie de Fermi varie donc avec B pour accommoder les charges dans les états accessibles et garder la densité de charge constante. Cela implique que le niveau de Fermi reste encré en bas des niveaux de Landau sur de larges gammes de champ magnétique, et plus particulièrement pour les niveaux correspondant à de faibles nombres quantiques, pour lesquels la densité d'états est plus forte (les bandes plates sont plus étendues). Le niveau de Fermi (ligne bleue continue) dans la figure 6.8 montre de fortes oscillations et de

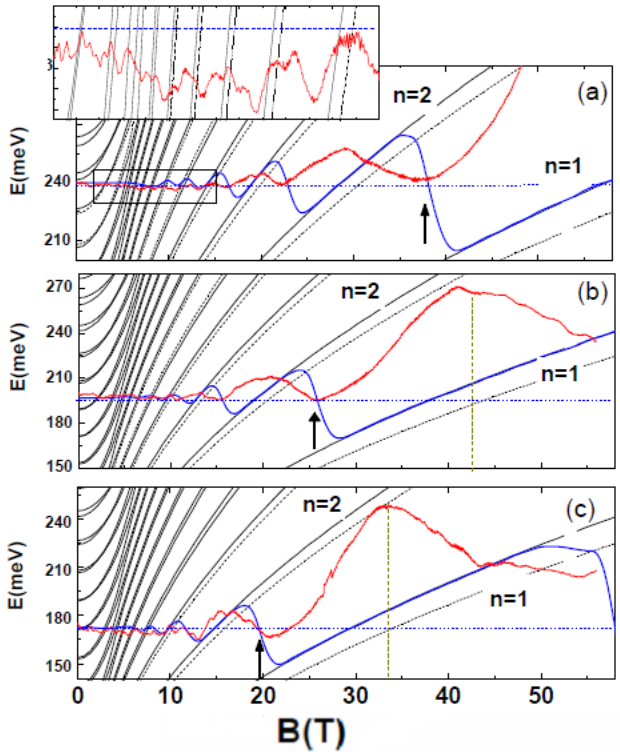

FIGURE 6.8 – Sous bandes magnéto-électroniques en fonction du champ magnétique pour un nanoruban $814a - GNR$. Les courbes noires continues (pointillées) représentent l'évolution en champ magnétique du minimum de la structure de bande situé en $k = 0$ ($k \neq 0$). Les oscillations quantiques de la magnéto-résistance (lignes rouges en unité arbitraire) sont comparées directement aux intersections entre le niveau de Fermi et les différentes sous bandes, pour trois tensions de grille différentes : (a) $V_g = -40V$, (b) $V_g = -25V$, (c) $V_g = -20V$. La ligne bleue pointillée signale la position du niveau de Fermi en considérant que sa position est insensible au champ magnétique. La ligne bleue continue indique l'énergie du niveau de Fermi, calculée de manière auto-cohérente en prenant en compte l'évolution de la densité d'états de chaque sous bande avec le champ magnétique. Insert : Zoom sur la magnéto-résistance de 0 à $20T$ pour $V_g = -40V$. On voit que la position des maxima de la magnéto-résistance est en bon accord avec les intersections du niveau de Fermi (considéré constant à faible champ magnétique) et les niveaux de Landau en formation.

longues plages de champ magnétique ΔB_{encr} durant lesquelles il reste encré aux niveaux de Landau. Du fait de cet accrochage du niveau de Fermi, les maxima de résistances sont décalés vers les forts champs magnétiques. On remarque de plus que la largeur des maxima de résistances est comparable à ΔB_{encr}. Quand la tension de grille s'éloigne de V_{CNP}, la valeur du champ magnétique pour lequel le niveau de

Landau $n = 1$ va croiser l'énergie de Fermi est plus importante, la densité d'état de ce niveau est alors plus forte, l'ancrage du niveau de Fermi ΔB_{encr} sera donc plus grand, entraînant un élargissement du maximum de résistance avec V_g.

Nous avons préalablement fait remarquer l'absence, pour l'échantillon B, d'un plateau bien défini à $2G_0$. Cette disparition s'accompagne d'un dédoublement du maximum de résistance et trouve, en considérant les simulations exposées ci-dessous, une explication naturelle (voir figure 6.9). En effet le second maximum de résistance correspond dans le niveau $n = 1$, au passage du niveau de Fermi au travers du deuxième minimum d'énergie pour les k non nuls (ligne noire pointillée). Cette hypothèse est confirmée par le fait que quelque soit la valeur de la tension de grille, la position du double maximum en fonction du facteur de remplissage est identique pour toutes les courbes expérimentales, (indépendant de B et de V_g). Cela démontre de manière claire que ce phénomène est lié à l'évolution de la structure de bande sous champ magnétique. Nous observons donc la levée de dégénérescence de vallée liée au confinement "armchair" des atomes de carbone aux bords de l'échantillon. En effet la dégénérescence de vallée n'est pas levée par un confinement de type

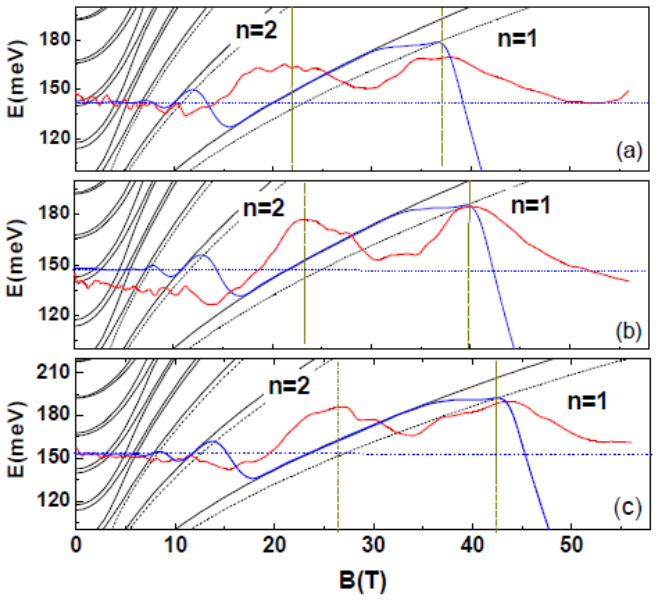

FIGURE 6.9 – Idem que pour la figure 6.8, mais pour un nanoruban $571 - aGNR$ aux tensions de grille : (a) $V_g = -11.5V$, (b) $V_g = -13V$, (c) $V_g = -14V$. On peut voir que le deuxième maximum de la résistance coïncide avec le passage du niveau de Fermi (ligne continue bleue) au travers du niveau marqué en pointillé dans $n = 1$. Ce deuxiéme maximum met donc en évidence la levée de dégénérescence de vallée dû au confiment de type "armchair" et accentué par le champ magnétique.

zigzag, le processus de levée de dégénérescence de vallée pour ce type de ruban est donc identique à celui du graphène 2D [Nomura 2006, Gusynin 2006]. Processus

qui, compte tenu de nos mobilités ne peut expliquer la magnéto-résistance observée expérimentalement. Nous pouvons donc affirmer que la configuration des bords de l'échantillon est dominée par une géométrie de type "armchair". Notons que deux conditions sont nécessaires à l'observation de la levée de dégénérescence sur les courbes de magnéto-résistance : premièrement, la séparation énergétique entre les deux sous niveaux doit être supérieure à leur étalement énergétique. Deuxièmement, la densité d'états correspondant au minimum de la structure de bande pour les k non nuls doit être assez grande pour que la diffusion augmente lorsque l'énergie de Fermi le traverse. De telles conditions sont réunies pour l'échantillon B mais pas pour le A. En effet la mobilité de l'échantillon B est approximativement 3 fois plus importante que celle de l'échantillon A ; de plus, du fait de sa largeur 30% plus faible, la densité d'états du deuxième minimum est plus importante pour le ruban B.

6.2.3 Effet du désordre sur les canaux de bords

La présence de désordre dans l'échantillon peut entraîner une probabilité non nulle de diffusion entre les canaux chiraux portant le courant sur les bords opposés. Cette rétro diffusion va affecter la quantification de la conductance [Querlioz 2008, Mucciolo 2009]. La simulation de la distribution spatiale des courants circulant dans l'échantillon peut permettre de déterminer la séparation entre les courants chiraux en fonction du champ magnétique pour une ruban parfait et de la comparer à l'expérience. Le courant total circulant dans le système est donné par l'intégrale sur toute la gamme d'énergie des courants spectraux. Les courants spectraux représentent la contribution au transport des électrons d'énergie E. Ces courants peuvent être séparés en deux catégories, les courants spectraux de fond et de transport. Les électrons avec une énergie comprise entre les deux potentiels électrochimiques des contacts source et drain, constituent les courants spectraux de transport et sont responsables de l'intégralité du courant drain-source (voir partie 2.3.1.2). Les courants de fond sont donnés par les électrons dont l'énergie est inférieure au plus bas des deux potentiels chimiques des contacts. Ce courant ne participe donc pas au courant total drain-source. Dans le régime de transport de l'effet Hall quantique dans les nanorubans, le courant ne circule que le long des bords de l'échantillon. Cela signifie que le courant circule dans une direction sur le bord supérieur et dans l'autre sur le bord inférieur, leur séparation spatiale étant à l'origine de la quantification de la conduction de Hall (voir partie 2.3.1.3). Dans le régime d'effet Hall quantique, le courant de transport circule dans une direction précise : du contact de plus haut potentiel chimique vers le contact de plus bas potentiel chimique, il n'est donc situé que d'un côté de l'échantillon. Par contre le courant de fond implique lui les deux bords, son extension spatiale représente donc un paramètre pertinent permettant de déduire la séparation spatiale entre canaux de bord.

Pour évaluer la dégradation de la quantification de la conductance pour $\nu = 6$ quand V_g diminue, le profil des courants spectraux pour un ruban parfait a été cal-

culé en fonction du champ magnétique et en faisant varier l'énergie pour conserver un facteur de remplissage constant (voir figure 6.9). Les résultats pour le ruban B

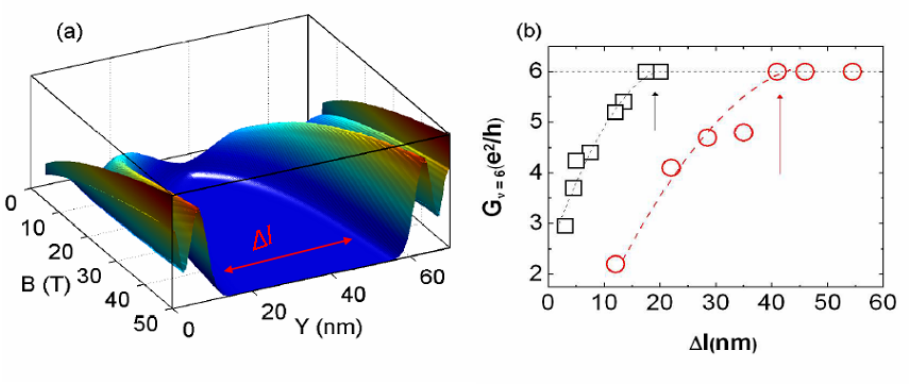

FIGURE 6.10 – (a) Carte 3D de la densité de courant des états de bords à $\nu = 6$ pour un nanoruban "armchair" parfait de 70nm de large, en fonction du champ magnétique et de la position dans la largeur ruban. (b) Dégradation de la conductance quantifiée et mesurée à $\nu = 6$ pour l'échantillon A (rouge) et B (noir) en fonction de Δl, l'extension spatiale de la zone sans courant simulée en (a).

de $70nm$ de large ($a571 - GNR$) sont montrés sur la figure 6.10. Comme attendu, à fort champ magnétique et donc à forte tension de grille (car ν reste contant), les courants chiraux sont de plus en plus poussés vers les bords, leur séparation spatiale augmente, diminuant ainsi la probabilité de rétro diffusion. Cela explique pourquoi, expérimentalement, quand V_g diminue, la conductance à $\nu = 6$ diminue progressivement. A partir des résultats de la figure 6.10(a), il est possible de déterminer l'extension de la zone sans courant (Δl) séparant les états de bords, on peut alors reporter la chute de conductance à $\nu = 6$ en fonction de cette distance Δl (figure 6.10 (b)). Cette représentation nous montre que la conductance commence à se dégrader lorsque les canaux de bords sont encore relativement bien séparés, de l'ordre de $40nm$ et $15nm$ pour les échantillons A et B respectivement. Seule la présence de désordre peut expliquer le couplage d'états chiraux aussi spatialement distincts. Le niveau de désordre permettant un mélange des états de bords est donc plus important dans l'échantillon A que dans l'échantillon B, ceci est consistant avec la mobilité $\mu_A < \mu_B$. Dans les deux cas, la rétro diffusion commence à se produire pour des valeurs de Δl de plusieurs nanomètres. La configuration spécifique du désordre dans ces échantillons entraîne un rapprochement considérable des états de bords. Pour donner une idée de la manière dont les états de bord sont déviés, des simulations de la densité de courant en présence d'une seule impureté de longue portée ont été effectuées. La figure 6.11 représente l'effet d'une impureté modélisé par un potentiel Gaussien sur la densité de courant d'un nanoruban "armchair" de $70nm$ à une énergie $E_F = 119meV$ et un champ magnétique $B = 12T$ (correspondant a $\nu = 6$) pour plusieurs positions de l'impureté. Nous constatons que les canaux de bords

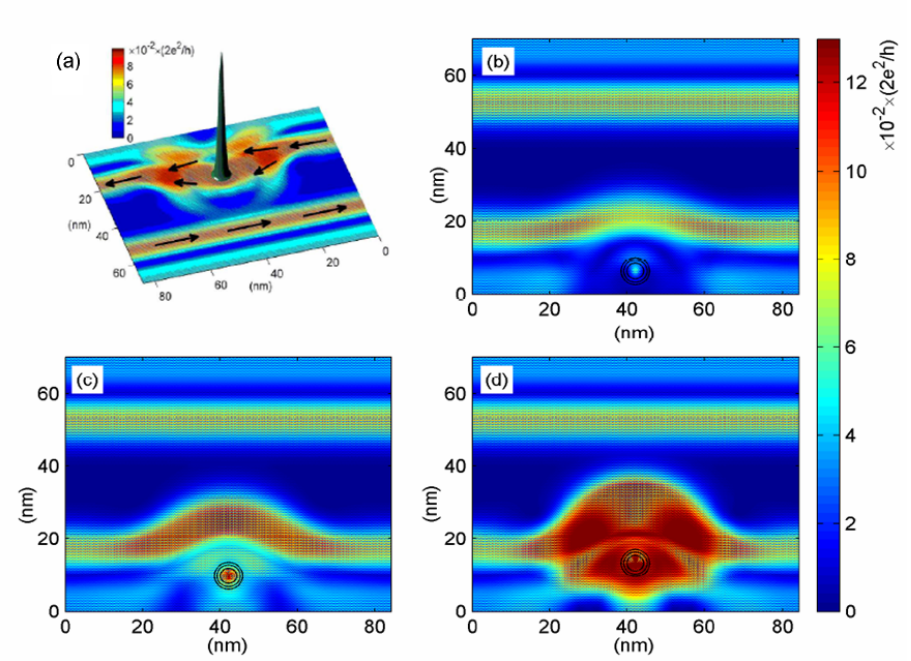

FIGURE 6.11 – (a) Distribution spatiale du courant de fond dans un nanoruban de type "armchair" de 70nm de large à $\nu = 6$ ($E_F = 119meV$ et $B = 12T$), en présence d'un potentiel Gaussien $V = 1eV$ et d'extension spatiale 1nm. (b-c-d) Image du courant de fond dans les mêmes conditions que (a) mais pour différentes positions de l'impureté, indiquées par un cercle noir.

peuvent être déviés de manière drastique par la présence d'un seul défaut, réduisant considérablement la distance Δl. De plus, cet effet est accentué à faible tension de grille du fait de la réduction de l'écrantage, ce qui est en accord avec les résultats expérimentaux. Dans cette situation la présence d'une faible quantité de désordre de courte portée mais répartie de manière aléatoire (voir désordre de Anderson 2.2.4.2) à la surface de l'échantillon, en raison de la présence de nombreux centres diffuseurs près du centre de l'échantillon, peut faire augmenter dans de fortes proportions la rétro diffusion.

6.2.4 Conclusion et perspectives

L'étude du magnéto-transport dans des nanorubans de forte mobilité sur SiO_2, a permis de mettre en évidence les effets du confinement transverse des électrons dans le graphène. A forts nombres quantiques, les oscillations de Shubnikov-de Hass ont un profil singulier en raison de la formation progressive des sous bandes magnéto-électroniques . A grands nombres quantiques, un large ancrage du niveau de Fermi entraîne l'élargissement des maxima de magnéto-résistance et permet l'observation de la levée de la dégénérescence de vallée liée au confinement de type "armchair"

de l'échantillon. A l'aide de simulations quantiques [Cresti 2008], nous avons pu quantifier l'extension spatiale des états de bords et leur résistance au désordre.

Dans les nanorubans étudiés dans ce chapitre, l'influence de la quantification 1D due au potentiel électrostatique reste faible. On ne voit pas, par exemple, de signature de l'entrée successive des sous bandes 1D dans la conductance lorsque l'on applique une tension de grille. De plus, la longueur magnétique l_B devient égale aux demi largeurs des rubans considérés à très faible champ magnétique ($< 1T$). L'effet du champ magnétique est très fort sur les propriétés électroniques. L'étude de rubans de taille inférieure est donc très intéressante pour comprendre la formation progressive des états de bords. En raison de la réduction de la taille du système, les effets dus au désordre, auront une influence majeure sur la conduction. Ces aspects sont abordés dans le chapitre suivant.

6.3 Etude de la formation des états de bords dans les nanorubans de graphène ultra étroits

La réduction latérale de la taille des nanorubans entraîne une forte réduction de la mobilité des porteurs [Wang 2008, Lin 2008], de l'ordre de $200 cm^2/V.s$ pour des rubans de taille inférieure à $10nm$. Les mesures de transport à basse température sur des nanorubans lithographiés montrent un gap énergétique, indépendant de la configuration des bords [Han 2007], bien supérieur au gap de confinement attendu [Son 2006, Stampfer 2009] et contrôlé par des effets de localisation dus au désordre. Des calculs théoriques montrent que la présence de défauts de bords est une des sources de diffusion principale dans les nanorubans, la formation d'un gap de mobilité a été prédite même en présence d'une rugosité des bords très faible [Areshkin 2007, Evaldsson 2008, Mucciolo 2009]. D'autres types de désordre comme les impuretés chargées [Stampfer 2009, Gallagher 2010], les lacunes [Ihnatsenka 2009] ou les déformations structurelles peuvent aussi altérer la conductance du ruban, en particulier au voisinage du point de neutralité de charge (voir partie 2.2.4.2).

Ce paragraphe sera consacré à l'étude du magnéto-transport sur un nanoruban de $11nm$ de large, une taille réduite comparée aux échantillons étudiés dans le chapitre précédent. Des résultats similaires ont été obtenus sur un ruban de $30nm$ de large mais ils ne seront pas montrés ici. La présence de modulations de la conductance en fonction de la tension de grille, en parallèle avec des calculs de structure de bande, nous permet de déterminer la configuration des bords du ruban la plus probable. L'application d'un champ magnétique perpendiculaire entraîne une forte augmentation de la conductance pour toutes les valeurs de tension de grille. Ce comportement contraste fortement avec celui observé pour des rubans de tailles supérieures. Près du point de neutralité de charge, la magnéto-conductance mesurée est attribuée à la formation du niveau de Landau zéro, et donc à la fermeture du gap. Pour les énergies supérieures du niveau de Fermi, le comportement de la conductance est interprété comme étant dû à la suppression de la rétro diffusion

induite par le désordre, lorsque les bandes magnétiques se forment. Les simulations de la conductance montrent que la présence d'un désordre de bords et d'un désordre coulombien de longue portée sont compatibles avec ce scénario.

Les échantillons qui seront présentés dans ce chapitre ont été réalisés par Xinran Wang, de l'équipe de Hongjie Dai à l'université de Stanford Californie , USA. Les simulations quantiques présentées dans ce paragraphe concernant les calculs de structures de bandes par la méthode des liaisons fortes aux troisièmes voisins, les calculs de conductance utilisant le formalisme des fonctions de Green et l'impact des différents types de désordre sur les courant chiraux, ont été effectuées par le Dr Alessandro Cresti. J'ai pour ma part réalisé les mesures expérimentales et pris en charge l'analyse des données.

6.3.1 Caractérisation à champ magnétique nul et détermination de la chiralité

L'échantillon a été dérivé chimiquement [Li 2008] puis déposé sur Si/SiO_2 ($500nm$), connecté par des électrodes de palladium (voir image AFM sur la figure 6.12). Deux rubans ont été étudiés de dimensions, $W = 11nm$, $L = 270nm$ et $W = 30nm$ et $L = 300nm$. La suite de l'étude se centrera principalement sur l'étude du nanoruban de $11nm$. Après le recuit thermique sous vide, la figure 6.12 montre la conductance en fonction de la tension de grille pour plusieurs températures de $169K$ à $20K$. La tension de biais V_{biais} utilisée pour effectuer ces mesures est égale à $50mV$. On retrouve la forme en V typique des nanorubans semi conducteurs. On remarque qu'au point de neutralité de charge, le minimum de conductance chute de presque deux ordres de grandeurs entre $169K$ et $20K$. Cette décroissance de la conductance suggère la présence d'un gap énergétique. Une étude plus approfondie des courbes $G(V_g)$ révèle qu'en dessous de $80K$ des modulations de conductance reproductibles se superposent au caractère croissant de la conductance avec l'augmentation de la densité de porteurs. Ces structures deviennent plus prononcées à plus faible tension V_{biais} (voir figure 6.13 (a)). Ces modulations sont attribuées à la présence de singularités de van Hove. En effet, le temps de diffusion τ lié à la diffusion inter-bande, causé par les défauts, où un électron dans un état $|nk\rangle$ diffuse dans un autre état $|n'k'\rangle$, peut être écrit utilisant la règle d'or de Fermi :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{n'} |\langle nk|H'|n'k'\rangle|^2 \rho_{n'}(E) \tag{6.11}$$

où H' est la perturbation due aux défauts et $\rho_{n'}(E)$ est la densité d'états de la n'^{eme} sous bande. Si on fait l'hypothèse que $|\langle nk|H'|n'k'\rangle|^2$ est indépendant de l'indice de bande n', on voit que le taux de diffusion $1/\tau$ est proportionnel à la densité d'états totale $\rho(E) = \sum_{n'} \rho_{n'}(E)$. Or, la densité d'états diverge en bas de bande (singularité de Van Hove), le temps de diffusion est donc fortement réduit quand le niveau de Fermi approche un bas de bande. Dans le régime diffusif, la transmission des électrons de la sous bande n est fortement réduite à cause de la diffusion. La conductance est donc marquée par des creux ou des changements de pente lorsque

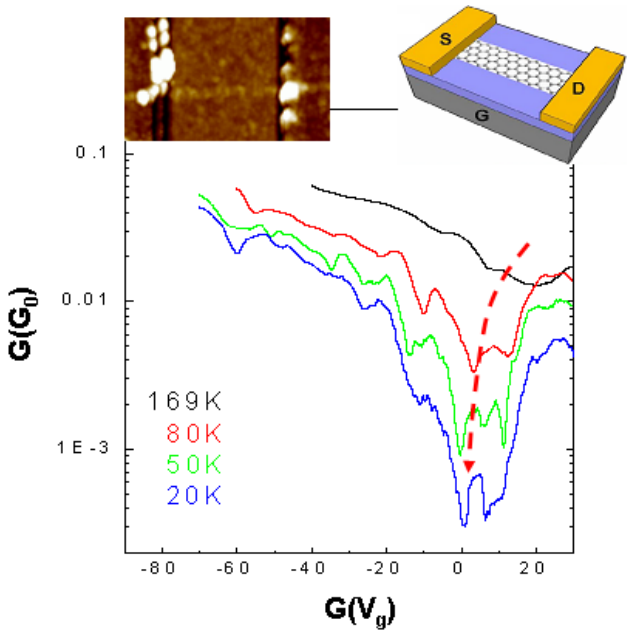

FIGURE 6.12 – Conductance en fonction de V_g pour plusieurs températures de 20K à 169K. Insert haut gauche : image AFM de l'échantillon. Insert haut droit : Schéma de la configuration de l'échantillon.

le niveau de Fermi traverse une singularité de densité d'états. Pour valider ce scénario, des calculs de structures de bandes ont été effectués pour différents types de nanorubans. Les calculs incluent des nanorubans de type zigzag ($N - zGNR$) et de type "armchair" ($N - aGNR$), les valeurs de N correspondent aux nombres de dimères qui ont été choisis pour explorer toute la gamme de largeur possible de notre échantillon. Des mesures précises à l'AFM donnent une largeur $W = 11 \pm 1nm$. La figure 6.13 montre la densité d'états $\rho(V_g)$ (ligne noire pointillée) pour des rubans "armchair" de types $N = 90(3m)$, $91(3m+1)$, $92(3m+2)$. Sans aucun paramètre ajustable, une comparaison directe entre les positions des singularités et les positions des modulations de la conductance est alors possible. Pour permettre un tel ajustement, connaître précisément la valeur de l'efficacité de grille en prenant en compte la largeur réduite de l'échantillon est nécessaire ; ici $C_g = 5.7 \times 10^{-4} F/m^2$ (calculé en utilisant http ://www.fasteldsolvers.com). Un très bon accord est obtenu pour le nanorubans $90-aGNR$ de largeur nominale $10.947nm$ (voir figure 6.13 (b)), aucune des autres configurations $zGNR$ ou $3m+1$ - $3m+2$ aGNR ne donne un accord satisfaisant (voir figure 6.13 (e), (c), et (d) respectivement). Notons tout de même que d'autres valeurs N, multiples de trois, de $N = 87$ à $N = 93$, entrent dans la gamme d'incertitude de largeur, et mènent, elles aussi, à un accord satisfaisant. En effet la modification de l'énergie des sous bandes n'excède pas 6% entre $N = 87$ et 93, différence qui ne peut être discriminée sur les courbes $G(V_G)$. On peut donc conclure que la conductance $G(V_g)$ montre un profil consistant avec un nanoruban

de type "armchair" constitué de 90 ± 3 dimères sur sa largeur.

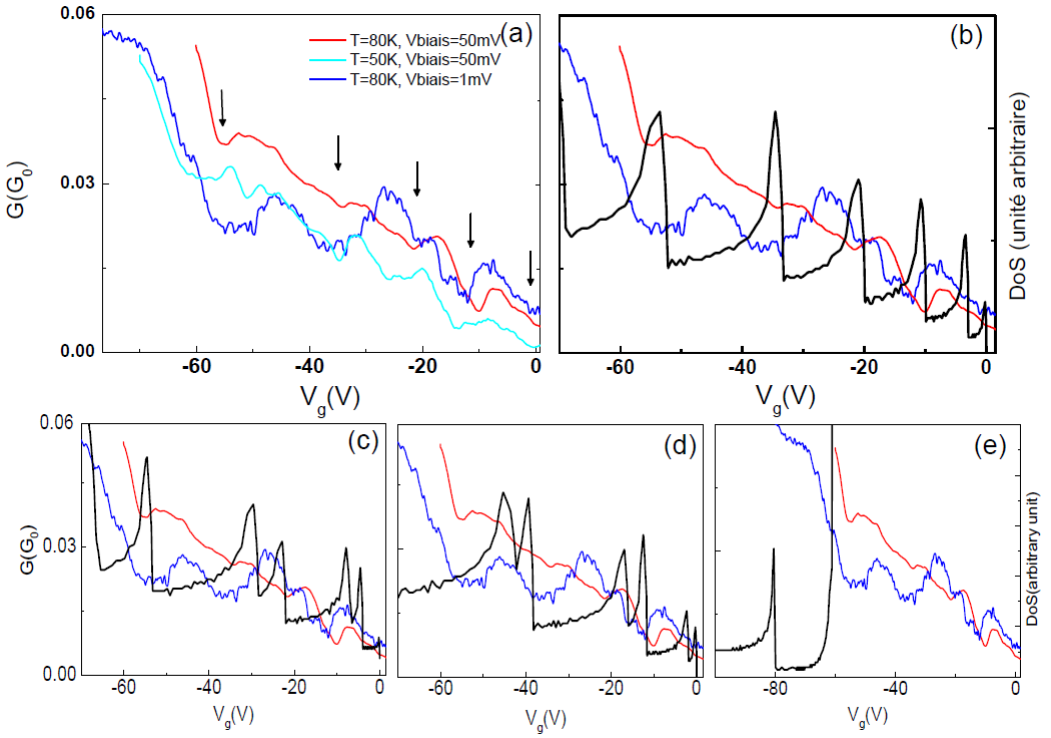

FIGURE 6.13 – (a) Conductance $G(V_g)$ mesurée sur un nanoruban $W \approx 11nm$ pour trois configurations expérimentales différentes. Les flèches marquent la position de minima locaux qui se reproduisent sur plusieurs courbes expérimentales. Comparaisons entre la position de ces minima et la densité d'états calculée pour plusieurs nanorubans : (b) $90 - aGNR$, (c) $91 - aGNR$, (d) $92 - aGNR$, (e) $51 - zGNR$. Seule la configuration $90 - aGNR$ permet de reproduire convenablement la position des incidents sur les courbes $G(V_g)$.

6.3.2 Formation des états de bords en présence de désordre

6.3.2.1 Transport en champ magnétique intense

Au point de neutralité de charge, l'application d'un champ magnétique transverse induit une augmentation de la conductance de plus de 50% à $80K$ et de plus d'une décade à $20K$. La formation progressive du niveau de Landau d'énergie zéro identique à celui du graphène, induit à mesure que le confinement magnétique devient important, une fermeture du gap d'énergie séparant la bande de conduction de la bande de valence. Les figures 6.14 (a) et (b) montrent l'évolution de la structure de bande du nanoruban avec le champ magnétique ainsi que l'énergie des niveaux de Landau pour du graphène non structuré. On voit qu'à $60T$, l'énergie du bas de la

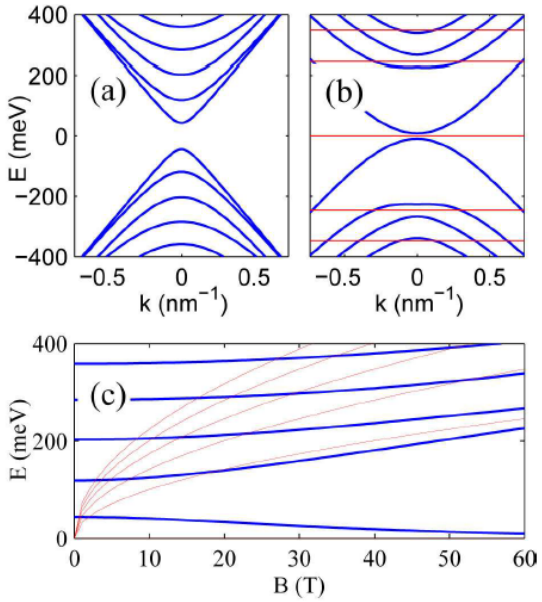

FIGURE 6.14 – (a) Structure de bande autour du point de neutralité de charge pour $90-aGNR$ à $B=0T$. (b) Lignes bleues : même chose que dans (a) mais $B=60T$. Pour comparaison, sont indiquées en lignes rouges, les énergies des niveaux de Landau dans le graphène. (c) Lignes bleues : énergies des sous bandes 1D pour un $90-aGNR$ en fonction du champ magnétique ; et pour comparaison les énergies des niveaux de Landau du graphène en fonction de B sont indiquées en ligne rouge.

première sous bande électronique s'est fortement rapprochée de zéro, le gap énergétique est pratiquement fermé. Les sous bandes d'énergies supérieures commencent aussi à se déformer et à s'aplatir pour former les niveaux de Landau. Mais du fait de la faible largeur du nanoruban, les bandes 1D sont encore loin d'être confondues avec les niveaux de Landau. Ceci est encore plus marqué pour les bandes de hautes énergies, pour lesquelles le rayon de l'orbite magnétique est plus grand que la demi largeur du ruban (voir figure 6.14 (c)). La figure 6.15(b) montre la dépendance simulée de la valeur du gap d'énergie pour les trois types de nanoruban "armchair" $(3m, 3m+1, 3m+2)$. Faisant l'hypothèse de bandes plates au point de neutralité de charge, la valeur du gap $E_g(B)$ va moduler la conductance thermiquement activée, qui s'exprime comme suit :

$$\Delta G \sim exp(\frac{-E_G(B)}{2k_B(T+T^*)}) \tag{6.12}$$

où k_BT^* représente la fenêtre d'énergie cinétique des porteurs de charges définie comme $eV_{biais}/2$. On voit sur la figure 6.15 (a) qu'un bon accord entre l'expérience et le modèle d'activation est obtenu en utilisant la variation du gap en champ magné-

tique pour les rubans $90aGNR$, avec un $k_BT^* \approx 21 \pm 2meV$. Ce qui reste consistant avec une valeur de V_{biais} expérimentale de $50meV$. On remarque également que l'accord entre la conductance expérimentale et théorique est très bonne à $80K$ et à $50K$ mais commence à se dégrader à $20K$, une explication possible à ce phénomène consiste à dire qu'à basse température le transport n'est plus dominé par l'activation thermique mais par d'autres processus de conduction comme la conduction par saut [Han 2010].

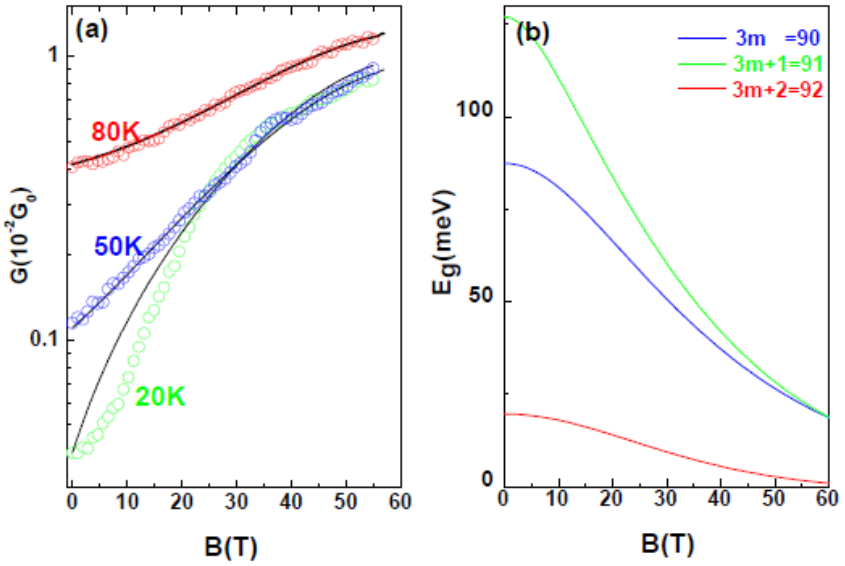

FIGURE 6.15 – (a) Symboles : magnéto-conductance mesurée au point de neutralité de charge pour un ruban de $11nm$ de large, $V_{biais} = 50mV$, et à plusieurs températures. Les lignes continues sont l'ajustage théorique utilisant la formule 6.12 et la variation de la valeur du gap énergétique du nanoruban $90 - aGNR$ en fonction du champ magnétique, présenté en (b). L'accord avec les résultats expérimentaux n'est consistant que pour le $90 - aGNR$. (b) Variation du gap énergétique en fonction du champ magnétique pour trois types de aGNR $90 - 91 - 92 - aGNR$.

Loin du point de neutralité de charge, la magnéto-conductance mesurée est toujours positive, et cela quelque soit la tension de grille (voir figure 6.16). Le gain en transmission est cependant modulé d'une manière complexe mais reproductible par le dopage électrostatique. La conductance peut aller jusqu'à doubler selon les valeurs de tension de grille et reste positive alors même que plusieurs sous bandes sont impliquées dans la conduction. Ce comportement de la magnéto-conductance est différent de celui observé dans le graphène et dans les nanorubans de taille supérieures, pour lesquels une magnéto-conductance positive n'est observée qu'à très faible champ et résulte de la destruction du régime de localisation faible. A titre comparatif, la courbe de magnéto-conductance obtenue pour un ruban lithographié

de $100nm$ est montrée sur la figure 6.16. La conductance $G(B)$ est positive à très faible champ magnétique avec une variation compatible avec un régime de localisation faible 2D [Tikhonenko 2008]. A plus fort champ magnétique, $G(B)$ diminue et montre le comportement oscillatoire étudié en 6.2.

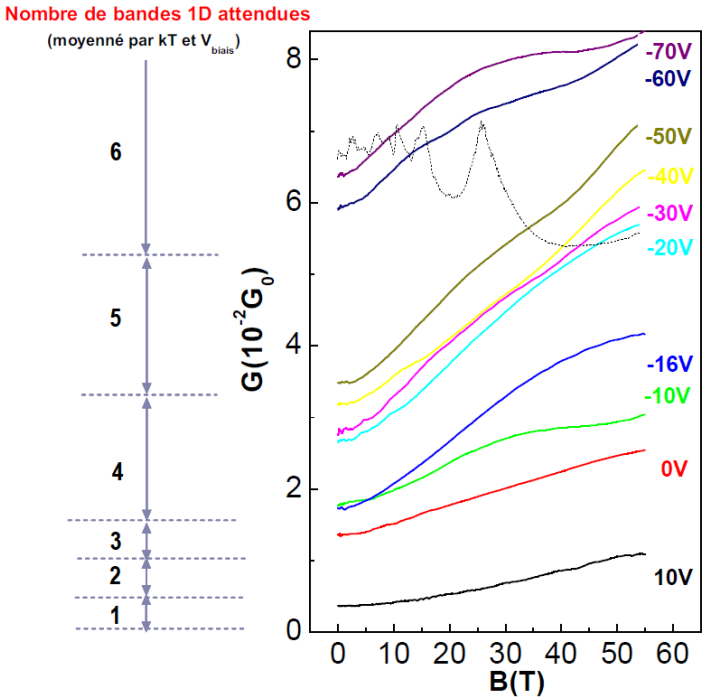

FIGURE 6.16 – Magnéto-conductance mesurée à 80K à plusieurs tensions de grille V_g, avec $V_{biais} = 50mV$. Les courbes présentent une magnéto-conductance positive quelle que soit la tension de grille. Des modulations différentes pour chaque tension de grille mais reproductibles se superposent à l'augmentation monotone. A titre de comparaison, la magnéto-conductance d'un nanoruban de $100nm$ de largeur est représentée en pointillé. A gauche, le nombre de sous bande impliquées à champ magnétique nul pour les différentes tensions de grille.

6.3.2.2 Simulation de la magnéto-conductance en présence de différents types de désordre

Pour mieux comprendre le comportement de la magnéto-conductance quelque soit le dopage électrostatique, des simulations de conductance utilisant le formalisme des fonctions de Green et de Landauer-Büttiker ont été réalisées [A. Cresti 2006]. Contrairement au traitement du transport par le formalisme de Boltzmann, cette approche inclut tous les effets d'interférences quantiques. Trois types de désordres sont considérés : le désordre de type Anderson, les défauts de bords et le désordre

Gaussien.

-Le désordre de type Anderson :
ce désordre reproduit de manière qualitative les effets des impuretés non chargés présentes à la surface de l'échantillon. Sa modélisation consiste à modifier de manière aléatoire l'énergie d'un site entre $[-w/2, w/2]$. Ce désordre induit un fort taux de diffusion inter- et intra-bande et affecte toute la surface du ruban. Le fait que l'échantillon ait été recuit implique que le taux de désordre d'Anderson sur notre échantillon est probablement faible.

-Le désordre de bord :
Il est une source de désordre inévitable dans les nanorubans, et les rubans dérivés chimiquement n'échappent pas à cette règle [Wang 2008]. Dans les nanorubans très fins, l'effet du désordre de bord joue un rôle prépondérant, du fait du ratio important entre la zone désordonnée aux bords et la zone propre au centre.

-Le désordre Gaussien :
Dans le cas du désordre Gaussien, un nombre N_I d'impuretés de profil Gaussien sont réparties aléatoirement sur l'échantillon ($n_{impurit} = 1.15 \times 10^{16} m^{-2}$), ce profil d'impuretés, à longue portée, modélise de façon raisonnable les impuretés chargées présentes dans l'oxyde ou bien à l'interface graphène/oxyde.

Ces trois désordres ont été choisis car ils représentent les sources de diffusion les plus probables [Areshkin 2007, Katsnelson 006c]. Les déformations (ondulations) du réseau cristallin dans la direction perpendiculaire au plan, induisent des variations du potentiel chimique et présentent donc une autre source de désordre de longue portée, de plus longue portée, en fait, que le désordre Gaussien modélisé ici. Leur impact sur un nanoruban de $11nm$ de large (c'est-à-dire de largeur inférieure à la longueur d'onde moyenne de ces ondulations $\sim 15nm$ [Ishigami 2007, Geringer 2009]) peut par contre être considéré comme faible devant l'impact des impuretés chargées de l'oxyde de grille.

Pour se rapprocher le plus possible des résultats expérimentaux, les simulations de conductance sont réalisées à une température finie $T = 80K$ et à une valeur de tension $V_{biais} = 50mV$. Son expression est définie comme suit :

$$\overline{G}(E,B) = \frac{1}{eV_{biais}} \int \left[f(E,T,\mu + \frac{eV_{biais}}{2}) - f(E,T,\mu - \frac{eV_{biais}}{2}) \right] G(E,B) dE \tag{6.13}$$

avec

$$G(E,B) = \frac{(2e^2/h)T(E,B)}{1 + (2e^2/h)T(E,B)R_C} \tag{6.14}$$

où $T(E,B)$ est le coefficient de transmission en fonction de l'énergie des porteurs injectés E et du champ magnétique B. Une résistance de contact de $R_C = 10k\Omega$ est prise en compte. Dans la simulation, 5% des atomes de carbone sont retirés sur les six chaînes extérieures de chaque coté du ruban pour rendre compte de la rugosité

des bords, $w = 2eV$ pour le désordre d'Anderson, $u = 2eV$ et $N_i = 34$ avec une extension spatiale de $1nm$ pour le désordre Gaussien.

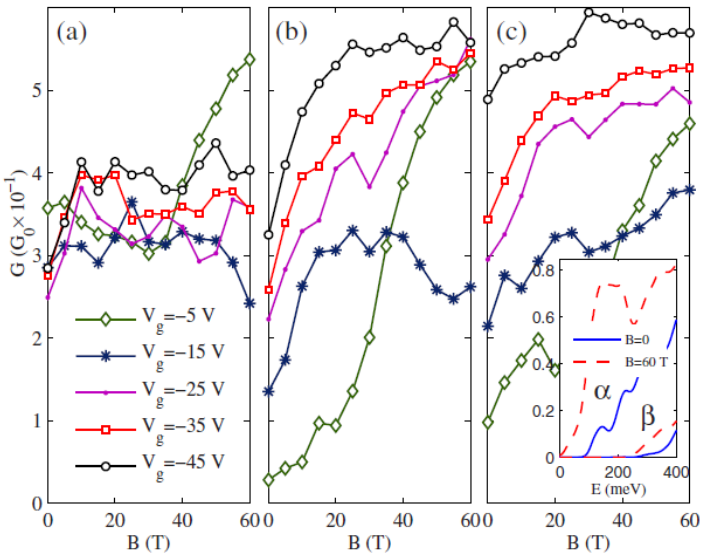

FIGURE 6.17 – (a) Magnéto-conductance pour le ruban 90-aGNR simulée à différentes valeurs de V_g en présence de (a) désordre d'Anderson : $W = 2$, (b) rugosité de bord : 5% des atomes de carbones retirés sur les 6 couches extérieures, et (c) impureté Gaussienne : densité d'impuretés $1.15 \times 10^{16} m^{-2}$, $\xi = 1nm$ et $u = 2eV$. On voit que la magnéto-conductance positive ne peut être reproduite par la présence de désordre de type Anderson. Une faible quantité de désordre de bord ainsi que la présence de désordre de type Gaussien reproduisent qualitativement la tendance expérimentale.

La figure 6.17 montre la magnéto-conductance calculée à plusieurs tensions de grille, pour les trois types de désordre. L'utilisation du désordre d'Anderson est inappropriée pour décrire la magnéto-conductance expérimentale. En effet, la conductance est presque insensible au champ magnétique à part pour les valeurs de tension de grille proche du point de neutralité de charge $V_g \geq -5V$. Ce comportement est de plus indépendant de la force du désordre. Par contre, le désordre de bord induit une très forte magnéto-conductance positive pour les faibles valeurs de V_g quand une seule bande de conduction est active. Quand 2 ou 3 bandes deviennent actives ($V_g \sim -15V$), le profil de la magnéto-conductance devient fluctuant, mais redevient strictement positif à tension de grille plus grande. Cela reproduit en partie la variation générale de $G(B)$ expérimentale, suggérant que la rugosité des bords peut être en partie impliquée dans le processus de diffusion total mais ne domine pas le transport. Finalement, le désordre Gaussien reproduit la tendance expérimentale pour toutes les valeurs de V_g : $G(B)$ augmente pour toutes les valeurs de tension de grille et sur l'intégralité de la gamme de champ. Cette magnéto-conductance obte-

nue pour le désordre Gaussien peut être comprise et quantifiée par la visualisation des états de bords magnétiques qui se développent dans la limite des champs intenses. Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, les canaux de bords du bord supérieur conduisent le courant en direction opposée des canaux du bord inférieur. Quand le désordre n'est pas assez important, la séparation spatiale entre les canaux induit une forte réduction de la rétro diffusion. La figure 6.18 illustre la distribution de courant à une énergie $E = 200meV$ pour différentes valeurs du champ magnétique. A champ magnétique nul (figure 6.17 (a)), le courant qui circule est faible (les valeurs de conductance à champ nul sont en effet faibles). A mesure que B augmente, la densité de courant augmente le long des bords de l'échantillon (figure 6.18 (b)et(c)), la présence de défauts limite le courant circulant entre la source et le drain, entraînant une rétro diffusion partielle. La figure 6.18 (d) illustre cette rétro diffusion partielle : au contact d'un état localisé une partie du courant passe du bord supérieur au bord inférieur et est retransmis jusqu'au contact de gauche (source) le long du bord inférieur, le reste du courant reste sur le bord supérieur. Cet effet est d'autant plus réduit que les états de bords se développent à fort champ

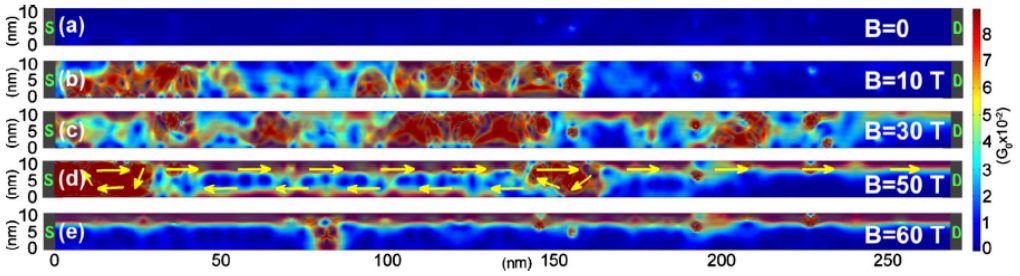

FIGURE 6.18 – (a) Distribution de courant spectral à l'énergie $E = 200meV$ pour un ruban $90 - aGNR$ en présence d'impuretés Gaussienne à (a) $B = 0T$, (b) $B = 10T$, (c) $B = 30T$, (d) $B = 50T$, et (e) $B = 60T$. Les charges vont de la gauche (source) vers la droite (drain).

magnétique. On peut noter que le fait que le désordre d'Anderson soit homogène et de courte portée rend la séparation entre états de bords très difficile, l'application d'un champ magnétique n'entraîne donc pas une magnéto-conductance positive. Par contre, ce processus est très efficace dans la première bande de conduction, dans le cas où le désordre de Anderson est absent, et que le désordre à longue portée (ou de bord) domine le processus de diffusion. En effet, quand une seule bande est active, seule la diffusion intra-bande est possible (voir figure 6.19 (a)). Lorsqu'un champ magnétique est appliqué, ce type de diffusion est fortement réduit dans le cas du désordre Gaussien (en raison de l'augmentation de la distance entre les deux cotés de la bande dans l'espace des k) et dans le cas du désordre de bord (du fait du non recouvrement des fonctions d'ondes d'un coté à l'autre de l'échantillon).

Pour comprendre la contribution de chaque sous bande sur la magnéto-

conductance, nous définissons, à partir des coefficients de transmission T_n des différentes sous bandes n, les quatre quantités suivantes :

$$T = \sum_{n=1}^{\infty} T_n$$

$$S = \sum_{n=1}^{\infty} T_n(1 - T_n)$$

$$\alpha = \sqrt{T - S} = T_1 \sqrt{1 + \sum_{n=2}^{\infty} \frac{T_n}{T_1}^2}$$

$$\beta = T - \sqrt{T - S} = T - \alpha \tag{6.15}$$

Le coefficient α donne une estimation de la contribution de la première bande au processus de conduction, le coefficient β donne une valeur approximative du coefficient de transmission totale de tous les canaux avec $n \geq 2$. La figure 6.19 (c) reporte les coefficients α et β calculés en présence d'un désordre Gaussien et en prenant en compte la température et la valeur de la tension de biais. On voit clairement que la contribution de la première sous bande à la conduction est majoritaire. En présence de désordre gaussien, le processus de diffusion inter-bande est réduit, la première sous bande interfère donc très peu avec les autres sous bandes (voir figure 6.19 (b)). Même à haute énergie, la magnéto-conductance positive due à la première sous bande est donc conservée bien au-delà de la seconde singularité de van Hove. Les autres sous bandes n'ont donc qu'une influence très faible sur la variation sous champ magnétique de la conductance et sont seulement responsables de l'augmentation de la conductance avec la tension de grille.

On remarque tout de même que dans tous les cas présentés, la conductance calculée numériquement est plus grande que celle mesurée. En renforçant le désordre (sa densité ou sa force), les simulations nous montrent que le système rentre rapidement dans un régime fortement localisé pour lequel un champ magnétique appliqué même de 60T ne conduit pas à une magnéto-conductance positive. Notons qu'un meilleur accord peut cependant être obtenu entre la conductance simulée et l'expérience en considérant un désordre Gaussien modéré superposé à une faible rugosité des bords (voir figure 6.20). Cependant, le nombre de paramètres impliqués ne permet pas de pousser davantage la comparaison.

6.3.3 Conclusion

Nous avons, par comparaison directe entre la position des singularités de van Hove et les courbes de conductance en fonction de la tension de grille, déterminé la configuration des atomes de carbone le long des bords de l'échantillon ainsi que le nombre de dimères composant sa largeur. Cette configuration des bords a ensuite été confirmée par les courbes de magnéto-transport au point de neutralité

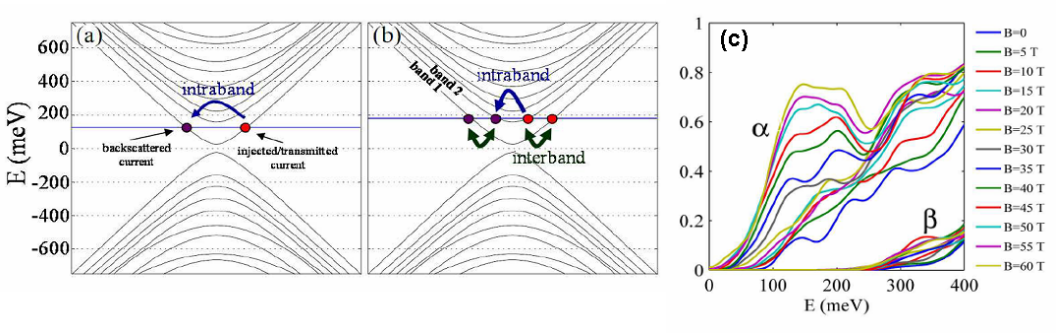

FIGURE 6.19 – (a) Schéma du processus de diffusion intra-bande quand une seule sous bande est active. (b) Processus de diffusion quand la seconde bande devient active, la diffusion inter bande devient possible. (c) Les coefficients α et β en fonction de l'énergie et à différents champs magnétiques pour un ruban $90 - aGNR$ en présence d'un désordre Gaussien. Les coefficients sont moyennés de façon à prendre en compte $T = 80K$ et $V_{biais} = 50mV$.

de charge, qui ne peuvent simulées qu'en utilisant la valeur du gap $E_g(B)$ correspondant au nanoruban $90 - aGNR$. Loin du point de neutralité de charge et en présence d'un champ magnétique intense, les propriétés de transport des porteurs de charge dans les rubans fins, dérivés chimiquement, sont dominées par le processus de formation des états de bords. La magnéto-conductance positive observée expérimentalement quelque soit la densité de charges, peut être expliquée par la présence de désordre de type Gaussien combiné à un faible désordre de bord. Malgré le fait que pour un champ magnétique de $30T$ la longueur magnétique devient de l'ordre de la demi-largeur du ruban, et contrairement aux nanorubans étudiés dans la partie précédente, aucun phénomène de quantification de la conductance n'a été observé ici. On peut remarquer que des structures reproductibles sont présentes sur les courbes $G(B)$ et n'ont pas été expliquées ci-dessus. Pour comprendre l'origine de ces structures, des expériences à plus faible V_{biais} et à un pas de grille plus fin sont nécessaires.

6.4 Conclusion et perspectives

Pour des rubans de $70nm$ à $100nm$ de large, les mesures de magnéto-transport montrent une quantification de la conductance. Cette quantification découle de la formation d'états de Landau chiraux complètement séparés, de part et d'autre de l'échantillon. Une analyse approfondie de la valeur de la quantification de la conductance, en parallèle avec des simulations de l'extension spatiale des courants chiraux, montre qu'un nombre très limité de centres diffuseurs est capable d'induire un mélange entre des canaux de bords séparés par des distances largement supérieures à

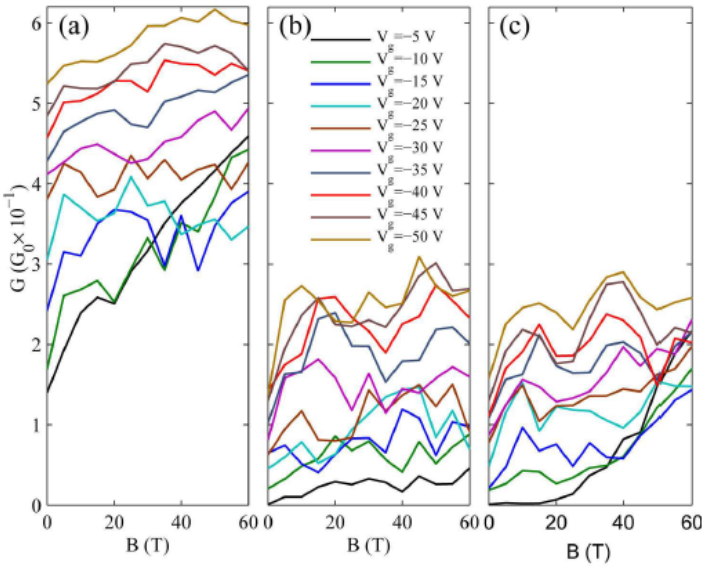

FIGURE 6.20 – Conductance pour un ruban $90 - aGNR$ en présence d'un désordre Gaussien avec $N_I = 90$ et (a) $u = 1eV$, (b) $u = 2eV$. Il est clair sur la figure que lorsque le désordre Gaussien devient trop important, le caractère positif de la magnéto-conductance est perdu. (c) Conductance pour le même ruban en présence de désordre Gaussien $N_I = 90$, u=2eV et de 5% d'atomes de carbone retirés sur les trois chaînes extérieures de chaque coté. On remarque que la superposition des deux types de désordre permet de conserver le caractère positif de la magnéto-conductance, tout en réduisant la valeur absolue de la conductance.

la dizaine de nanomètres. Pour des nanorubans de faible largeur de $10nm$ à $30nm$, nous avons montré que le magnéto-transport est dominé par le désordre de longue portée et le désordre de bord, donnant lieu à une magnéto-conductance positive quelque soit la tension de grille. La présence de ce désordre induit une forte chute de la conductance. En effet bien que la conductance à champ nul conserve toujours son caractère uni-dimensionnel, dû à la divergence de la densité d'états en bas de bande, les valeurs de conductance se trouvent être jusqu'à deux ordres de grandeur inférieures à celles attendues dans le cas de ruban balistique. L'étude du magnèto-transport dans une gamme de largeur allant de $30nm$ à $70nm$ serait intéressante pour tenter de comprendre la formation progressive des états chiraux de Landau, ainsi que les phénomènes qui induisent la chute de mobilité importante que nous observons. La suspension des nanorubans pour se s'affranchir des interactions avec le substrat, et ainsi limiter la présence d'impuretés chargées semble être elle aussi de première importance. Obtenir des échantillons de taille réduite et de forte mobilité pourrait aussi permettre l'étude des interactions électron-électron. Des simulations récentes prévoient un fort impact de ces interactions sur la structure de bande [Shylau 2010].

Conclusion

Dans cette thèse, nous avons sondé les propriétés électroniques de matériaux à base de graphène à l'aide du champ magnétique intense. En effet, les modifications des propriétés de conduction, et en particulier de la structure de bande électronique induite par le champ magnétique, ont permis de mettre en évidence et de comprendre des phénomènes physiques sous-jacents nouveaux et pertinants.

Nous avons étudié, dans le graphène mono-feuillet, les propriétés de transport proche du point de neutralité de charge. L'application d'un champ magnétique, sur un système non homogène composé d'îlots électrons-trous, entraine l'apparition de fluctuations dans la resistance longitudinale et deansla resistance de Hall. Ces fluctations ont pour origine la transition progressive des îlots dans le régime quantique à des champs magnétiques dépendant directement de leurs dimensions. Nous avons aussi mis en évidence un effet Hall quantique non-conventionnel, marqué par une chute de la résistance de Hall pour les facteurs de remplissage inférieurs à 2. Une étude approfondie du profil de l'effet Hall en fonction du taux de désordre dans l'échantillon a permis d'éliminer une explication liée à une levée de dégénérescence du niveau $n = 0$. Le potentiel électrostatique fluctuant lié à la présence de défauts chargés, en combinaisons avec un fort encrage du niveau de Fermi, entraîne à faible nombre quantique une variation du ratio électrons-trous modifiant ainsi le profil de l'effet Hall.

L'étude des propriétés électroniques du graphène multi-feuillet s'est révélée riche et complexe. Nous avons effectué une des premières mesures d'effet Hall quantique entier dans un échantillon de graphène tri-couche. Des simulations de la quantification en niveaux de Landau, prenant en compte l'effet du champ électrique de grille sur la répartition de porteurs de charge entre les couches, ont été effectuées. Une comparaison directe entre la magnéto-résistance théorique, obtenue en considérant un encrage du niveau de Fermi, et les résultats expérimentaux a permis de déterminer le type d'empilement des couches de graphène constituant l'échantillon. A faible facteur de remplissage cet encrage du niveau de Fermi induit, comme dans le cas du graphène, une modification du ratio électrons-trous entrainant une diminution de la résistance de Hall. Les mesures de magnéto-transport dans le graphène multi-couche, ont montré une quantification en niveaux de Landau claire au travers de l'apparition d'oscillations Shubnikov-de Hass. Une analyse de la phase de ces oscillations a permis de mettre en évidence la coexistence de deux types de porteur chiraux dans l'échantillon. Des porteurs ayant une phase de Berry nulle et demi-entière participent simultanément à la conduction.

Des mesures de magnéto-transport dans les nanorubans de graphène, ont montré des comportements électroniques très différents selon la gamme de largeur du ruban. Dans des rubans larges, de l'ordre de la centaine de nanomètres, nous avons montré la formation complète des états de bords chiraux résultant en une quantification de la conductance en plateaux de Hall. Le confinement magnétique des porteurs sur

les bords de l'échantillon, a permis de sonder la géométrie des bords. En effet, nous avons pour la première fois mis en évidence la levée de dégénérescence de vallée, liée à la configuration armchair des bords dans un nanoruban. Dans des nanorubans de taille plus réduite, de 10 à $30nm$, les effets du confinement uni-dimensionnel deviennent importants. La présence d'accidents sur la mesure de conductance en fonction de la tension de grille, liée à l'augmentation de la densité d'états en bas de bande, a permis de déterminer la configuration atomique des bords ainsi que la largeur du ruban. Au point de neutralité de charge, une forte augmentation de la conductance en champ magnétique, démontre la formation progressive du niveau de Landau $n = 0$ entraînant une fermeture du gap. Loin du point de neutralité de charge, une magnéto-conductance positive quelle que soit la tension de grille a été mesurée. Celle-ci révèle la formation progressive des états de bords magnétiques. Une étude théorique a montré que ces états de bords chiraux restent couplés les uns aux autres en raison de la coexistence de désordre de bords et d'impuretés chargées au sein de l'échantillon.

Pour finir, il faut noter que l'étude des propriétés du graphène et des matériaux à base de graphène est un domaine très compétitif. Ce travail, grâce à de l'utilisation de champ magnétique intense et de la conception d'échantillons de bonne qualité a néamoins permis, d'apporter des éclaircissements dans ce domaine complexe.

Annexe A

Annexe1

A.1 Revues internationales à comité de lecture

(10) **Integer Quantum Hall Effect in Trilayer Graphene**,
A.Kumar, W.Escoffier, J.M.Poumirol, C. Faugeras, M. Faugeras, M. Fogler, D. P. Avoras, F. Guinea, S.Roche, M.Goiran, and B.Raquet
soumis *Physical Review Letter*

(9) **Unveiling the Landau Levels Structure of Graphene Nanoribbons**,
R. Ribeiro, J.M.Poumirol, A.Cresti, W.Escoffier, M.Goiran, J.M.Broto, S.Roche, and B.Raquet
soumis (Révisé) *Physical Review Letter*

(8) **Determination of effective mass in InN by high-field oscillatory magnetoabsorption spectroscopy**,
M.Millot, N.Ubrig, J.M.Poumirol, I.Gherasoiu, W.Walukiewicz, S.George, O.Portugall, J.Leotin, M.Goiran, J.M.Broto
Physical Review B **83**, 125204 (2011).

(7) **Impact of disorder on the v=2 quantum Hall plateau in graphene**,
J.M.Poumirol, W.Escoffier, A.Kumar, B.Raquet, and M.Goiran
Physical Review B rapid communication **82**, 121401(R) (2010).

(6) **Electron-hole coexistence in disordered graphene probed by high-field magneto-transport**,
J.M.Poumirol, W.Escoffier, A.Kumar, M.Goiran, B.Raquet and J.M.Broto
New Journal of Physics **12** 083006 (2010).

(5) **Edge magnetotransport fingerprints in disordered graphene nanoribbons** ,
J.M.Poumirol, A.Cresti,S.Roche, W.Escoffier, M.Goiran, X.Wang, X.Li, H.Dai, and B.Raquet
Physical Review B (rapid communication) **82**, 041413 (R) (2010).

(4) **High magnetic field induced charge density waves and sign reversal of the Hall coefficient in graphite**,
A.Kumar, J.M.Poumirol, W.Escoffier, M.Goiran, B.Raquet and J.C.Pivin
Journal of physics - Condensed Matter, **22** (2010) 436004.

(3) **Electric field doping of few-layer graphene**,
W.Escoffier, J.Poumirol, R. Yang, M.Goiran, and B.Raquet, and J.M.Broto
Physica B **405** 1163 - 1167 (2010).

(2) **Electron cyclotron effective mass in indium nitride**,
M.Goiran, M.Millot, J.M.Poumirol, I.Gherasoiu, W.Walukiewicz, and J.Leotin
Applied Physics Letters **96**, 052117 (2010).

(1) **Anodic bonded graphene**,
A.Balan, R.Kumar, M.Boukhicha, O.Beyssac, J-C.Bouillard, D.Taverna, W.Sacks, M.Marangolo, E.Lacaze, R.Gohler, W.Escoffier, J.M.Poumirol and A.Shukla
Journal of Physics D : Applied Physics **43** 374013 (2010).

A.2 Communications orales et posters

04/2011 **GraphITA 2011**, Laquilla, (Italy), Integer Quantum Hall in trilayer graphene, *Oral presentation.*

10/2010 **2nd EuroMagNET Summer School Science in High Magnetic Fields**, Ameland, (Netherlands), Electronic properties of disordered graphene, *Oral presentation.*

08/2010 **JMC12 : Condensed Matter Day**, Troyes (France), Electron-holes puddles effect on the magneto transport, *Oral presentation.*

06/2010 **NT10 : International Conference on the Science and Application of Nanotubes**, Montreal (Canada), Edges effects and disorder in Graphene Nanoribbon, *Posters* and Electronic properties of disordered graphene, *Posters.*

10/2009 **GDRI : International Research Network on Graphene and nanotube**, Coma-Ruga, (spain), Edges Fingerprint and magneto conductance of graphene nanoribbon, *Oral presentation.*

10/2009 **GDR 2426 : French Research Network on mesoscopic physics**,Aussois (France), Effect of disorder on graphene, *Poster.*

Bibliographie

[A. Cresti 2006] A. Cresti, G. Grosso et G. Pastori Parravicini. *Theoretical imaging of current profiles in two-dimensional devices.* Eur. Phys. J. B, vol. 53, no. 4, pages 537–549, 2006. (Cité en page 134.)

[Abanin 2007a] Dmitry A. Abanin, Patrick A. Lee et Leonid S. Levitov. *Randomness-Induced XY Ordering in a Graphene Quantum Hall Ferromagnet.* Phys. Rev. Lett., vol. 98, no. 15, page 156801, Apr 2007. (Cité en page 56.)

[Abanin 2007b] Dmitry A. Abanin, Kostya S. Novoselov, Uli Zeitler, Patrick A. Lee, A. K. Geim et L. S. Levitov. *Dissipative Quantum Hall Effect in Graphene near the Dirac Point.* Phys. Rev. Lett., vol. 98, no. 19, page 196806, May 2007. (Cité en page 77.)

[Abanin 2008] Dmitry A. Abanin et Leonid S. Levitov. *Conformal invariance and shape-dependent conductance of graphene samples.* Phys. Rev. B, vol. 78, no. 3, page 035416, Jul 2008. (Cité en pages 116 et 119.)

[Adam 2007] Shaffique Adam, E. H. Hwang, V. M. Galitski et S. Das Sarma. *A self-consistent theory for graphene transport.* Proceedings of the National Academy of Sciences, vol. 104, no. 47, pages 18392–18397, 2007. (Cité en pages 41, 71 et 77.)

[Amado 2010] M Amado, E Diez, D Lopez-Romero, F Rossella, J M Caridad, F Dionigi, V Bellani et D K Maude. *Plateau-insulator transition in graphene.* New Journal of Physics, vol. 12, no. 5, page 053004, 2010. (Cité en page 80.)

[Aoki 2007] Masato Aoki et Hiroshi Amawashi. *Dependence of band structures on stacking and field in layered graphene.* Solid State Communications, vol. 142, no. 3, pages 123 – 127, 2007. (Cité en pages 14, 15, 16, 89, 95 et 102.)

[Areshkin 2007] Denis A. Areshkin, Daniel Gunlycke et Carter T. White. *Ballistic Transport in Graphene Nanostrips in the Presence of Disorder : Importance of Edge Effects.* Nano Letters, vol. 7, no. 1, pages 204–210, 2007. PMID : 17212465. (Cité en pages 39, 47, 128 et 135.)

[Ashcroft 1976] N.W Ashcroft et N.D Mermin. Solide states physics. 1976. (Cité en page 31.)

[Banerjee 2005] S. Banerjee, M. Sardar, N. Gayathri, A. K. Tyagi et Baldev Raj. *Conductivity landscape of highly oriented pyrolytic graphite surfaces containing ribbons and edges.* Phys. Rev. B, vol. 72, no. 7, page 075418, Aug 2005. (Cité en page 46.)

[Bao 2010] Wenzhong Bao, Zeng Zhao, Hang Zhang, Gang Liu, Philip Kratz, Lei Jing, Jairo Velasco, Dmitry Smirnov et Chun Ning Lau. *Magnetoconductance Oscillations and Evidence for Fractional Quantum Hall States in Suspended Bilayer and Trilayer Graphene.* Phys. Rev. Lett., vol. 105, no. 24, page 246601, Dec 2010. (Cité en page 90.)

[Beenakker 1991] C.w. Beenakker et H. van Houten. *Quantum transport in semiconductor nanostructures.* Solid State Phys, vol. 44, pages 1–228, 1991. (Cité en page 117.)

[Berlincourt 1955] Ted G. Berlincourt et M. C. Steele. *Oscillatory Hall Effect, Magnetoresistance, and Magnetic Susceptibility of a Graphite Single Crystal.* Phys. Rev., vol. 98, no. 4, pages 956–961, May 1955. (Cité en page 102.)

[Blake 2007] P. Blake, E. W. Hill, A. H. Castro Neto, K. S. Novoselov, D. Jiang, R. Yang, T. J. Booth et A. K. Geim. *Making graphene visible.* Applied Physics Letters, vol. 91, no. 6, page 063124, 2007. (Cité en page 60.)

[Castro Neto 2009] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov et A. K. Geim. *The electronic properties of graphene.* Rev. Mod. Phys., vol. 81, no. 1, pages 109–162, Jan 2009. (Cité en pages 6 et 9.)

[Checkelsky 2008] Joseph G. Checkelsky, Lu Li et N. P. Ong. *Zero-Energy State in Graphene in a High Magnetic Field.* Phys. Rev. Lett., vol. 100, no. 20, page 206801, May 2008. (Cité en pages 65 et 77.)

[Checkelsky 2009] Joseph G. Checkelsky, Lu Li et N. P. Ong. *Divergent resistance at the Dirac point in graphene : Evidence for a transition in a high magnetic field.* Phys. Rev. B, vol. 79, no. 11, page 115434, Mar 2009. (Cité en page 72.)

[Chen 2009a] Fang Chen, Jilin Xia, David K. Ferry et Nongjian Tao. *Dielectric Screening Enhanced Performance in Graphene FET.* Nano Letters, vol. 9, no. 7, pages 2571–2574, 2009. PMID : 19496554. (Cité en page 39.)

[Chen 2009b] Jian-Hao Chen, W. G. Cullen, C. Jang, M. S. Fuhrer et E. D. Williams. *Defect Scattering in Graphene.* Phys. Rev. Lett., vol. 102, no. 23, page 236805, Jun 2009. (Cité en page 65.)

[Cho 2008] Sungjae Cho et Michael S. Fuhrer. *Charge transport and inhomogeneity near the minimum conductivity point in graphene.* Phys. Rev. B, vol. 77, no. 8, page 081402, Feb 2008. (Cité en page 40.)

[Cleuziou 2007] Cleuziou. Propriétés de transport électronique des nanotubes de carbone : des nanotubes hybrides au nano-squid. 2007. (Cité en page 63.)

[Cresti 2008] Alessandro Cresti, Norbert Nemec, Blanca Biel, Gabriel Niebler, Francois Triozon, Gianaurelio Cuniberti et Stephan Roche. *Charge transport in disordered graphene-based low dimensional materials.* Nano Research, vol. 1, pages 361–394, 2008. 10.1007/s12274-008-8043-2. (Cité en pages 7, 18, 20, 22, 26 et 128.)

[Das Sarma 2010a] Adam S. Hwang E. H. Rossi E. Das Sarma S. *Electronic transport in two dimentional graphene.* ArXiv, vol. ArXiv :1003.4731, 2010. (Cité en page 14.)

[Das Sarma 2010b] S. Das Sarma, E. H. Hwang et E. Rossi. *Theory of carrier transport in bilayer graphene.* Phys. Rev. B, vol. 81, no. 16, page 161407, Apr 2010. (Cité en pages 7 et 8.)

[Datta 1995] Supriyo Datta. Electronic transport in mesoscopic systems. Cambridge University Press, 1995. (Cité en pages 30, 32, 33, 35, 50 et 51.)

[Deshpande 2009] A. Deshpande, W. Bao, Z. Zhao, C. N. Lau et B. J. LeRoy. *Mapping the Dirac point in gated bilayer graphene.* Applied Physics Letters, vol. 95, no. 24, page 243502, 2009. (Cité en page 100.)

[Do 2009] V. Nam Do et P. Dollfus. *Effects of charged impurities and lattice defects on transport properties of nanoscale graphene structures.* Journal of Applied Physics, vol. 106, no. 2, page 023719, 2009. (Cité en page 74.)

[Du 2008] Xu Du, Ivan Skachko, Anthony Barker et Eva Y. Andrei. *Approaching ballistic transport in suspended graphene.* Nat Nano, vol. 3, no. 8, pages 491–495, Août 2008. (Cité en page 114.)

[Evaldsson 2008] M. Evaldsson, I. V. Zozoulenko, Hengyi Xu et T. Heinzel. *Edge-disorder-induced Anderson localization and conduction gap in graphene nanoribbons.* Phys. Rev. B, vol. 78, no. 16, page 161407, Oct 2008. (Cité en page 128.)

[Fuchs 2007] Jean-Noel Fuchs et Pascal Lederer. *Spontaneous Parity Breaking of Graphene in the Quantum Hall Regime.* Phys. Rev. Lett., vol. 98, no. 1, page 016803, Jan 2007. (Cité en page 56.)

[Fujita 1996] Mitsutaka Fujita, Katsunori Wakabayashi, Kyoko Nakada et Koichi Kusakabe. *Peculiar Localized State at Zigzag Graphite Edge.* Journal of the Physical Society of Japan, vol. 65, no. 7, pages 1920–1923, 1996. (Cité en page 24.)

[Gallagher 2010] Patrick Gallagher, Kathryn Todd et David Goldhaber-Gordon. *Disorder-induced gap behavior in graphene nanoribbons.* Phys. Rev. B, vol. 81, no. 11, page 115409, Mar 2010. (Cité en pages 86 et 128.)

[Geringer 2009] V. Geringer, M. Liebmann, T. Echtermeyer, S. Runte, M. Schmidt, R. Rückamp, M. C. Lemme et M. Morgenstern. *Intrinsic and extrinsic corrugation of monolayer graphene deposited on SiO_2.* Phys. Rev. Lett., vol. 102, no. 7, page 076102, Feb 2009. (Cité en page 135.)

[Giesbers 2009] A. J. M. Giesbers, L. A. Ponomarenko, K. S. Novoselov, A. K. Geim, M. I. Katsnelson, J. C. Maan et U. Zeitler. *Gap opening in the zeroth Landau level of graphene.* Phys. Rev. B, vol. 80, no. 20, page 201403, Nov 2009. (Cité en page 77.)

[Guinea 2006] F. Guinea, A. H. Castro Neto et N. M. R. Peres. *Electronic states and Landau levels in graphene stacks.* Phys. Rev. B, vol. 73, no. 24, page 245426, Jun 2006. (Cité en pages 11, 15 et 16.)

[Gunlycke 2008] D. Gunlycke et C. T. White. *Tight-binding energy dispersions of armchair-edge graphene nanostrips.* Phys. Rev. B, vol. 77, no. 11, page 115116, Mar 2008. (Cité en pages 22 et 23.)

[Gusynin 2006] V. P. Gusynin, V. A. Miransky, S. G. Sharapov et I. A. Shovkovy. *Excitonic gap, phase transition, and quantum Hall effect in graphene.* Phys. Rev. B, vol. 74, no. 19, page 195429, Nov 2006. (Cité en pages 80 et 124.)

[Han 2007] Melinda Y. Han, Barbaros Özyilmaz, Yuanbo Zhang et Philip Kim. *Energy Band-Gap Engineering of Graphene Nanoribbons.* Phys. Rev. Lett., vol. 98, no. 20, page 206805, May 2007. (Cité en page 128.)

[Han 2010] Melinda Y. Han, Juliana C. Brant et Philip Kim. *Electron Transport in Disordered Graphene Nanoribbons.* Phys. Rev. Lett., vol. 104, no. 5, page 056801, Feb 2010. (Cité en page 133.)

[Huang 2007] Y C Huang, C P Chang et M F Lin. *Magnetic and quantum confinement effects on electronic and optical properties of graphene ribbons.* Nanotechnology, vol. 18, no. 49, page 495401, 2007. (Cité en page 25.)

[Hwang 2007a] E. H. Hwang, S. Adam et S. Das Sarma. *Carrier Transport in Two-Dimensional Graphene Layers.* Phys. Rev. Lett., vol. 98, no. 18, page 186806, May 2007. (Cité en pages 74, 77 et 99.)

[Hwang 2007b] E. H. Hwang, S. Adam et S. Das Sarma. *Transport in chemically doped graphene in the presence of adsorbed molecules.* Phys. Rev. B, vol. 76, no. 19, page 195421, Nov 2007. (Cité en page 72.)

[Hwang 2010] E. H. Hwang et S. Das Sarma. *Insulating behavior in metallic bilayer graphene : Interplay between density inhomogeneity and temperature.* Phys. Rev. B, vol. 82, no. 8, page 081409, Aug 2010. (Cité en pages 98 et 99.)

[Ihnatsenka 2009] S. Ihnatsenka et G. Kirczenow. *Conductance quantization in strongly disordered graphene ribbons.* Phys. Rev. B, vol. 80, no. 20, page 201407, Nov 2009. (Cité en pages 46, 48 et 128.)

[Ishigami 2007] Masa Ishigami, J. H. Chen, W. G. Cullen, M. S. Fuhrer et E. D. Williams. *Atomic Structure of Graphene on SiO2.* Nano Letters, vol. 7, no. 6, pages 1643–1648, 2007. (Cité en page 135.)

[Jiang 2007] Z. Jiang, Y. Zhang, H. L. Stormer et P. Kim. *Quantum Hall States near the Charge-Neutral Dirac Point in Graphene.* Phys. Rev. Lett., vol. 99, no. 10, page 106802, Sep 2007. (Cité en pages 71 et 80.)

[Jung 2009] J. Jung et A. H. MacDonald. *Theory of the magnetic-field-induced insulator in neutral graphene sheets.* Phys. Rev. B, vol. 80, no. 23, page 235417, Dec 2009. (Cité en page 72.)

[Katsnelson 006c] M. I. Katsnelson. *Zitterbewegung, chirality, and minimal conductivity in graphene.* The European Physical Journal B, vol. 51, page 157, 2006c. (Cité en pages 38 et 135.)

[Kim 2009] Seyoung Kim, Junghyo Nah, Insun Jo, Davood Shahrjerdi, Luigi Colombo, Zhen Yao, Emanuel Tutuc et Sanjay K. Banerjee. *Realization of a high mobility dual-gated graphene field-effect transistor with Al[sub 2]O[sub 3] dielectric.* Applied Physics Letters, vol. 94, no. 6, page 062107, 2009. (Cité en pages 81, 91 et 114.)

[Klitzing 1980] K. v. Klitzing, G. Dorda et M. Pepper. *New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance.* Phys. Rev. Lett., vol. 45, no. 6, pages 494–497, Aug 1980. (Cité en page 48.)

[Klitzing 1985] Klitzing. *THE QUANTIZED HALL EFFECT*. Nobel lecture, vol. 45, 1985. (Cité en page 53.)

[Kobayashi 2006] Yousuke Kobayashi, Ken-ichi Fukui, Toshiaki Enoki et Koichi Kusakabe. *Edge state on hydrogen-terminated graphite edges investigated by scanning tunneling microscopy*. Phys. Rev. B, vol. 73, no. 12, page 125415, Mar 2006. (Cité en page 46.)

[Kopelevich 2009] Y. Kopelevich, B. Raquet, M. Goiran, W. Escoffier, R. R. da Silva, J. C. Medina Pantoja, I. A. Luk'yanchuk, A. Sinchenko et P. Monceau. *Searching for the Fractional Quantum Hall Effect in Graphite*. Phys. Rev. Lett., vol. 103, no. 11, page 116802, Sep 2009. (Cité en page 108.)

[Koshino 2009] Mikito Koshino et Edward McCann. *Gate-induced interlayer asymmetry in ABA-stacked trilayer graphene*. Phys. Rev. B, vol. 79, no. 12, page 125443, Mar 2009. (Cité en pages 16 et 17.)

[Koshino 2010a] Mikito Koshino. *Interlayer screening effect in graphene multilayers with ABA and ABC stacking*. Phys. Rev. B, vol. 81, no. 12, page 125304, Mar 2010. (Cité en page 95.)

[Koshino 2010b] Mikito Koshino et Edward McCann. *Parity and valley degeneracy in multilayer graphene*. Phys. Rev. B, vol. 81, no. 11, page 115315, Mar 2010. (Cité en pages 11 et 95.)

[Lassagne 2006] Benjamin Lassagne. These : Transport électronique dans les nanotubes de carbone, étude sous champ magnétique. 2006. (Cité en page 59.)

[Lherbier 2008] Aurélien Lherbier, Blanca Biel, Yann-Michel Niquet et Stephan Roche. *Transport Length Scales in Disordered Graphene-Based Materials : Strong Localization Regimes and Dimensionality Effects*. Phys. Rev. Lett., vol. 100, no. 3, page 036803, Jan 2008. (Cité en pages 44 et 45.)

[Li 2008] Xiaolin Li, Xinran Wang, Li Zhang, Sangwon Lee et Hongjie Dai. *Chemically Derived, Ultrasmooth Graphene Nanoribbon Semiconductors*. Science, vol. 319, no. 5867, pages 1229–1232, 2008. (Cité en pages 64 et 129.)

[Lin 2008] Yu-Ming Lin, Vasili Perebeinos, Zhihong Chen et Phaedon Avouris. *Electrical observation of subband formation in graphene nanoribbons*. Phys. Rev. B, vol. 78, no. 16, page 161409, Oct 2008. (Cité en page 128.)

[Liyuan Zhang 2011] J. Camacho M. Khodas Liyuan Zhang Yan Zhang et I. A. Zaliznyak1. *The experimental observation of quantum Hall effect of l = 3 chiral charge carriers in trilayer graphene*. arXiv.org / cond-mat, vol. arXiv :1103.6023v1, 2011. (Cité en pages 89, 97 et 105.)

[Lui 2011] Chun Hung Lui, Zhiqiang Li, Zheyuan Chen, Paul V. Klimov, Louis E. Brus et Tony F. Heinz. *Imaging Stacking Order in Few-Layer Graphene*. Nano Letters, vol. 11, no. 1, pages 164–169, 2011. (Cité en page 97.)

[Luk'yanchuk 2004] Igor A. Luk'yanchuk et Yakov Kopelevich. *Phase Analysis of Quantum Oscillations in Graphite*. Phys. Rev. Lett., vol. 93, no. 16, page 166402, Oct 2004. (Cité en pages 102, 105 et 108.)

[M. 2009] Craciun M., Russo S., Morpurgo A. Yamamoto M. Oostinga J. et Tarucha S. *Trilayer graphene is a semimetal with a gate-tunable band overlap.* Nat Nano, vol. 4, no. 6, pages 383–388, Juin 2009. (Cité en pages 90, 93 et 100.)

[Martin 2008] J. Martin, N. Akerman, G. Ulbricht, T. Lohmann, J. H. Smet, K. von Klitzing et A. Yacoby. *Observation of electron-hole puddles in graphene using a scanning single-electron transistor.* Nat Phys, vol. 4, no. 2, pages 144–148, Février 2008. (Cité en pages 40, 41, 71 et 77.)

[McClure 1957] J. W. McClure. *Band Structure of Graphite and de Haas-van Alphen Effect.* Phys. Rev., vol. 108, no. 3, pages 612–618, Nov 1957. (Cité en page 93.)

[Miller 2010] David L. Miller, Kevin D. Kubista, Gregory M. Rutter, Ming Ruan, Walt A. de Heer, Markus Kindermann, Phillip N. First et Joseph A. Stroscio. *Real-space mapping of magnetically quantized graphene states.* Nat Phys, vol. 6, no. 10, pages 811–817, Octobre 2010. (Cité en page 40.)

[Min 2008a] Hongki Min et A. H. MacDonald. *Chiral decomposition in the electronic structure of graphene multilayers.* Phys. Rev. B, vol. 77, no. 15, page 155416, Apr 2008. (Cité en pages 89 et 106.)

[Min 2008b] Hongki Min et Allan H. MacDonald. *Electronic Structure of Multilayer Graphene.* Progress of Theoretical Physics Supplement, vol. 176, pages 227–252, 2008. (Cité en pages 11, 12, 13, 17, 102 et 106.)

[Moser 2007] J. Moser, A. Barreiro et A. Bachtold. *Current-induced cleaning of graphene.* Applied Physics Letters, vol. 91, no. 16, page 163513, 2007. (Cité en page 65.)

[Mucciolo 2009] E. R. Mucciolo, A. H. Castro Neto et C. H. Lewenkopf. *Conductance quantization and transport gaps in disordered graphene nanoribbons.* Phys. Rev. B, vol. 79, no. 7, page 075407, Feb 2009. (Cité en pages 125 et 128.)

[Nakamura 2008a] Masaaki Nakamura et Lila Hirasawa. *Electric transport and magnetic properties in multilayer graphene.* Phys. Rev. B, vol. 77, no. 4, page 045429, Jan 2008. (Cité en page 89.)

[Nakamura 2008b] Masaaki Nakamura, Lila Hirasawa et Ken-Ichiro Imura. *Quantum Hall effect in bilayer and multilayer graphene with finite Fermi energy.* Phys. Rev. B, vol. 78, no. 3, page 033403, Jul 2008. (Cité en page 89.)

[Nanot 2009] Sébastien Nanot. These : Structure de bande et transport électronique dans les nanotubes de carbone sous champ magnétique intense. 2009. (Cité en pages 36, 37 et 59.)

[Niimi 2006] Y. Niimi, T. Matsui, H. Kambara, K. Tagami, M. Tsukada et Hiroshi Fukuyama. *Scanning tunneling microscopy and spectroscopy of the electronic local density of states of graphite surfaces near monoatomic step edges.* Phys. Rev. B, vol. 73, no. 8, page 085421, Feb 2006. (Cité en page 46.)

[Nomura 2006] Kentaro Nomura et Allan H. MacDonald. *Quantum Hall Ferromagnetism in Graphene*. Phys. Rev. Lett., vol. 96, no. 25, page 256602, Jun 2006. (Cité en pages 80 et 124.)

[Novoselov 2005a] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, I. V. Grigorieva, S. V. Dubonos et A. A. Firsov. *Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene*. Nature, vol. 438, no. 7065, pages 197–200, Novembre 2005. (Cité en pages 39, 40, 54, 56, 71, 89, 102 et 104.)

[Novoselov 2005b] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. J. Booth, V. V. Khotkevich, S. V. Morozov et A. K. Geim. *Two-dimensional atomic crystals*. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, vol. 102, no. 30, pages 10451–10453, 2005. (Cité en page 89.)

[Novoselov 2006] K. S. Novoselov, E. McCann, S. V. Morozov, V. I. Fal/'ko, M. I. Katsnelson, U. Zeitler, D. Jiang, F. Schedin et A. K. Geim. *Unconventional quantum Hall effect and Berry/'s phase of 2[pi] in bilayer graphene*. Nat Phys, vol. 2, no. 3, pages 177–180, Mars 2006. (Cité en pages 55, 56 et 89.)

[Orlita 2009] M. Orlita, C. Faugeras, J. M. Schneider, G. Martinez, D. K. Maude et M. Potemski. *Graphite from the Viewpoint of Landau Level Spectroscopy : An Effective Graphene Bilayer and Monolayer*. Phys. Rev. Lett., vol. 102, no. 16, page 166401, Apr 2009. (Cité en page 102.)

[Peres 2006] N. M. R. Peres, A. H. Castro Neto et F. Guinea. *Conductance quantization in mesoscopic graphene*. Phys. Rev. B, vol. 73, no. 19, page 195411, May 2006. (Cité en pages 43 et 44.)

[Poumirol 2010a] J M Poumirol, W Escoffier, A Kumar, M Goiran, B Raquet et J M Broto. *Electron-hole coexistence in disordered graphene probed by high-field magneto-transport*. New Journal of Physics, vol. 12, no. 8, page 083006, 2010. (Cité en page 84.)

[Poumirol 2010b] Jean-Marie Poumirol, Alessandro Cresti, Stephan Roche, Walter Escoffier, Michel Goiran, Xinran Wang, Xiaolin Li, Hongjie Dai et Bertrand Raquet. *Edge magnetotransport fingerprints in disordered graphene nanoribbons*. Phys. Rev. B, vol. 82, no. 4, page 041413, Jul 2010. (Cité en page 42.)

[Poumirol 2010c] Jean-Marie Poumirol, Walter Escoffier, Amit Kumar, Bertrand Raquet et Michel Goiran. *Impact of disorder on the $\nu = 2$ quantum Hall plateau in graphene*. Phys. Rev. B, vol. 82, no. 12, page 121401, Sep 2010. (Cité en page 101.)

[Querlioz 2008] D. Querlioz, Y. Apertet, A. Valentin, K. Huet, A. Bournel, S. Galdin-Retailleau et P. Dollfus. *Suppression of the orientation effects on bandgap in graphene nanoribbons in the presence of edge disorder*. Applied Physics Letters, vol. 92, no. 4, page 042108, 2008. (Cité en page 125.)

[Rossi 2009] Enrico Rossi, S. Adam et S. Das Sarma. *Effective medium theory for disordered two-dimensional graphene*. Phys. Rev. B, vol. 79, no. 24, page 245423, Jun 2009. (Cité en page 72.)

[Rozhkov 2009] A. V. Rozhkov, S. Savel'ev et Franco Nori. *Electronic properties of armchair graphene nanoribbons.* Phys. Rev. B, vol. 79, no. 12, page 125420, Mar 2009. (Cité en page 21.)

[Sarma 2009] S. Das Sarma et Kun Yang. *The enigma of the [nu]=0 quantum Hall effect in graphene.* Solid State Communications, vol. 149, no. 37-38, pages 1502 – 1506, 2009. (Cité en page 86.)

[Shon 1998] Nguyen Hong Shon et Tsuneya Ando. *Quantum Transport in Two-Dimensional Graphite System.* Journal of the Physical Society of Japan, vol. 67, no. 7, pages 2421–2429, 1998. (Cité en page 39.)

[Shylau 2010] A. A. Shylau, I. V. Zozoulenko, H. Xu et T. Heinzel. *Generic suppression of conductance quantization of interacting electrons in graphene nanoribbons in a perpendicular magnetic field.* Phys. Rev. B, vol. 82, no. 12, page 121410, Sep 2010. (Cité en pages 26 et 140.)

[Slonczewski 1958] J. C. Slonczewski et P. R. Weiss. *Band Structure of Graphite.* Phys. Rev., vol. 109, no. 2, pages 272–279, Jan 1958. (Cité en page 93.)

[Son 2006] Young-Woo Son, Marvin L. Cohen et Steven G. Louie. *Energy Gaps in Graphene Nanoribbons.* Phys. Rev. Lett., vol. 97, no. 21, page 216803, Nov 2006. (Cité en pages 121 et 128.)

[Stampfer 2009] C. Stampfer, J. Güttinger, S. Hellmüller, F. Molitor, K. Ensslin et T. Ihn. *Energy Gaps in Etched Graphene Nanoribbons.* Phys. Rev. Lett., vol. 102, no. 5, page 056403, Feb 2009. (Cité en page 128.)

[Thiti Taychatanapat 2011] Takashi Taniguchi Thiti Taychatanapat Kenji Watanabe et Pablo Jarillo-Herrero. *Quantum Hall effect and Landau level crossing of Dirac fermions in trilayer graphene.* arXiv.org / cond-mat, vol. arXiv :1104.0438v1, 2011. (Cité en pages 89, 97 et 108.)

[Tikhonenko 2008] F. V. Tikhonenko, D. W. Horsell, R. V. Gorbachev et A. K. Savchenko. *Weak Localization in Graphene Flakes.* Phys. Rev. Lett., vol. 100, no. 5, page 056802, Feb 2008. (Cité en page 134.)

[Tiwari 2009] Rakesh P. Tiwari et D. Stroud. *Model for the magnetoresistance and Hall coefficient of inhomogeneous graphene.* Phys. Rev. B, vol. 79, no. 16, page 165408, Apr 2009. (Cité en page 73.)

[Tworzydło 2006] J. Tworzydło, B. Trauzettel, M. Titov, A. Rycerz et C. W. J. Beenakker. *Sub-Poissonian Shot Noise in Graphene.* Phys. Rev. Lett., vol. 96, no. 24, page 246802, Jun 2006. (Cité en page 38.)

[Wakabayashi 1999] Katsunori Wakabayashi, Mitsutaka Fujita, Hiroshi Ajiki et Manfred Sigrist. *Electronic and magnetic properties of nanographite ribbons.* Phys. Rev. B, vol. 59, no. 12, pages 8271–8282, Mar 1999. (Cité en page 111.)

[Wakabayashi 2010] Katsunori Wakabayashi, Ken ichi Sasaki, Takeshi Nakanishi et Toshiaki Enoki. *Electronic states of graphene nanoribbons and analytical solutions.* Science and Technology of Advanced Materials, vol. 11, no. 5, page 054504, 2010. (Cité en pages 19, 21 et 24.)

[Wallace 1947] P. R. Wallace. *The Band Theory of Graphite.* Phys. Rev., vol. 71, no. 9, pages 622–634, May 1947. (Cité en pages 5, 7, 8 et 102.)

[Wang 2008] Xinran Wang, Yijian Ouyang, Xiaolin Li, Hailiang Wang, Jing Guo et Hongjie Dai. *Room-Temperature All-Semiconducting Sub-10-nm Graphene Nanoribbon Field-Effect Transistors.* Phys. Rev. Lett., vol. 100, no. 20, page 206803, May 2008. (Cité en pages 111, 113, 128 et 135.)

[Williams 2009] J. R. Williams, D. A. Abanin, L. DiCarlo, L. S. Levitov et C. M. Marcus. *Quantum Hall conductance of two-terminal graphene devices.* Phys. Rev. B, vol. 80, no. 4, page 045408, Jul 2009. (Cité en page 119.)

[Woollam 1970] John A. Woollam. *Spin Splitting, Fermi Energy Changes, and Anomalous g Shifts in Single-Crystal and Pyrolytic Graphite.* Phys. Rev. Lett., vol. 25, no. 12, pages 810–813, Sep 1970. (Cité en page 102.)

[Xue 2011] Jiamin Xue, Javier Sanchez-Yamagishi, Danny Bulmash, Philippe Jacquod, Aparna Deshpande, K. Watanabe, T. Taniguchi, Pablo Jarillo-Herrero et Brian J. LeRoy. *Scanning tunnelling microscopy and spectroscopy of ultra-flat graphene on hexagonal boron nitride.* Nat Mater, vol. 10, no. 4, pages 282–285, Avril 2011. (Cité en pages 41 et 88.)

[Zhang 2005] Yuanbo Zhang, Yan-Wen Tan, Horst L. Stormer et Philip Kim. *Experimental observation of the quantum Hall effect and Berry's phase in graphene.* Nature, vol. 438, no. 7065, pages 201–204, Novembre 2005. (Cité en page 104.)

[Zhang 2006] Y. Zhang, Z. Jiang, J. P. Small, M. S. Purewal, Y.-W. Tan, M. Fazlollahi, J. D. Chudow, J. A. Jaszczak, H. L. Stormer et P. Kim. *Landau-Level Splitting in Graphene in High Magnetic Fields.* Phys. Rev. Lett., vol. 96, no. 13, page 136806, Apr 2006. (Cité en pages 56, 57, 71, 77 et 80.)

[Zheng 2007] Huaixiu Zheng, Z. F. Wang, Tao Luo, Q. W. Shi et Jie Chen. *Analytical study of electronic structure in armchair graphene nanoribbons.* Phys. Rev. B, vol. 75, no. 16, page 165414, Apr 2007. (Cité en pages 19 et 20.)

[Zhu 2009] Wenjuan Zhu, Vasili Perebeinos, Marcus Freitag et Phaedon Avouris. *Carrier scattering, mobilities, and electrostatic potential in monolayer, bilayer, and trilayer graphene.* Phys. Rev. B, vol. 80, no. 23, page 235402, Dec 2009. (Cité en page 90.)

[Zou 2010] K. Zou et J. Zhu. *Transport in gapped bilayer graphene : The role of potential fluctuations.* Phys. Rev. B, vol. 82, no. 8, page 081407, Aug 2010. (Cité en page 100.)

Auteur : Jean-Marie Poumirol
Titre : Etude des propriétés électroniques du graphène et des systèmes à base de graphène sous champs magnétiques intenses
Directeurs de thèse : Michel Goiran et walter Escoffier
Spécialité : Nanophysique

Lieu et date de soutenance : Salle de séminaire du LNCMI, 19 Mai 2011
Intitulé et adresse du laboratoire : LNCMI-T, CNRS, UPR 3228
Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, Site de Toulouse
143 Avenue de Rangueil, 31400 Toulouse

Résumé : Cette thèse présente des mesures de transport électronique dans des systèmes bi-dimensionels et uni-dimensionels à base de graphène sous champ magnétique pulsé (60T). L'objectif de ces travaux consiste à sonder la dynamique des porteurs de charge en modifiant la densité d'états du système par l'application d'un champ magnétique. Une première partie est consacrée à l'étude de l'influence des îlots électrons-trous sur les propriétés de transport du graphène au voisinage du point de neutralité de charge. Nous avons constaté l'apparition de fluctuations de la magnéto-résistance liée à la transition progressive des îlots de taille finie dans le régime quantique lorsque le champ magnétique augmente. Nous avons aussi montré que la variation de l'énergie de Fermi, liée à l'augmentation de la dégénérescence orbitale des niveaux de Landau, est directement responsable d'une modification du ratio entre électrons et trous. Dans une deuxième partie consacrée à l'étude des nanorubans de graphène, nous avons exploré deux gammes de largeur différentes. Dans les rubans larges (W>60nm), la quantification de la résistance a été observée révélant ainsi une signature évidente de la quantification du spectre énergétique en niveaux de Landau. Le confinement magnétique des porteurs de charge sur les bords des nanorubans a permis de mettre en évidence, pour la première fois, la levée de dégénérescence de vallée liée à la configuration armchair du ruban. Pour des rubans plus étroits (W<30nm), en présence de défauts de bord et d'impuretés chargées, la formation progressive des états de bords chiraux donne lieu à une magnéto-conductance positive quelque soit la densité de porteurs. Enfin, la dernière partie traite du magnéto-transport dans le graphene multi-feuillet. En particulier, nous avons observé l'effet Hall quantique dans les systèmes tri-couche de graphène. Une étude comparative des résultats expérimentaux avec des simulations numériques a permis de déterminer l'empilement rhombohedral des trois couches de graphene constituant l'échantillon.

Mots-clefs :

graphène, graphène bi-couche, graphène tri-couche, nanoruban, champs magnétiques, niveaux de Landau, effet Hall quantique, Transport quantique.