

**THÈSE DE DOCTORAT DE  
L'UNIVERSITÉ AIX-MARSEILLE**

Spécialité

**Matière Condensée et Nanosciences**

École doctorale Physique et Sciences de la Matière (Marseille)

Présentée par

**Tuhiti Malinowski**

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ AIX-MARSEILLE**

Sujet de thèse

**Électroluminescence à l'échelle du contact métallique  
ponctuel**

soutenance le 12 Juillet 2016, 10h30 au CINaM Campus de Luminy

devant le jury composé de :

M. Alexandre BOUHELIER	Rapporteur
M. Philippe DUMAS	Directeur de thèse
M. Jean-Jacques GREFFET	Examineur
M. Hubert KLEIN	Co-Directeur de thèse
M. Jacques PERETTI	Examineur
M. Guillaume SCHULL	Rapporteur
M. Fabrice VALLÉE	Examineur



## Remerciements

Je tenais à remercier Alexandre Bouhelier et Guillaume Schull d'avoir accepté de rapporter ma thèse et Jean-Jacques Greffet, Jacques Peretti et Fabrice Vallée de faire partie de mon jury.

Les quatre années passées au sein du groupe de recherche Sources Sondes Ponctuelles du CINaM ont été très enrichissantes. J'ai apprécié l'ambiance qui y règne ainsi que les réunions "hebdomadaires" très stimulantes où l'on pouvait discuter de sciences.

Je remercie particulièrement Philippe Dumas pour son encadrement tout au long de cette thèse, ses conseils et pour le temps qu'il m'a consacré pendant la rédaction de ce manuscrit de thèse, jours fériés et dimanche inclus.

Je tiens également à remercier spécialement Hubert Klein pour son accompagnement efficace tant au niveau scientifique qu'administratif. Il m'a initié au développement informatique ainsi qu'aux techniques expérimentales associées à ma thèse. J'ai apprécié les moments passés à discuter autour d'un bon café ainsi que tout le soutien moral qu'il a pu m'apporter. Un merci aussi pour les invitations à domicile pour partager un verre ou deux dans une ambiance plus détendue.

Je remercie aussi Roger Morin pour son encadrement au sein du groupe SSP ainsi que les moments passés à discuter de mes résultats. Son regard avisé m'a permis d'approcher les résultats sous un autre angle.

Je remercie Mehdi Lagaize pour sa disponibilité ainsi que son efficacité à la fabrication de pièces indispensables à mon projet, respectant les délais d'un thésard.

Un merci également à Alain DeGiovanni et Laurent Lapena pour les discussions que j'ai pu avoir avec eux à propos de physique mais aussi de mécaniques.

Je salue tous les autres membres de SSP, Nadine Candoni, Romain Grossier, Juan Olivez, Evelyne Salancon, Vika Tishkova-Leoni, Thomas Leoni, Stéphane Vessler. Je salue aussi Maksym Iazikov, ainsi que les doctorants Monzer Alwan, Charline Gérard, Roland Roche, Shuheng Zhang, et les stagiaires de SSP, particulièrement Marion Gil.

Je remercie Suzanne Giorgio et Jean-Marc Gay pour l'accompagnement à Polytech' Marseille concernant mes fonctions de moniteur et d'ATER.

J'en profite aussi pour remercier, Dominique Dumas, qui a su soutenir "l'effort de guerre" pendant la phase de rédaction rue d'Endoume.

Un grand merci à Simon Tusch pour ses remarques rigoureuses de mathématiques et d'ajustements numériques qui m'ont permis de mener à terme l'analyse de mes résultats expérimentaux.

Comment oublier les sessions d'escalade avec Gabriel Doutre, déjà docteur.

Je remercie aussi ma famille Polynésienne et ma belle-famille Tretsoise qui ont su m'accompagner et me soutenir pendant ces quatre années passées à Luminy.

Et plus particulièrement, un très grand merci à ma femme, Livia, sans qui ce travail n'aurait probablement pas abouti. Son soutien exceptionnel a été crucial pendant une période très difficile de ma vie, à la fois professionnelle mais aussi personnelle.

*A, feu Thadeuch.*

# Glossaire

## Abréviation

STM : Microscope à effet tunnel

STM-BJ : Jonction brisée par microscope à effet tunnel

STM-LE : Emission de lumière par microscope à effet tunnel

MCBJ : Jonction Brisée Contrôlée Mécaniquement

CMP : Contact Métallique Ponctuel

NA : Ouverture Numérique

## Grandeurs et constantes physiques

$h$  : Constante de Planck

$\hbar$  : Constante de Planck réduite

$k_B$  : Constante de Boltzmann

$e$  : Charge de l'électron

$V_0$  : Tension électrique appliquée au système résistance série et jonction

$R_s$  : Résistance série

$G$  : Conductance de la jonction

$G_0 = 2e^2/h$  : Quantum de conductance

$I$  : Courant électrique circulant dans le circuit

$V_{bias}$  : Tension de polarisation de la jonction

$v_z$  : Vitesse d'étirement des électrodes

$E$  : Énergie des photons

$T_e$  : Température du gaz d'électrons chauds

$T_L$  : Température du réseau

$L(E, T_e)$  : Luminance spectrale

$N_c$  : Nombre de coups mesurés par la caméra CCD

$\Omega_f$  : Fréquence de modulation du signal IR

$P_0$  : Puissance optique mesurée par le détecteur InAsSb

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>III</b>
<b>Glossaire</b>	<b>VII</b>
<b>Contexte de l'étude</b>	<b>7</b>
<b>I Matériels et Méthodes</b>	<b>11</b>
<b>1 Jonction brisée contrôlée mécaniquement</b>	<b>13</b>
1.1 Principe . . . . .	13
1.2 Fabrication des échantillons . . . . .	14
<b>2 Mesures électriques</b>	<b>19</b>
2.1 Protocole de mesure . . . . .	19
2.2 Évolution spontanée de la conductance au cours du temps . . . . .	21
<b>3 Chaîne de mesure optique</b>	<b>25</b>
3.1 Détection de lumière visible . . . . .	25
3.2 Spectroscopie visible . . . . .	28
3.3 Rayonnement dans la gamme du proche infrarouge. . . . .	33

<b>4 Outils de traitements numériques des données</b>	<b>37</b>
4.1 Réduction de nuages de points . . . . .	37
4.2 Comparaison de spectres . . . . .	40
<b>II Résultats et Discussion</b>	<b>41</b>
<b>5 Émission de lumière dans le visible</b>	<b>43</b>
5.1 Image de la jonction . . . . .	43
5.2 Étude de l'intensité lumineuse . . . . .	45
<b>6 Spectroscopie Visible</b>	<b>53</b>
6.1 Spectroscopie optique . . . . .	53
6.2 Modulation plasmonique par la cavité . . . . .	56
6.3 Similarité spectrale, évolution de la forme des spectres . . . . .	58
<b>7 Émission de lumière dans l'infrarouge</b>	<b>63</b>
7.1 Signal infrarouge . . . . .	63
7.2 Répartition spectrale du signal infrarouge . . . . .	64
7.3 Signal infrarouge fonction de la puissance électrique injectée. . . . .	65
<b>8 Au delà du modèle de Kiev</b>	<b>69</b>
8.1 $\alpha$ dépend de la conductance $G$ . . . . .	69
8.2 Estimation du volume du gaz d'électrons chauds . . . . .	72
8.3 Nouvelle expression de l'équation $k_B T_e = \sqrt{\alpha(G) P_e}$ . . . . .	75
<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>79</b>
<b>A Étalonnage du dispositif de spectroscopie optique visible</b>	<b>81</b>

# Résumé

## Chapitre 1 : Jonction brisée contrôlée mécaniquement (MCBJ)

*Dans lequel nous présentons au lecteur le principe de fonctionnement d'une MCBJ. Il voit aussi le nouveau protocole de fabrication des échantillons en or.*

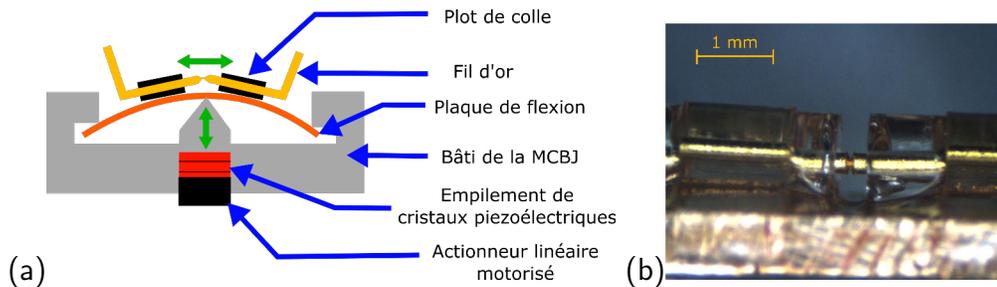


FIGURE 1 – (a) Schéma de la MCBJ. (b) Image du fil d'or, avant rupture, entaillé collé dans les capillaires.

## Chapitre 2 : Mesures électriques

*Dans lequel le lecteur découvre le montage électrique nous permettant la mesure du courant  $I$  dont nous déduisons la tension de polarisation de la jonction  $V_{bias}$  ainsi que sa conductance  $G$ . Il y constate les effets de la vitesse d'élongation et de la tension de polarisation de la jonction sur la durée de vie des contacts atomiques à l'air et à l'ambiante. Nous présentons au lecteur une méthode adaptée et innovante d'étude des contacts métalliques ponctuels. Elle repose sur la capture au vol de l'état de la jonction que nous laissons évoluer à température ambiante tant que la conductance reste dans une fenêtre prédéterminée.*

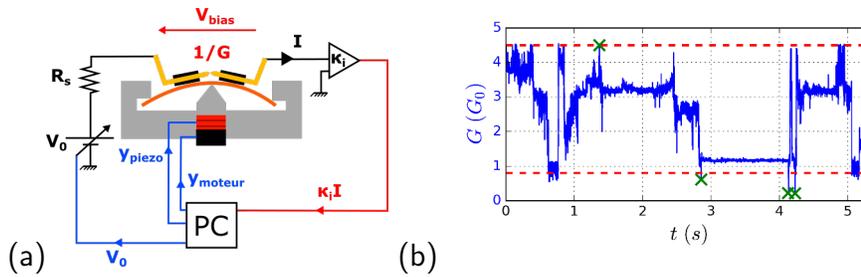


FIGURE 2 – (a) Chaîne de contrôle électrique et de commandes de la MCBJ. (b) Évolution temporelle de la conductance  $G$  ici contrôlée dans la fenêtre  $[ 0.8 G_0 ; 4.5 G_0 ]$  (pointillés rouges).

### Chapitre 3 : Chaîne de mesures optiques

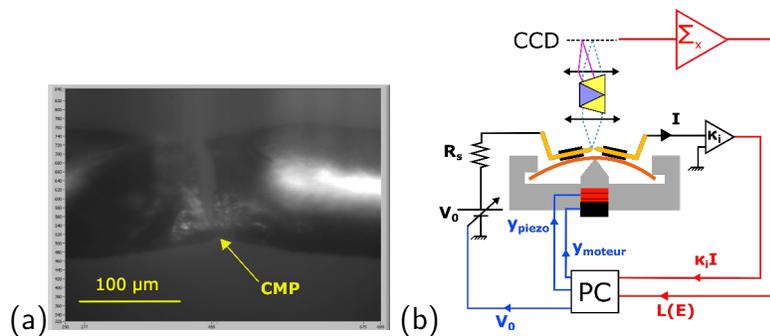


FIGURE 3 – (a) Image de l'échantillon devenu jonction brisée. (b) Chaîne d'acquisition enrichie des mesures optiques (ici en mode spectroscopie visible).

Dans lequel le lecteur découvre nos systèmes de mesures optiques dans le visible et l'infrarouge. L'utilisation d'un microscope inversé et d'une caméra CCD permet notamment d'obtenir l'image de la jonction. En utilisant le mode de groupage de la CCD, nous disposons aussi d'une solution de comptage de photons issus de la source ponctuelle. Le lecteur y découvre un montage original de spectroscopie mettant à profit la dispersion de la lumière visible au travers d'un prisme à vision directe. Un détecteur monocanal InAsSb est utilisé dans l'infrarouge. Il reçoit la lumière collectée par un objectif à miroir Cassegrain, mécaniquement modulé et éventuellement spectralement filtré.

### Chapitre 4 : Outils de traitements numériques des données

Nous y présentons au lecteur les principaux outils de traitements numériques que nous avons utilisés. En effet, travaillant à température ambiante nous accumulons une

très grande quantité de données. Par souci de rigueur nous traitons statistiquement ces données avec un certain formalisme. Nous y montrons comment nous discrétisons la distribution continue d'une variable. Cette distribution discrète facilite l'analyse par classes des données. Nous introduisons aussi un outil de comparaison de la forme des spectres optiques.

## Chapitre 5 : Émission de lumière dans le visible

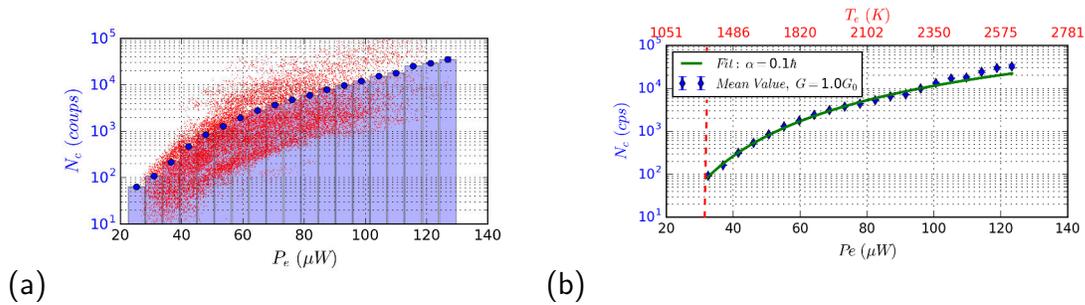


FIGURE 4 – (a) Pour la classe de données autour du quantum de conductance de Landauer,  $2e^2/h$ , évolution de la quantité de signal visible en fonction de la puissance électrique injectée. (b) Ajustement pour déterminer l'efficacité de chauffage. On obtient  $k_b T_e \simeq \sqrt{0.1 \hbar P_e}$ .

Dans lequel la quantité de lumière collectée dans le visible est analysée. Le montage, associé à notre MCBJ, nous permet d'imager la jonction et de recueillir le signal émis depuis le CMP. Nous présentons au lecteur l'évolution du signal en fonction des grandeurs électriques. Une étude quantitative du signal optique émis en fonction de la puissance électrique injectée est réalisée dans la classe de donnée correspondant à des contacts quasi-monoatomiques ( $G \simeq 2e^2/h$ ). Notre approche fait suite aux travaux du groupe de Marseille, qui s'appuyaient sur un modèle développé par le groupe de Kiev. Les résultats y sont décrits comme le rayonnement (de type corps noir) d'un gaz d'électrons chauds à des températures de l'ordre de 2000 K. Par un ajustement numérique nous déterminons l'efficacité de chauffage de ce gaz d'électrons chauds.

## Chapitre 6 : Spectroscopie Visible

Dans lequel la lumière émise, sous une tension de polarisation  $V_{bias}$ , est spectralement analysée. Nous y reportons la détection de photons d'énergie  $E$  supérieure à  $2eV_{bias}$

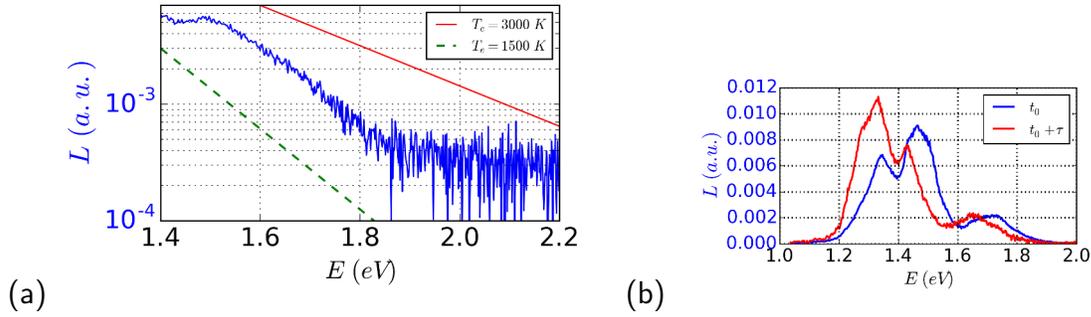


FIGURE 5 – (a) Allure d'un spectre comptabilisant la lumière pendant dix minutes. La pente correspond à une température électronique de l'ordre de 1500 K. (b) Deux spectres normalisés en intensité, enregistrés à une seconde d'intervalle. Les spectres ne sont pas corrigés de la réponse spectrale du détecteur. Les résonances plasmoniques évoluent, signe que la nanojonction a géométriquement évolué.

pour  $V_{bias} = 0.56 V$ . Sur des durées d'acquisition longues, les spectres moyens confirment les rayonnements d'un gaz chaud. Sur de plus courtes durées, les spectres acquis permettent de faire le lien avec les prédictions et mesures d'autres groupes en exhibant des émissions structurées typiques de résonances plasmoniques de cavité. En effet sur ces durées la cavité est stable et ces modes n'évoluent pas sensiblement.

## Chapitre 7 : Émission de lumière dans l'infrarouge

Dans lequel le lecteur trouve les preuves expérimentales de l'existence d'infrarouges émis depuis des contacts métalliques ponctuels. Le même type d'analyse que dans le visible est menée. La bande spectrale de réponse du détecteur peut être réduite en utilisant une fenêtre en germanium.

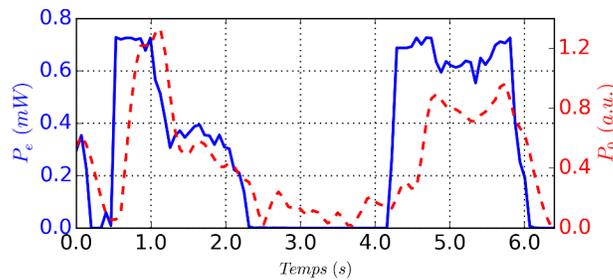


FIGURE 6 – Corrélation entre les évolutions temporelles de la puissance électrique injectée et de la puissance optique infrarouge détectée.

## Chapitre 8 : Discussion sur le mécanisme d'échauffement du gaz d'électrons

*Dans lequel nous discutons ce gaz d'électrons chauds autant en nous appuyant sur des résultats d'expériences pompe/sonde femtoseconde interrogeant la dynamique des électrons hors équilibre dans des nanobilles d'or qu'en nous appuyant sur des expériences de transport à basse température de physique mésoscopique.*

*En outre, nous revenons sur l'efficacité d'échauffement du gaz d'électrons chauds. La palette de configurations explorées nous permet en effet de montrer que la température effective peut finalement s'écrire :*

$$k_B T_e = \eta . eV \quad (1)$$

*où  $\eta < 1$ . La valeur de  $\eta$  que nous extrayons de nos expériences de MCBJ à l'air et à la température ambiante est rapprochée de prédictions théoriques fondamentales sur le bruit de grenaille dans des conducteurs mésoscopiques et de mesures à 40 mK sur la distribution d'énergie des électrons dans un fil mésoscopique.*



## Contexte de l'étude

C'est en 1987, peu après l'invention du STM à Zurich, que J.K.Gimzewski et R.Möller observent la transition de conductance du régime tunnel au régime de contact ponctuel [1]. Peu après, en 1988, Van Wees *et al.* [2] mettent en évidence la quantification de la conductance dans des expériences mettant en jeu des gaz bidimensionnels d'électrons. N.Agraït *et al.* ont publié en 2003 [3] une revue complète des propriétés électriques et mécaniques des contacts de taille atomique.

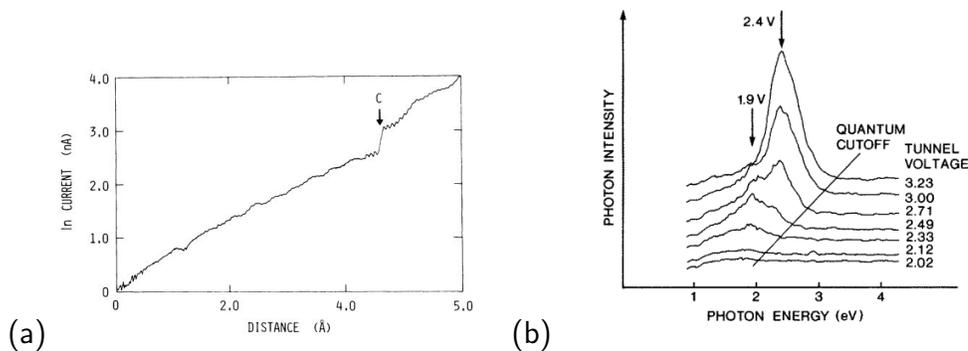


FIGURE 7 – (a) Transition de la conduction tunnel au contact atomique observée avec un STM, par la mesure d'une variation abrupte dans l'évolution du courant en fonction de la distance entre électrode, extrait de [1]. (b) Spectre d'émission de lumière en STM-LE avec une pointe d'irridium sur un polycristal d'argent, ne présentant pas de photon d'énergie supérieure à l'énergie des électrons excitateurs  $E < eV_{bias}$ , extrait de [4]

C'est aussi le groupe de Zurich, qui fait un travail pionnier dans les expériences d'émission de lumière en STM, beaucoup d'autres suivront. En 1989, est reportée l'observation d'émission de lumière visible dans une jonction tunnel constituée d'une pointe d'irridium au dessus d'un polycristal d'argent [4] (voir figure 7(a)). D'une manière générale, les photons émis en mode STM sont d'énergie inférieure à  $eV_{bias}$ , énergie de polarisation des électrons comme on peut le voir dans la figure 7(b).

Il faut attendre 2002 pour que ces deux champs de recherche se rejoignent et que A.Downes *et al.* étudient l'émission de lumière à partir d'un contact métallique ponctuel de conductance proche du quantum de Landauer  $G_0 = 2e^2/h$  [5]. Dans ces conditions, le rayonnement mesuré par A.Downes *et al.* s'avère contenir des photons d'énergie supérieure à  $eV_{bias}$  comme on peut le voir sur le graphe de la figure 8(a), signe d'un mécanisme multiélectronique. En ultra-vide et à température ambiante, ils observent même des photons ayant des énergies au-delà du double de l'énergie de polarisation des électrons. S'appuyant sur un modèle développé en 1966 par P.M. Tomchuk *et al.* [6], ils interprètent ce rayonnement comme celui d'un gaz à haute température (environ 2000 K) d'électrons chauds émettant un rayonnement de type corps noir. D'autres expériences semblent indiquer un échauffement des électrons et du contact [7, 8].

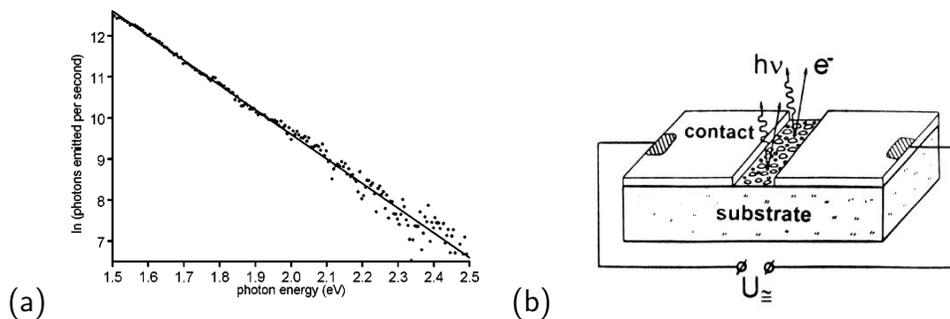


FIGURE 8 – (a) Spectre d'émission de lumière émis depuis un contact monoatomique sous  $V_{bias} = 1 V$ , extrait de [5]. (b) Schéma de principe du dispositif permettant la création et l'étude d'émission d'électrons et de photons depuis un film granulaire d'îlots métalliques, extrait de [9].

A noter que Coratger *et al.* avaient également reporté dès 1994 mais dans un contexte de STM à l'air [10], *a priori* différent<sup>1</sup>, l'émission de photons au delà de  $eV_{bias}$ .

Par des expériences à basse température et sous ultra-vide, le groupe de R.Berndt a également confirmé l'émission de photons de haute énergie, c'est à dire d'énergie supérieure à l'énergie de polarisation des électrons  $eV_{bias}$ , (voir par exemple [11]). En revanche, bien que enregistrés sous une tension de  $V_{bias} = 1.46 V$ , leurs spectres, qui mettent en évidence des modulations, ne contiennent pas de photons d'énergie supérieure à  $2.eV_{bias}$ . Ce qui plaide pour un mécanisme d'échauffement ne mettant en jeu que deux porteurs de charge. Ce mécanisme, de type Auger, interdit effectivement l'émission de photons d'énergie supérieure au double de l'énergie de polarisation des électrons.

1. Avec le recul, il n'est pas à exclure que cette émission ait pu résulter de contacts intermittents à des fréquences indétectables par la bande passante du courant tunnel.

Depuis, M.Buret *et al.* [12] ont proposé un mécanisme permettant d'expliquer ces apparentes différences. Les photons émis à des énergies supérieures à  $2.4 \text{ eV}$  peuvent occasionner des transitions électroniques depuis la bande 5d vers la bande de conduction et donc être réabsorbés.

Cette thèse a été réalisée dans le groupe Sources et Sondes Ponctuelles au Cl-NaM dix ans après les travaux de A.Downes *et al.* [5]. Elle s'appuie sur une double culture du groupe d'une part sur l'émission de lumière en STM [5, 13, 14, 15, 16, 17, 18, 19, 20] d'autre part sur les contacts métalliques ponctuels créés par la pointe d'un STM (mode STM-BJ) [20, 21] ou par rupture d'un fil à l'aide d'un dispositif de jonction brisée contrôlée mécaniquement (mode MCBJ) [22, 23, 24]. Pour explorer la physique des interactions électron-électron dans des contacts métalliques ponctuels via l'électroluminescence, Ma thèse s'appuie sur une MCBJ, opérée à température ambiante et à l'air, couplée à un microscope optique.

Ce manuscrit s'articule en deux grandes parties, matériels et méthodes (I) puis résultats et discussion (II). Nous présentons dans la première partie les dispositifs expérimentaux développés au cours de cette thèse. Après avoir décrit le principe de la MCBJ, nous montrons les dernières avancées dans la fabrication des échantillons (Chapitre 1). Puis nous décrivons le montage électrique (Chapitre 2) et optique (Chapitre 3) permettant d'imager les échantillons, de compter les photons émis et d'analyser la partie visible du spectre du rayonnement. Enfin nous présentons les outils statistiques avec lesquels nous traitons le grand nombre de données obtenues à l'aide de notre méthodologie d'acquisition (Chapitre 4).

Dans la seconde partie, nous présentons les différents résultats obtenus dans la gamme du visible en comptage de photons (Chapitre 5) puis en spectroscopie (Chapitre 6). Le chapitre 7 présente les résultats acquis dans l'infrarouge. Dans le chapitre 8 nous discutons les résultats autant en nous appuyant sur des résultats d'expériences pompe/-sonde femtoseconde interrogeant la dynamique des électrons hors équilibre dans des nanobilles d'or [25] qu'en nous appuyant sur des expériences de transport à basse température de physique mésoscopique [26] et les prédictions théoriques de M.J.M.DeJong et C.W.J. Beenakker [27].



# **Première partie**

## **Matériels et Méthodes**



# Chapitre 1

## Jonction brisée contrôlée mécaniquement

*Dans lequel nous présentons au lecteur le principe de fonctionnement d'une MCBJ. Ainsi que le protocole de fabrication des échantillons, les jonctions à briser.*

### 1.1 Principe

La jonction brisée contrôlée mécaniquement (MCBJ) a été mise au point par J.Moreland et J.W.Ekin en 1985 [28] et adaptée à l'étude des contacts métalliques ponctuels par C.J.Muller *et al.* [29]. Elle est basée sur le principe du banc de flexion trois points convertissant une déformation de flexion d'une plaque en écartement relatif des électrodes métalliques composant la jonction atomique. Ce dispositif permet d'avoir une boucle mécanique beaucoup plus courte que dans le cas d'un STM réduisant considérablement les perturbations mécaniques. Pour contrôler la flexion de la plaque, nous utilisons un actionneur linéaire motorisé (Thorlabs Z-825) avec un pas minimal de 29 nm (le moteur), associé en série avec un empilement de cristaux piezo-électriques (le piezo) de sensibilité  $216 \text{ nmV}^{-1}$  (voir figure 1.1). Le contrôle de la tension électrique appliquée au piezo  $V_{\text{piezo}}$  se fait via une carte entrées/sorties (National instrument 6259) et le moteur est contrôlé par USB. Un interfaçage Labview a été développé.

La fabrication des échantillons de MCBJ peut se faire par lithographie électronique ou par fixation d'un fil métallique sur le support de flexion. Notre groupe utilise aujourd'hui la dernière solution. Au cours de cette thèse, nous avons amélioré le processus de fabrication des échantillons qui sont au cœur de la réussite de nos expériences. Cet investissement a simplifié la fabrication et fiabilisé le processus.

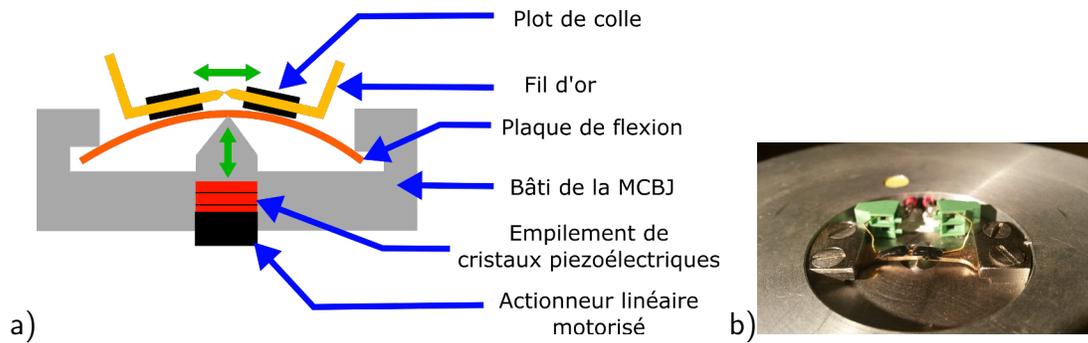


FIGURE 1.1 – a) Schéma descriptif de notre MCBJ, le fil d'or est fixé à la plaque de flexion par l'intermédiaire de plots de colle. La plaque est mise en flexion par l'actionneur linéaire motorisé associé à l'empilement de cristaux piezo-électriques. Le bâti permet de maintenir les extrémités de la plaque. b) Image de la partie supérieure de la MCBJ, on y distingue la plaque de flexion et les connexions électriques.

La démultiplication estimée avec nos échantillons est de l'ordre de (1 : 20) (voir [22]), c'est à dire qu'un déplacement de 20  $nm$  du piezo entraîne un déplacement relatif des électrodes de 1  $nm$ . La tension appliquée au piezo par la carte NI est codée sur 16-bit sur une gamme de [ -10 ; 10 V ]. Ceci nous donne une sensibilité du déplacement relatif des électrodes de l'ordre de 3  $pm/digit$ , ce qui est amplement suffisant pour ce travail.

## 1.2 Fabrication des échantillons

Précédemment, la colle utilisée pour fabriquer les échantillons pour MCBJ était à base de résine epoxy (voir images figure 1.2). Cette technique nécessitait un temps de séchage de l'ordre du jour et un contrôle strict des conditions d'humidité pour un séchage complet. De plus, du fait de ces temps de durcissement longs la réussite de la fabrication des échantillons était très aléatoire.

Au cours de mes travaux de thèse, nous avons amélioré ce protocole de fabrication grâce notamment à la contribution Maksym lazikov, post-doctorant dans l'équipe. Nous décrivons ci-dessous le protocole de fabrication actuellement en cours au laboratoire. Nous utilisons des plaques de flexion ayant des épaisseurs allant de 0.4 à 0.8  $mm$  en bronze phosphoreux, ayant un grand domaine de déformation élastique. Un lamage de la plaque (voir figure 1.3) est effectué afin d'améliorer le collage lors de l'assemblage avec le fil. Celui-ci permet une meilleure robustesse du collage ainsi qu'un guidage de la colle.

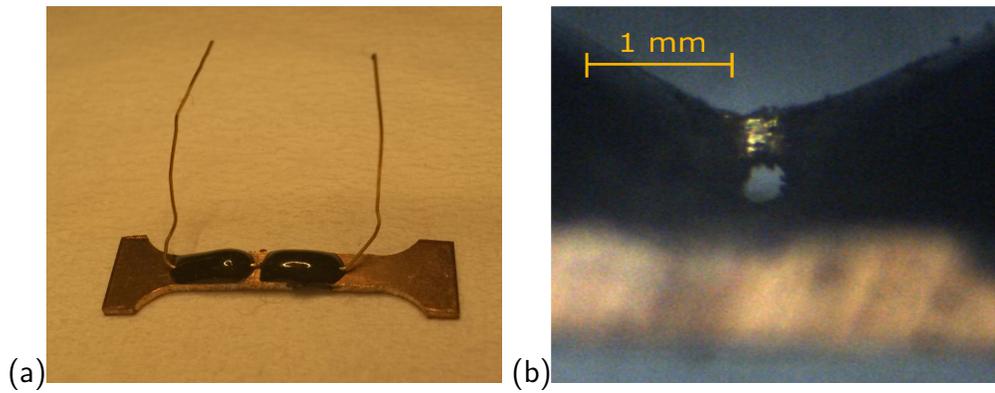


FIGURE 1.2 – Image de la jonction fabriquée avec la colle epoxy, (a) vue d'ensemble de l'échantillon, (b) zoom sur la partie qui va former le contact.

Les fils utilisés, de diamètre  $125 \mu\text{m}$ , sont en or non recuit (Goodfellow AU005135), d'une pureté supérieure à 99 %. Nous avons choisi l'or comme matériau pour diverses raisons : C'est un système modèle dans un certain nombre d'expériences (voir [3] et les références cités). Il présente une ductilité permettant une manipulation plus aisée et s'oxyde peu à l'air.

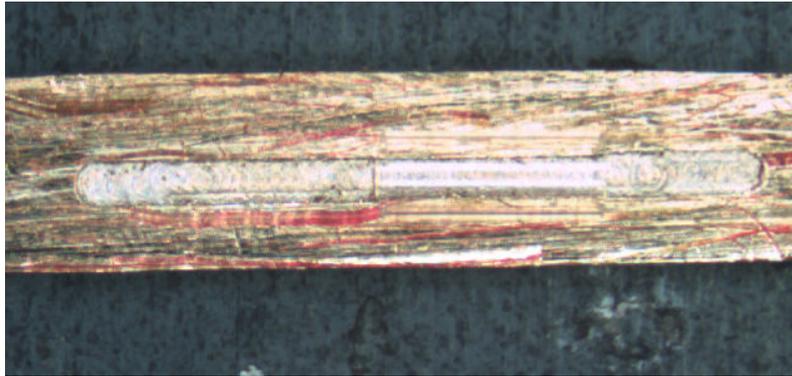


FIGURE 1.3 – Image d'une plaque en bronze phosphoreux, le lamage central permet de guider la colle lors de l'assemblage avec le fil.

Afin de contrôler la position de la rupture, il est important de créer une entaille sur le fil. Nous avons écarté les méthodes électrochimiques ou de bombardement d'électrons, pour des méthodes mécaniques plus simples. Nous utilisons une lame de rasoir, faisant rouler le fil sous la lame. Une autre méthode consiste à utiliser une pince coupante avec un microdéfaut sur les lames donnant une entaille plus importante. Cette étape conditionne directement la suite de l'expérience. Si elle est mal réalisée, il peut arriver que l'on fléchisse la plaque de bronze sans déclencher la rupture du fil.

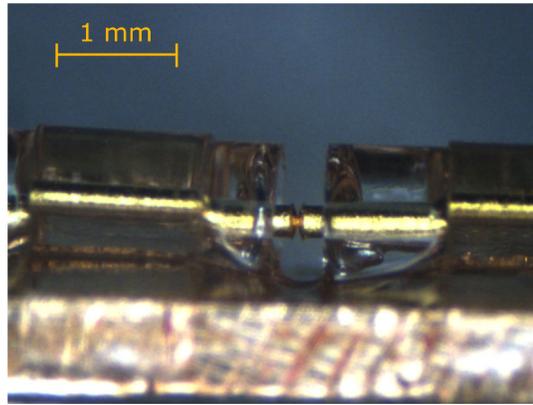


FIGURE 1.4 – Image de la jonction, avant rupture. Vue de profil de l'échantillon, avec le fil d'or passant dans les capillaires, on peut y voir l'entaille au centre du pont suspendu.

Pour pallier aux inconvénients d'un collage époxy nous avons décidé d'utiliser une colle à polymérisation sous UV (Nordland NOA61). Pour faciliter cet assemblage, on introduit le fil dans deux capillaires de 3 mm de long et de 500  $\mu\text{m}$  de rayon. Le lavage favorise l'alignement des capillaires qui sont collés à la plaque. Puis l'on vient remplir ces capillaires de colle avant de la polymériser sous illumination UV. Les capillaires permettent de mieux centrer le fil et de maintenir la colle longitudinalement par capillarité. L'utilisation d'une lampe puissante (50 W) à décharge de mercure haute pression permet de polymériser rapidement la colle et de la figer totalement en moins de dix minutes. On obtient alors un pont suspendu en or de longueur sub-millimétrique, présentant au milieu une entaille où aura lieu la rupture (voir figure 1.4).

Une fois l'échantillon réalisé, il est monté sur le dispositif de MCBJ dont nous détaillerons le fonctionnement dans le chapitre suivant. Nous pouvons alors enregistrer la conductance au cours du temps selon que nous appliquons des rampes de déplacements des électrodes ou de polarisation la jonction, le graphe de la figure 1.5 montre l'évolution de la conductance,  $G$ . Lorsque nous rapprochons les électrodes (première phase,  $y_{\text{piezo}}$  diminue)  $G$  augmente passant du régime tunnel au contact. Puis lorsque nous écartons les électrodes l'une de l'autre (seconde phase, où  $y_{\text{piezo}}$  augmente), la conductance diminue jusqu'à la rupture du contact.

On retrouve les plateaux de conductance à l'approche et au retrait [21, 30]. Ils mettent en évidence une conductance constante lorsque le conducteur s'allonge (signe du transport balistique [31]), séparé par des sauts abrupts signes des réarrangements atomiques dans la jonction. Statistiquement, les valeurs les plus probables de conductances

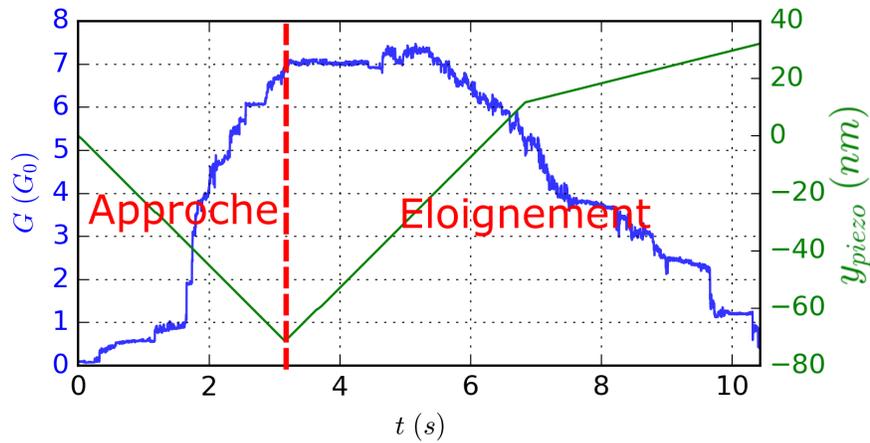


FIGURE 1.5 – Évolution temporelle de la conductance d'un contact métallique ponctuel (ligne bleue) soumis à des rampes d'approche et d'éloignement (ligne verte) des électrodes. On approche les électrodes du régime non contact  $G = 0.1 G_0$  jusqu'à une conductance  $G = 7 G_0$  puis on écarte les électrodes jusqu'à l'état initial. La ligne pointillée rouge représente la séparation entre les phases d'approche et d'éloignement des électrodes.

observées correspondent à des multiples entiers de  $G_0$ . Mais la figure 1.5 illustre que les plateaux ne sont pas systématiquement à des conductances multiples du quantum de Landauer (comme montré dans [32]). Nous pouvons aussi mentionner que certains plateaux présentent une pente non nulle ( $\frac{\partial G}{\partial t} \neq 0$ ), elle est attribuée à des éventuelles pertes dans le contact par T.Leoni [20].



# Chapitre 2

## Mesures électriques

*Dans lequel le lecteur découvre la chaîne de mesures électriques nous permettant la mesure du courant  $I$  dont nous déduisons la tension de polarisation de la jonction  $V_{bias}$  ainsi que sa conductance  $G$ . Il y constate les effets de la vitesse d'élongation et de la tension de polarisation de la jonction sur la durée de vie des contacts atomiques à l'air et à l'ambiante. Nous présentons au lecteur une méthode adaptée et innovante d'étude des contacts métalliques ponctuels. Elle repose sur la capture au vol de l'état de la jonction que nous laissons évoluer à température ambiante tant que la conductance reste dans une fenêtre prédéterminée.*

### 2.1 Protocole de mesure

Il s'agit de déterminer la conductance  $G$  du contact métallique ponctuel par la mesure du courant  $I$  le traversant. La jonction pouvant se trouver en court-circuit, pour protéger l'électronique de mesure, l'alimentation de polarisation à  $V_0$  est appliquée à une résistance  $R_s = 1 \text{ k}\Omega$  en série avec le CMP. La mesure du courant  $I$  s'effectue par l'intermédiaire d'un amplificateur  $I/V$  (Femto DLPCA-200) à gain variable, le plus souvent fixé à  $\kappa_i = 10^4$  avec une bande passante de  $500 \text{ kHz}$ . Les CMP en or présentent un comportement ohmique [33], la tension appliquée à la jonction  $V_{bias}$  est donc déduite de la valeur du courant (équation 2.1) et la conductance est donnée par l'équation 2.2.

$$V_{bias} = V_0 - R_s I \quad (2.1)$$

$$G = \frac{I}{V_{bias}} \quad (2.2)$$

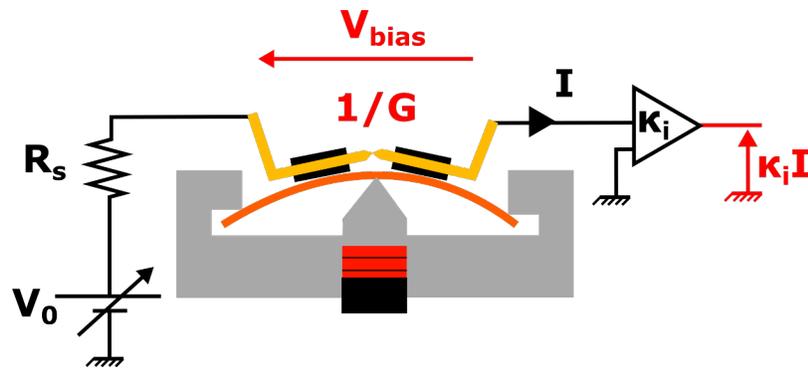


FIGURE 2.1 – Schéma électrique du montage en série d'une résistance  $R_s$  et du CMP. On mesure le courant  $I$  traversant la jonction à l'aide d'un amplificateur  $I/V$  de gain  $\kappa_i$  alors que le circuit est soumis à une tension de consigne  $V_0$ . De  $I$  on déduit la tension au borne du contact  $V_{bias} = V_0 - R_s I$  et la conductance  $G = I/V_{bias}$ .

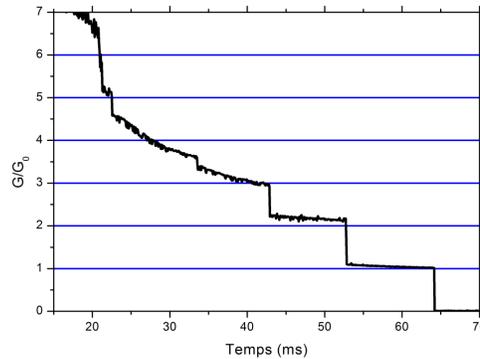


FIGURE 2.2 – Exemple d'évolution de la conductance d'un contact métallique ponctuel soumis à une rampe d'étirement de vitesse constante. Extraite de la thèse de Thomas Leoni, CINaM [20, 21].

Nous connaissons par la mesure de  $I$  les grandeurs électriques caractérisant notre contact à chaque instant ( $G, I, V_{bias}$ ), liées entre elles et aux détails du CMP.

L'un des enjeux expérimentaux de cette thèse était l'observation de l'électroluminescence des CMP et donc leur maintien pendant des durées caractéristiques de l'ordre de la seconde. Considérons la durée de vie des plateaux  $\tau_1$ . Dans la figure 2.2 on observe des plateaux qui persistent plusieurs ms ( $\tau_1 = 10 \text{ ms}$  pour celui à  $G/G_0 \simeq 1$ ). Toutefois l'expérience montre que cette durée des plateaux est dépendante d'un certain nombre de paramètres dont la vitesse d'étirement  $v_z$  et la tension  $V_0$  [34, 35]. Le groupe a déjà acquis une certaine expérience [20, 24] sur l'influence de ces différents paramètres. En répétant un grand nombre de fois les expériences de rupture de contact on peut obtenir

la valeur moyenne de la durée de vie des plateaux en fonction des différents paramètres. Nous représentons la durée moyenne du plateau à  $G_0$  en fonction des deux paramètres,  $v_z$  et  $V_0$ , dans la figure 2.3.

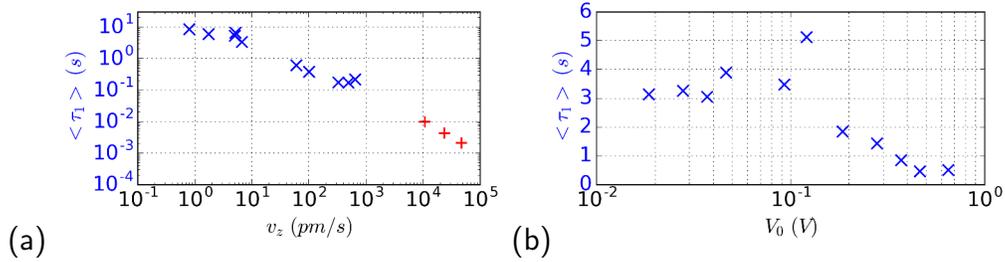


FIGURE 2.3 – (a) Évolution de la durée de vie moyenne du contact monoatomique pour différentes vitesses d'étirements  $v_z$  du fil pour une tension  $V_0 = 130$  mV. Les croix bleues correspondent aux résultats de nos expériences, les croix rouges correspondent aux résultats extraits de la thèse de M. Alwan [22]. (b) Évolution de la durée de vie moyenne du contact monoatomique pour différentes tensions de polarisation  $V_0$  pour une vitesse d'étirement de  $3$  pm/s. Ces résultats proviennent de différentes séries d'expériences et d'échantillons. On constate ici que la durée de vie du contact monoatomique augmente avec une diminution de la vitesse d'étirement  $v_z$  mais chute rapidement pour des tensions  $V_0$  supérieures à la centaine de mV.

Selon la littérature [5, 11], les tensions à appliquer pour observer de la lumière émise sont de l'ordre du volt, l'ordre de grandeur du temps de pose pour collecter suffisamment de signal est de l'ordre de  $t_{exp} = 100$  ms. Sachant cela et compte tenu des deux comportements décrit dans la figure 2.3, il aurait été illusoire, dans nos conditions, de mesurer la variation de l'émission de lumière parallèlement avec la variation de  $G$  telle que représentée sur la figure 2.2. Pour opérer nous avons donc pris l'option de développer un nouveau protocole, adapté, de mesure à la volée.

## 2.2 Évolution spontanée de la conductance au cours du temps

Après avoir amené notre contact métallique ponctuel dans un état initial proche de quelques  $G_0$ , nous interrompons toutes actions sur le piezo et mesurons l'évolution spontanée de la conductance  $G$  au cours du temps. Le graphe de gauche de la figure 2.4 reporte trois types d'évolutions à l'échelle de quelques secondes. On peut voir que

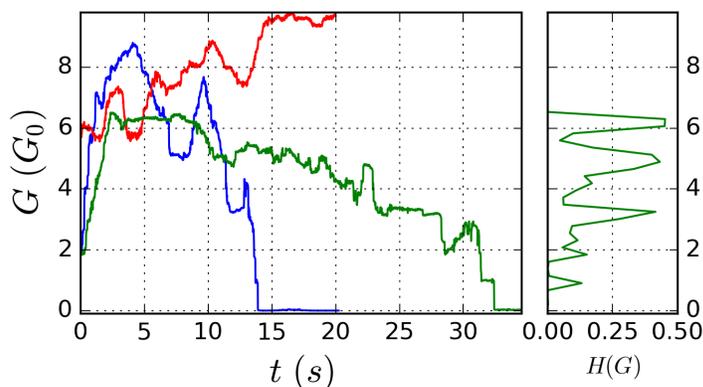


FIGURE 2.4 – A gauche, évolutions spontanées de la conductance en fonction du temps. Le contact est placé à l’instant initial dans des conditions de quelques  $G_0$  avant de le laisser évoluer spontanément. A droite, nous avons représenté l’histogramme normalisé  $H(G)$ , calculé sur la trace verte, avec en ordonnée la conductance en unité de  $G_0$ . On y reconnaît des pics proches des multiples entiers de  $G_0$

la conductance du contact peut évoluer de manière non-monotone dans une fenêtre de conductance avant de se rompre (courbes bleue et verte) ou de continuer à croître (courbe rouge). Ce sont ces évolutions spontanées que nous souhaitons mettre à profit pour explorer les différentes configurations de la jonction. A titre indicatif, nous avons calculé et représenté sur le graphe de droite de la figure 2.4 l’histogramme normalisé de la trace verte. Cet histogramme présente des maximums locaux autour des multiples entiers de  $G_0$ .

En effet, toutes les mesures tant que  $G$  reste dans un intervalle autour de  $G_0$  nous seront utiles. Nous nous "contentons" donc d’agir brièvement sur le piezo pour recadrer la conductance quand elle sort d’une large fenêtre  $[G_{min}; G_{max}]$  préalablement définie. Ainsi, à chaque correction, une nouvelle expérience (de quelques secondes) commence. Nous optimisons donc le temps d’acquisition.

Il est inutile d’essayer de maintenir la jonction dans un état de conductance donnée par régulation mécanique. Dans ces régimes  $G$  n’est ni une fonction monotone de  $z$  (plateau de conductance voir figure 2.2), ni indépendante du temps (évolution spontanée voir figure 2.4).

On peut voir sur la courbe de la figure 2.5 l’évolution temporelle de la conductance contrainte dans l’intervalle  $[0.8; 4.5 G_0]$ . Les limites sont représentées par les lignes

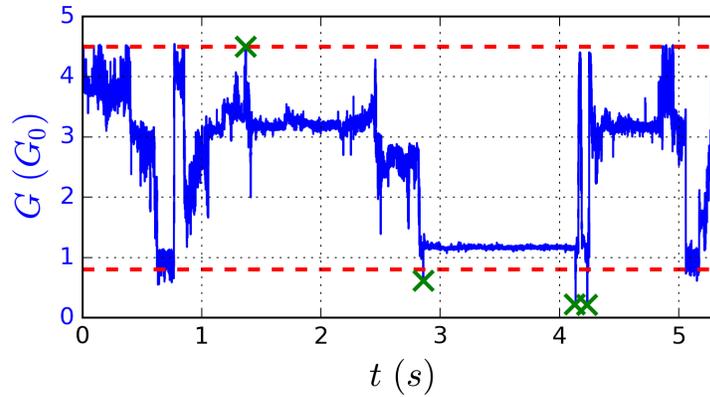


FIGURE 2.5 – Évolution temporelle de la conductance contrainte dans l'intervalle  $[0.8; 4.5 G_0]$ , sous une tension de consigne de  $V_0 = 139 \text{ mV}$ . Les lignes pointillées rouges symbolisent les limites haute et basse de l'intervalle de conductance. Les croix vertes indiquent, à titre d'exemple, des instants où l'on agit sur le piezo. On stabilise la jonction, dans l'intervalle imposé, pendant des durées de l'ordre de la seconde sans agir sur le piezo.

pointillées rouges. Pour augmenter l'exploration de l'espace des phases décrit par deux variables du triplet  $(G, I, V_{bias})$  au delà de  $[G_{min}; G_{max}]$  nous verrons plus tard que nous modulons la tension de consigne  $V_0$ .

Notre nouveau protocole de mesure nous permet d'obtenir des contacts stables sur des durées supérieures à celle imposée par notre cahier des charges ( $100 \text{ ms}$ ). Cette mesure à la volée génère un grand nombre de données, nous imposant un traitement statistique que nous détaillerons au chapitre 4. Nous résumons sur le schéma de la figure 2.6 le montage de mesures électriques et de contrôle mécanique de notre MCBJ.

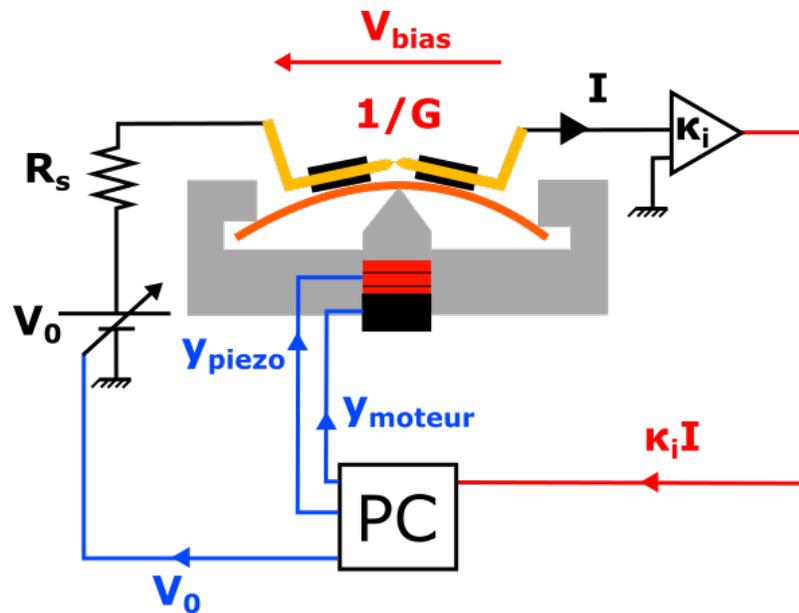


FIGURE 2.6 – Chaîne de contrôle et de commande de la MCBJ. La tension  $V_0$  est appliquée par la carte entrées/sorties au circuit composé de la résistance série  $R_s$  et de la jonction. Le courant  $I$  est mesuré par la carte via un amplificateur  $I/V$  de gain variable  $\kappa_i$ , on en déduit  $V_{bias}$ . De  $I$  le logiciel d'acquisition calcule  $G$  et agit sur le piezo via la boucle de régulation en cas de besoin (cf texte).

# Chapitre 3

## Chaîne de mesure optique

*Dans lequel le lecteur découvre nos systèmes de mesures optiques dans le visible et l'infrarouge. L'utilisation d'un microscope inversé et d'une caméra CCD permettent notamment d'obtenir l'image de la jonction. En utilisant le mode de groupage de la CCD, nous disposons aussi d'une solution de comptage de photons issus de la source ponctuelle. Le lecteur y découvre aussi un montage original de spectroscopie mettant à profit la dispersion de la lumière visible au travers d'un prisme à vision directe. Un détecteur monocanal InAsSb est utilisé dans l'infrarouge. Il reçoit la lumière, mécaniquement modulée et, éventuellement, spectralement filtrée, collectée par un objectif à miroirs de type Cassegrain.*

### 3.1 Détection de lumière visible

A la solution constituée d'un tube photomultiplicateur refroidi et relié à un microscope par une fibre optique, nous avons préféré une alternative multifonctionnelle combinant imagerie, comptage et spectroscopie avec le même capteur.

Nous avons adapté notre MCBJ sur un microscope inversé (Nikon TE2000-U). Ce microscope, équipé d'optiques à l'infini et surélevé, permet d'ajouter des éléments optiques dans le faisceau parallèle entre l'objectif et la lentille de tube. En sortie nous avons une caméra CCD sensible (Andor Ikon-M934) refroidie à  $-60^{\circ}\text{C}$  par double Peltier (voir figure 3.1). La caméra est non intensifiée et nous n'utilisons pas d'obturateur mécanique. La matrice CCD composée de  $1024 \times 1024$  pixels de  $13 \mu\text{m}$  de coté, est à très faible niveau de bruit. Une interface Labview a été développée. Elle permet d'intégrer dans un même programme les mesures optiques et électriques.

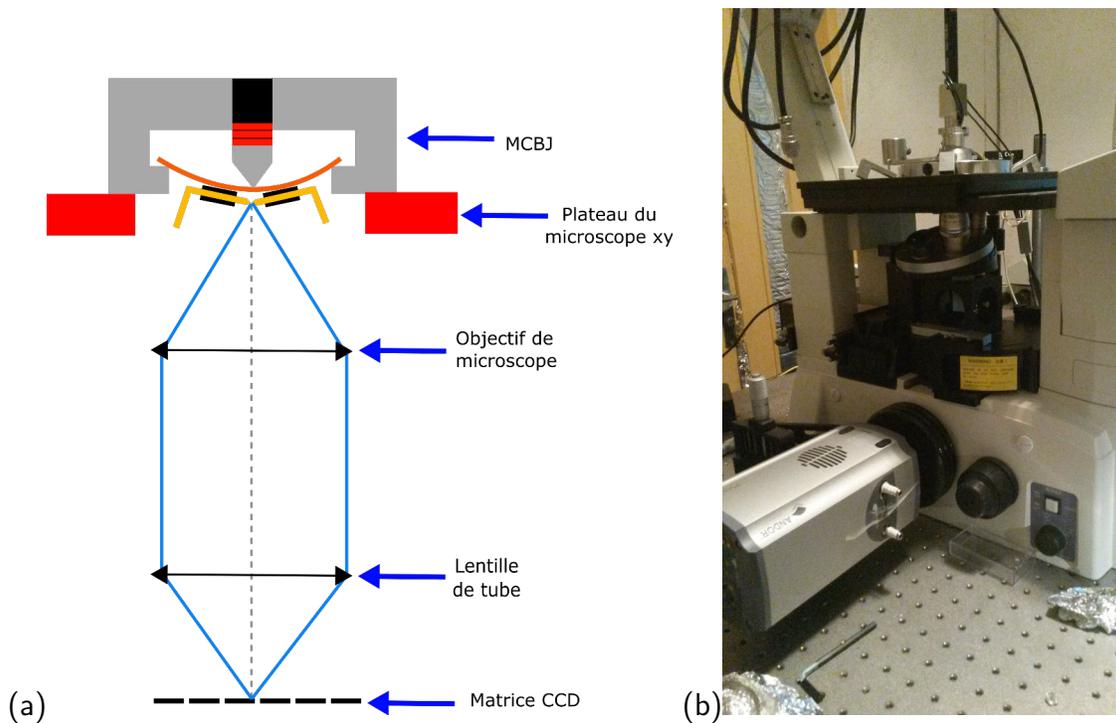


FIGURE 3.1 – (a) Montage optique avec la MCBJ mise tête-bêche sur le plateau *xy* du microscope inversé. La collection de lumière se fait à l'aide d'un objectif de microscope ( $\times 20$ ,  $NA = 0.6$ ) et d'une lentille de tube de grandissement 1.5. La lumière est focalisée par la sortie latérale sur la matrice CCD de la caméra. Une zone libre est disponible entre l'objectif et la lentille de tube permettant d'y insérer des filtres et éléments optiques. (b) Photographie du dispositif expérimental où on y voit la caméra CCD, le microscope inversé ainsi que la MCBJ mise tête-bêche sur le plateau *xy*.

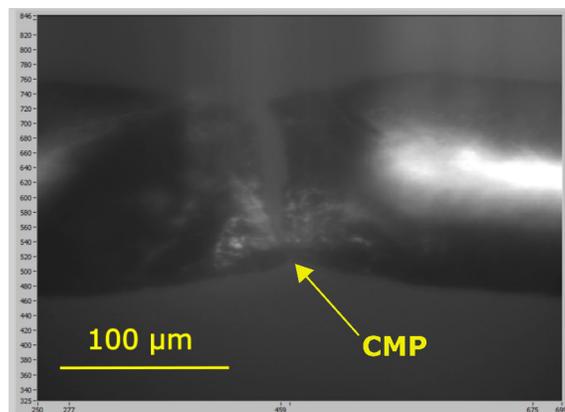


FIGURE 3.2 – Exemple d'image d'une jonction sous illumination du microscope recueillie par notre système.

Plusieurs objectifs optiques sont disponibles sur notre microscope inversé, nous utilisons un  $\times 4$  pour le réglage grossier mais travaillons essentiellement avec un objectif d'ouverture numérique  $NA = 0.6$  et de grandissement  $\times 20$ . La lentille de tube permet d'ajouter un grandissement de 1.5. Le montage permet d'imager la jonction afin de faire les premiers réglages d'alignement et de mise au point sous illumination. Le réglage fin de mise au point se fait lumière éteinte en visualisant directement l'électroluminescence du contact.

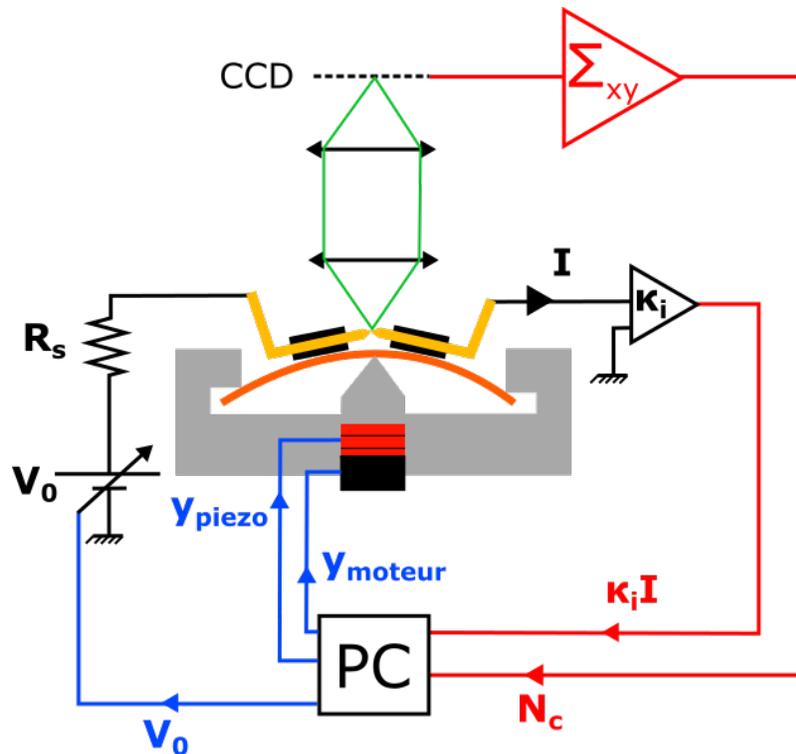


FIGURE 3.3 – Chaîne d'acquisition des grandeurs électriques et optiques et de contrôle de la conductance du CMP. La lumière collectée (traits verts) par le microscope inversé est focalisée sur la matrice CCD (pointillés noirs). La mesure du nombre de coups  $N_c$  se fait par l'électronique de la caméra et est transférée au PC par connexion USB 2.0.

Le signal d'obscurité, mesuré, est soustrait aux images lorsque la source est active. Pour minimiser le bruit de lecture, il est commun de grouper les pixels en superpixels. Nous refroidissons le capteur CCD à  $-60^\circ C$  afin de réduire le bruit thermique.

## 3.2 Spectroscopie visible

Outre l'imagerie et le comptage, la CCD a une troisième fonction. En effet, afin d'obtenir plus d'informations sur le signal lumineux émis, nous avons transformé le microscope inversé en système de spectroscopie optique visible.

Nous avons opté pour une solution dispersive "en ligne" adaptée au spectre de sensibilité de la CCD. Elle nous permet de passer facilement d'un dispositif d'imagerie à la spectroscopie. Pour cela nous avons introduit un élément dispersif sur le trajet optique du microscope inversé. Le schéma de principe est illustré en figure 3.4.

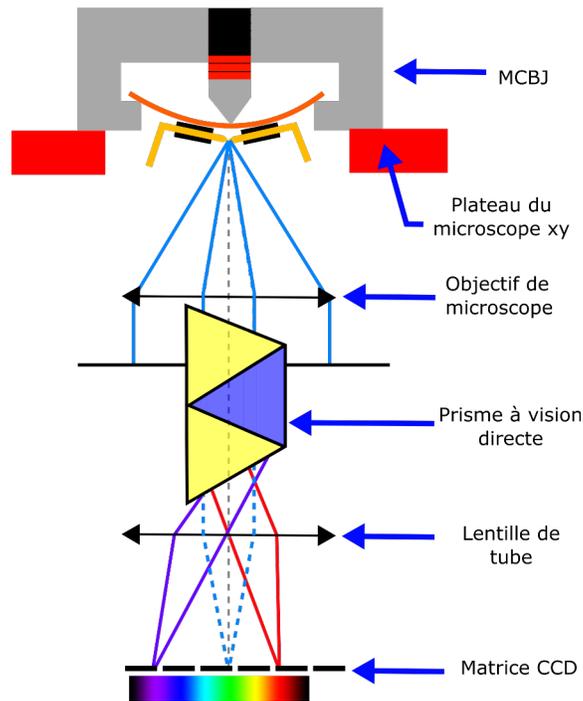


FIGURE 3.4 – Montage spectroscopique. L'introduction d'un prisme à vision directe après l'objectif nous permet de disperser la lumière dans l'axe du microscope. Les rayons indiqués en pointillés bleus symbolisent l'image géométrique du CMP au travers du microscope. La dispersion se fait dans le plan de symétrie du prisme contenant l'axe optique du microscope. Les faisceaux dispersés par le prisme convergent dans le plan focal de la lentille de tube où est placée notre matrice CCD.

Nous utilisons un prisme à vision directe (Jeulin, ref.20312584), permettant de disperser la lumière de part et d'autre de l'axe optique sur un axe aligné avec une rangée de pixels de la CCD. Le prisme à vision directe est un assemblage de trois prismes, deux d'indice  $n_1$  en BK7 (verre borosilicate Crown) peu réfringents séparés par un prisme plus

réfringent d'indice  $n_2$  en  $SF_5$  (verre Flint). Contrairement au cas du prisme unique, la dispersion se fait dans l'axe du prisme à vision directe autour d'une énergie non déviée. Le dispositif nécessite un étalonnage préalable : La relation de dispersion est non linéaire et dépendante des indices des prismes, de leurs angles au sommet ainsi que d'autres paramètres géométriques.

Les équations de l'optique géométrique, développées en annexe, permettent d'obtenir la déviation  $D(E)$  comme fonction de l'énergie  $E$  des photons à incidence constante. On effectue une détermination expérimentale de la fonction  $D(E)$  associée à notre montage en utilisant des lampes spectrales (mercure et hydrogène), un laser He-Ne et différents filtres calibrés associés à une lampe blanche. Ces derniers permettent d'obtenir des points de mesure dans la gamme du rouge/infrarouge.

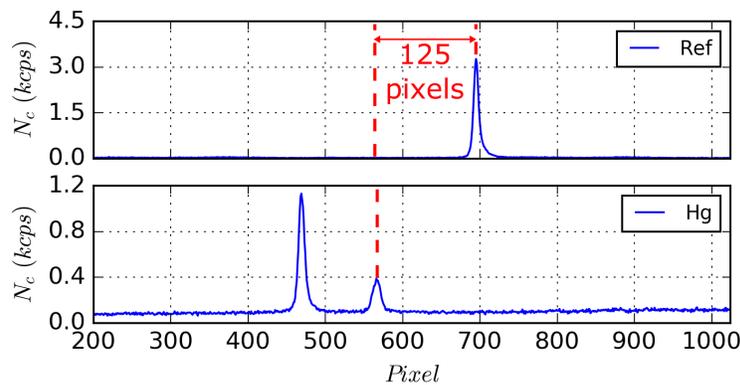


FIGURE 3.5 – Profil d'intensité obtenu le long d'une ligne de pixels dans l'axe de dispersion du prisme, l'axe des abscisses représente le numéro du pixel de la ligne, et l'axe des ordonnées le nombre de coups par seconde. La courbe de dessus (Ref) correspond à l'image géométrique de l'objet obtenue sans prisme et la courbe de dessous (Hg) correspond à la position des différentes raies du mercure associées, de droite à gauche, aux énergies  $E = 2.14 \text{ eV}$  et  $E = 2.27 \text{ eV}$ . La mesure du décalage entre l'image géométrique et les positions associées aux différentes raies permet un étalonnage de la dispersion. Nous avons fait apparaître, à titre d'exemple, le décalage de  $-125$  pixels entre l'image géométrique et la raie d'énergie  $E = 2.14 \text{ eV}$ .

La démarche consiste à repérer la position de l'image géométrique d'un objet obtenue sans le prisme puis de l'introduire sur le trajet optique et repérer la position des différentes raies d'énergies connues. Sur la figure 3.5 nous présentons le protocole appliqué avec une lampe à décharge au mercure. Le premier profil correspond à l'image

géométrique de l'objet dont le maximum se trouve au pixel 690. Le second profil correspond aux raies d'émission du mercure d'énergies  $E = 2.14 \text{ eV}$  et  $E = 2.27 \text{ eV}$  se trouvant respectivement au pixel 565 et 472. A titre d'exemple, on obtient une déviation de  $-125 \text{ px}$  pour le doublet d'énergie  $E = 2.14 \text{ eV}$  et  $E = 2.15 \text{ eV}$  qui n'est pas séparé par notre système.

On peut appliquer le même protocole avec le spectre continu d'une lampe à filament combinée à des filtres aux variations de transmission marquées et connues (voir figure 3.6). Nous repérons ici les minima des bandes de coupures du filtre utilisé. Les flèches rouges indiquent les longueurs d'ondes de ces bandes d'absorption sur la courbe de calibration.

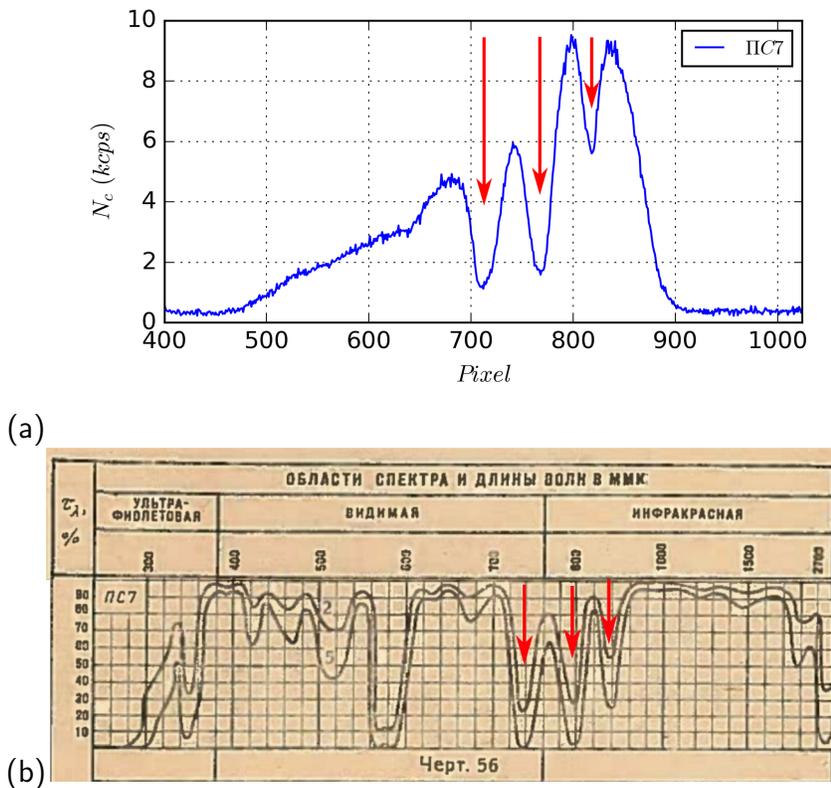


FIGURE 3.6 – (a) Spectre d'une lampe à filament modulé par un filtre calibré ПС7 en fonction du numéro du pixel. La courbe de calibration en  $nm$  du filtre ПС7 est retranscrite sur l'image (b).

La relation liant déviation  $D(E)$  et énergie  $E$  des photons, retranscrite sur le graphe de la figure 3.7, est obtenue par ajustement numérique à partir de l'expression développée en annexe. On peut constater un très bon accord entre notre ajustement et les me-

sures expérimentales. Notons que l'amplitude  $[E_{min}; E_{max}]$  accessible et la résolution en énergie sont liées à l'objectif utilisé et à la taille de la matrice CCD.

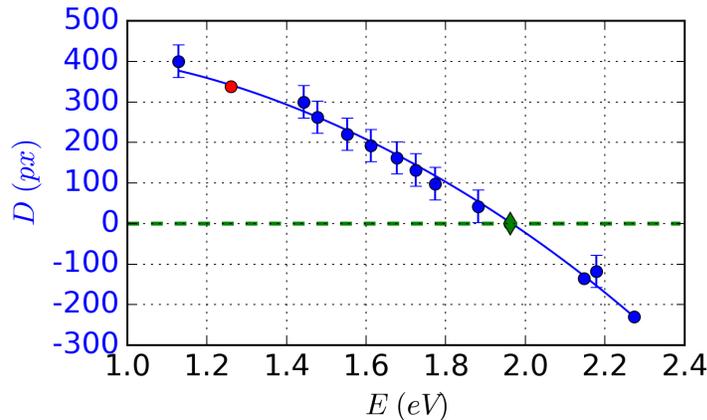


FIGURE 3.7 – Ajustement numérique liant la déviation  $D$  en *pixel* sur la caméra en fonction de l'énergie du photon  $E$ . Le losange vert correspond à l'énergie non-déviée ( $D(E) = 0$ ) par le prisme et le rond rouge à la position du notch centré autour de  $E_n = 1.26$  eV.

Bien entendu pour le spectre issu d'un CMP, il faut un repère : soit dans l'espace (position de l'image non dispersée de la source), soit en énergie (associer un pixel de la figure de dispersion à une énergie). Nous avons fait les deux :

- Une mesure de la position de l'image de la source avant l'insertion du prisme. Nous verrons plus tard que la position de la source n'est modifiée que lorsque l'on change matériellement d'échantillon.
- L'insertion d'un filtre notch qui "marque" le spectre enregistré à  $E = 1.26$  eV permettant le calage de la relation de déviation.

A titre d'exemple, nous présentons ce protocole appliqué au rayonnement émis par une ampoule à filament (voir figure 3.8). On y reconnaît en bleu un spectre de type corps noir (non corrigé de la réponse de la caméra). La courbe rouge correspond au même spectre mais avec le filtre notch positionné sur le trajet optique. Les pointillés rouges marquent la position des photons d'énergie  $E = 1.26$  V correspondant au centre de la bande de coupure du notch. On peut voir que le minimum local du spectre rouge correspond bien à la valeur en énergie du notch. Ceci nous permet de contrôler la position de l'image géométrique en contrôlant la position de la bande de coupure associée au notch.

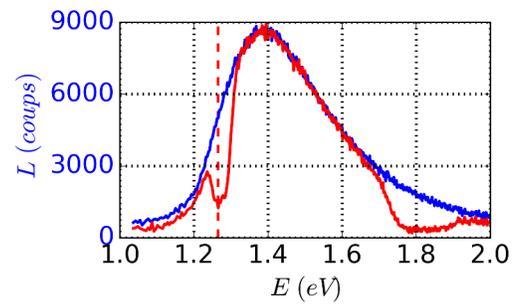


FIGURE 3.8 – Spectre d'une lampe à filament acquis par notre caméra CCD (ligne bleue). En rouge nous représentons ce même spectre avec le filtre notch en plus sur le trajet optique. La ligne pointillée rouge indique la position calibrée du centre de la fenêtre de coupure du notch. La coupure observée vers  $E = 1.8 \text{ eV}$  est aussi liée la réponse du filtre notch.

Comme pour la mesure en intensité, on synchronise les mesures des grandeurs électriques et du spectre acquis par la caméra. Nous résumons cela sur le schéma de la figure 3.9.

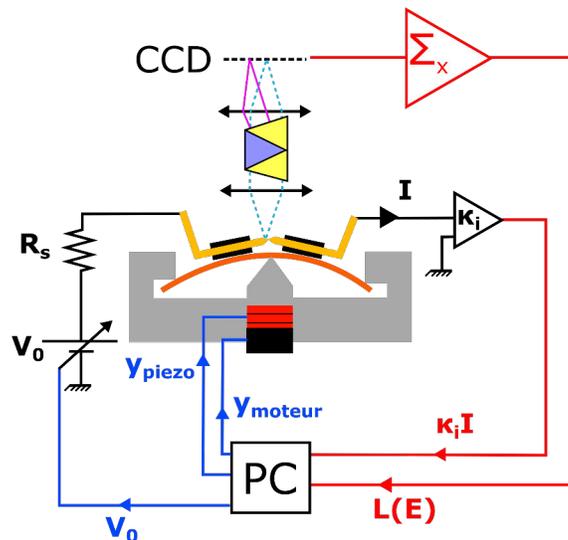


FIGURE 3.9 – Chaîne d'acquisition des grandeurs électriques et du spectre optique mesuré par la caméra CCD. Le prisme à vision directe permet la dispersion en ligne sur la matrice CCD.

### 3.3 Rayonnement dans la gamme du proche infrarouge.

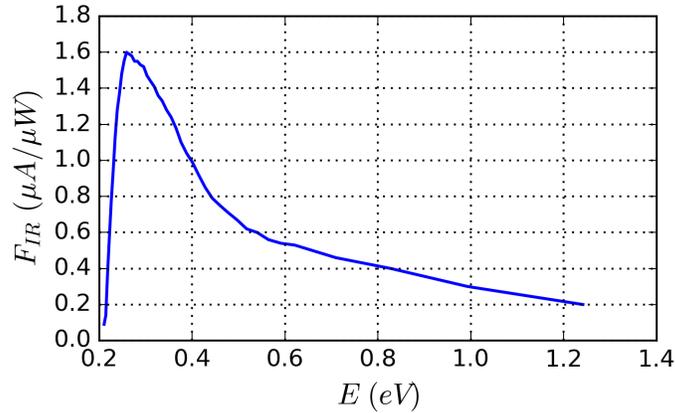


FIGURE 3.10 – Photosensibilité  $F_{IR}$  du capteur photovoltaïque InAsSb (Hamamatsu P11120-201) en fonction de l'énergie des photons, à  $T = -30^{\circ}C$ .

La détection de photons dans la gamme du proche infrarouge nécessite un autre type de détecteur. Nous avons opté pour un détecteur monocanal photovoltaïque InAsSb de  $1\text{ mm}^2$  refroidi à  $-25^{\circ}C$  par un double étage Peltier (Hamamatsu P11120-201). Ce détecteur couvre la gamme d'énergie  $E$  allant de 0.21 à 1.24 eV, avec à  $E = 0.25\text{ eV}$ , pic de sensibilité, une réponse typique de  $1.6\ \mu A/\mu W$  (courbe de réponse dans la figure 3.10).

En revanche, ce détecteur monocanal ne nous permet pas d'imager la jonction comme dans le protocole précédent. Il est pourtant impératif de conserver la possibilité d'effectuer les réglages d'alignement en imageant la jonction, procurée par la solution dans le visible. Nous avons fait réaliser par M.Lagaize, technicien du groupe, deux pièces d'adaptations permettant de passer du détecteur InAsSb à une simple webcam (Thorlabs DCC1645C) tout en conservant les réglages d'alignements et de mise au point. Un positionnement à mieux que  $50\ \mu m$  est nécessaire pour répondre au cahier des charges.

De plus, la gamme infrarouge explorée ne nous permet pas non plus d'utiliser notre montage sur microscope inversé. Nous utilisons un objectif à miroirs type Cassegrain d'ouverture numérique maximale  $NA = 0.4$  et de grandissement de  $\times 15$  afin de collecter les photons IR et de focaliser le faisceau sur le détecteur.

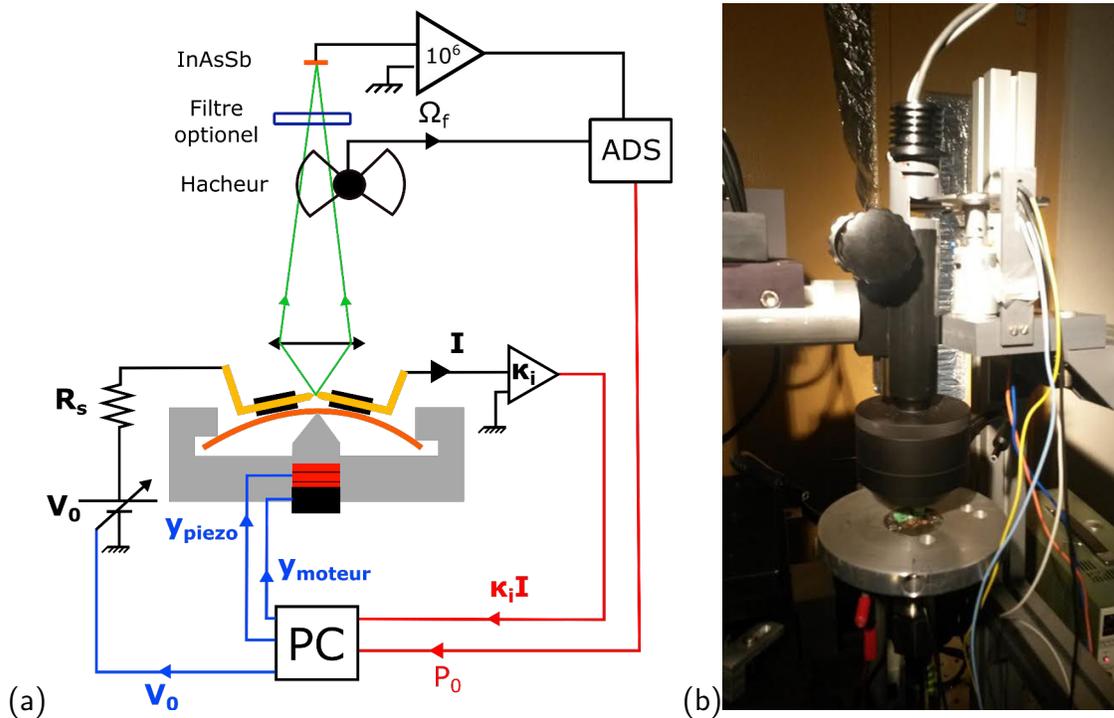


FIGURE 3.11 – (a) Chaîne d'acquisition des grandeurs électriques et du rayonnement dans la gamme du proche IR. On utilise un objectif à miroirs type Cassegrain, focalisant le rayonnement sur le détecteur photovoltaïque InAsSb dont la sortie est envoyée sur l'entrée d'un amplificateur ( $I/V$ ) de gain  $10^6$ . Le signal optique est modulé à  $\Omega_f = 460 \text{ Hz}$  par un hacheur mécanique afin d'être analysé par un amplificateur à détection synchrone (ADS). La sortie de l'ADS,  $P_0$  est envoyée vers l'ordinateur.

Le courant de sortie du détecteur est envoyé dans un amplificateur  $I/V$  de gain variable (gain utilisé  $10^6$ ). Nous préférons un hacheur mécanique pour moduler le signal optique collecté plutôt qu'une modulation tout ou rien de la tension  $V_0$  pour des raisons de stabilité de la jonction. La fréquence de modulation,  $\Omega_f = 460 \text{ Hz}$  proche des recommandations du constructeur, est choisie pour se placer au dessus du bruit électronique en  $1/f$  du détecteur, de fréquence de coupure  $f_c \simeq 100 \text{ Hz}$ . Le signal mesuré est ensuite démodulé par une détection synchrone (Zurich Instrument HF2-LI). La bande passante du filtre de la détection synchrone est fixée à  $1.65 \text{ Hz}$  ce qui nous donne accès à un niveau de détection de l'ordre du  $nW$ . Nous récupérons simultanément la réponse du détecteur et les grandeurs électriques de la jonction via la carte entrées/sorties de l'ordinateur (voir schéma de la figure 3.11).

Comme pour le visible, toute information spectroscopique sur le rayonnement peut nous apporter des informations intéressantes sur les mécanismes liés à l'électroluminescence

Filtre	Bande spectrale explorée
$\emptyset$	[ 0.2 ; 1.2 eV ]
<i>Si</i>	[ 0.2 ; 1.1 eV ]
<i>Ge</i>	[ 0.2 ; 0.7 eV ]

TABLE 3.1 – Bande spectrale associée aux différents filtres utilisés.

des CMP. Avec un tel détecteur monocanal la méthode la plus adaptée serait la spectroscopie par transformée de Fourier. Nous l'avons envisagée mais sa mise en place sort du cadre exploratoire de cette thèse.

Ici, nous avons simplement choisi d'utiliser des plaquettes de semiconducteur comme filtre passe bas en énergie. Bien que cela ne nous donne pas accès à un "spectre" cela nous permet d'obtenir quelques informations spectrales sur le rayonnement. La bande passante du détecteur s'étale sur  $E \in [ 0.2 ; 1.2 eV ]$ , nous avons utilisé le silicium et le germanium, d'énergie de gap respectives de 1.1 et 0.7 eV, afin de la découper en trois sous-bandes (voir tableau 3.1). Nous mesurons ainsi la proportion relative des signaux dans différentes bandes spectrales.



# Chapitre 4

## Outils de traitements numériques des données

*Nous y présentons au lecteur les principaux outils de traitements numériques que nous avons utilisé. En effet, travaillant à température ambiante nous accumulons une très grande quantité de données. Par soucis de rigueur nous traitons statistiquement ces données avec une méthode adaptée des calculs d'histogrammes. Nous y montrons comment nous discrétisons la distribution continue d'une variable. Cette distribution discrète facilite l'analyse par classes des données. Nous introduisons aussi un outil de comparaison de la forme des spectres optiques.*

### 4.1 Réduction de nuages de points

L'objet de cette thèse est l'étude des mécanismes d'émission de lumière depuis des CMP. Les expériences d'exploration vont nous pousser à étudier la quantité de lumière  $Y = N_c$  en fonction des différents paramètres électriques, notés  $X$ , caractérisant le CMP ( $G, V_{bias}, I$ ). Un traitement statistique des données sera nécessaire pour en extraire la physique sous-jacente. Nous nous appuierons sur un exemple artificiel d'une évolution exponentielle bruitée de  $Y$  comme fonction de  $X$  pour illustrer notre démarche.

Nous enregistrons simultanément le signal optique mesuré et les paramètres électriques sur de très longues durées de fonctionnement ce qui nous permet d'accumuler un grand nombre de données. Bien que la tension  $V_0$  est contrôlée, nous ne maîtrisons pas la valeur des paramètres électriques du CMP. Nous obtenons un nuage de points  $Y$  comme fonction  $X$ , représenté sur le graphe de la figure 4.1.

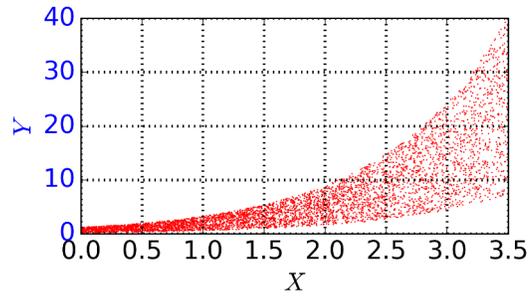


FIGURE 4.1 – Exemple de mesure artificielle de signal optique  $Y$  comme fonction d'un paramètre électrique  $X$ .  $Y$  est une exponentielle bruitée de  $X$ .

Nous sommes confrontés aux mêmes problématiques que pour les calculs d'histogramme. Nous découpons donc notre axe des abscisses  $X$  en  $n_x$  classes (voir figure 4.2), en suivant la loi de Doane [36], qui est adaptée pour des distributions non-normales. Elle est donnée par l'équation 4.1 où  $m$  est le nombre de points et  $g_1$  correspond au 3ème moment de la distribution des points  $X$ .

$$n_x = 1 + \log_2(m) + \log_2\left(1 + \frac{|g_1|}{\sigma_{g_1}}\right) \quad (4.1)$$

$$\sigma_{g_1} = \sqrt{\frac{6(m-2)}{(m+1)(m+3)}} \quad (4.2)$$

Ceci nous permet d'avoir un découpage en classes non-arbitraires et de comparer des expériences n'ayant pas le même nombre de points de mesures.

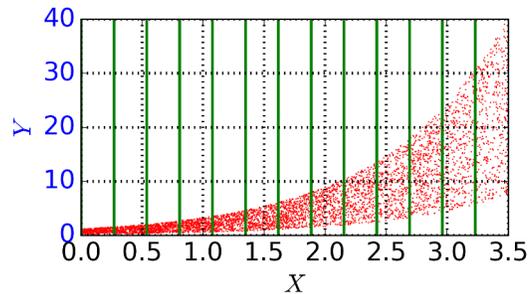


FIGURE 4.2 – Exemple de découpage d'une distribution de valeur de  $X$  en  $n_x$  classes (lignes vertes), en suivant la loi de Doane donnée dans l'équation 4.1.

Ensuite nous calculons sur ces différentes classes les valeurs moyennes de  $Y$  (voir figure 4.3). Dans chaque classe, l'erreur sur la moyenne est liée à l'écart quadratique

moyen divisé par la racine carré du nombre de points contenus dans la classe. Ceci nous permet donc de réduire un nuage de points 2D en une série de points nous permettant d'étudier l'évolution de  $Y$  comme fonction de  $X$ .

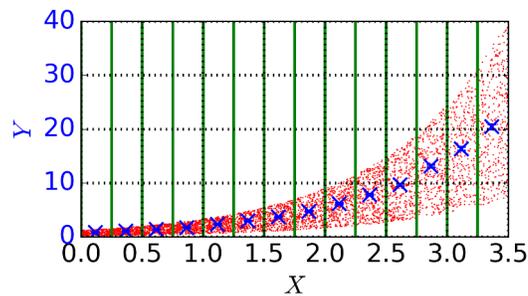


FIGURE 4.3 – Calcul des valeurs moyennes (croix bleues) de  $Y$  avec leurs erreurs sur chaque classe de  $X$ .

Nous avons représenté sur le graphe de la figure 4.4 un ajustement des valeurs moyennes de  $Y$  en fonction de  $X$  à l'aide d'un modèle  $y(x) = A \exp(Bx)$ ,  $A$  et  $B$  étant les paramètres d'ajustement. On peut voir que les valeurs moyennes calculées dans chaque classe et l'ajustement sont en très bon accord, validant ainsi notre méthode d'analyse. Cette méthode sera utilisée au chapitre 5 et 7.

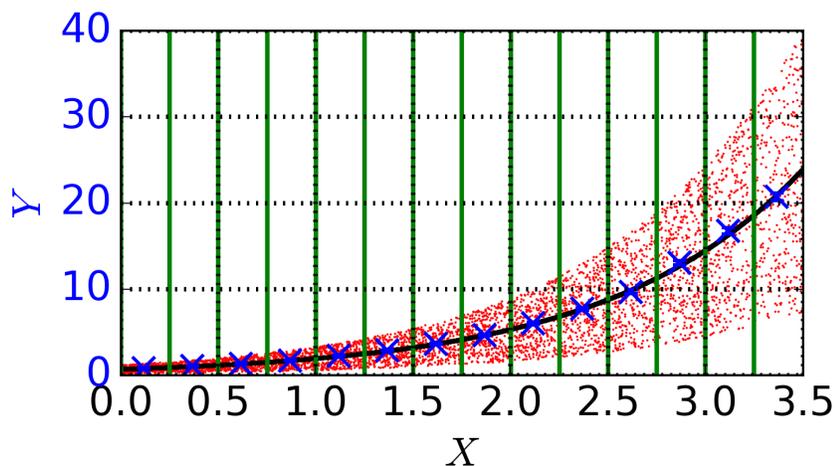


FIGURE 4.4 – La ligne noire représente l'ajustement d'un modèle exponentiel avec les valeurs moyennes calculées dans chaque classe. On constate un très bon accord entre les valeurs extraites par notre méthode de traitement et les résultats de l'ajustement.

## 4.2 Comparaison de spectres

Au cours de ce manuscrit nous allons être amenés à comparer des spectres lumineux émis depuis notre CMP. Nous voulons les comparer en forme en nous affranchissant d'éventuelles variations d'intensité. Pour cela, nous normalisons les spectres par leur intégrale afin de nous intéresser uniquement à la répartition spectrale de la puissance optique  $L(E)$ , où  $E$  est l'énergie des photons.

Nous introduisons la similarité, un outil mathématique, permettant de comparer deux spectres, notés  $i$  et  $j$ . Nous définissons la similarité  $\gamma_{ij}$  de deux spectres comme la somme des écarts quadratiques en tous points  $p$  de deux spectres (voir équation 4.3). Ce calcul est inspiré de la méthode des moindres carrés.

$$\gamma_{ij} = \sum_p (L_i(E_p) - L_j(E_p))^2 \quad (4.3)$$

$\gamma_{ij}$  est positif, valant zéro pour deux spectres identiques et augmente avec leur dissemblance. Pour illustrer l'intérêt de l'outil, nous avons calculé cette grandeur pour une série de spectres présentés sur la figure 4.5.

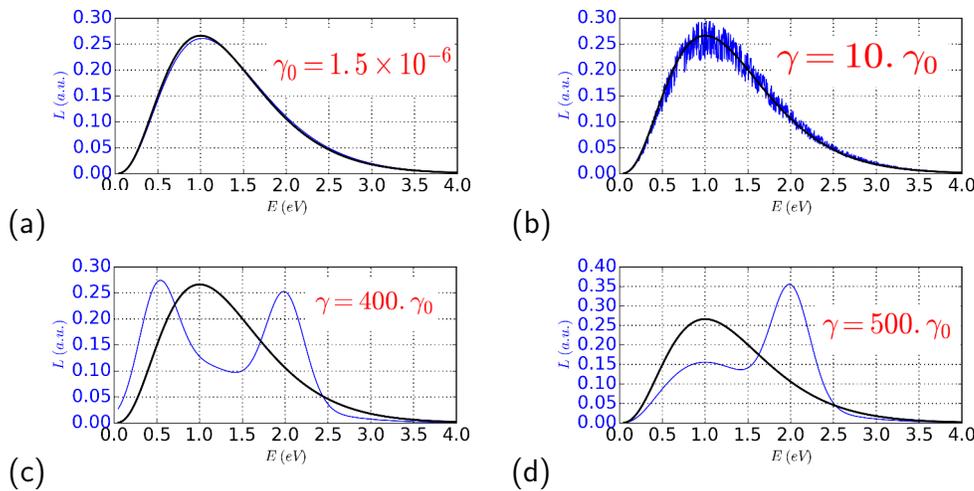


FIGURE 4.5 – Comparaison de différents spectres par calcul de  $\gamma$ . Par définition, deux spectres strictement identiques donne  $\gamma = 0$

Dans le chapitre 6, nous serons amenés à comparer des spectres évoluant au cours du temps et nous utiliserons cet outil.

# **Deuxième partie**

## **Résultats et Discussion**



# Chapitre 5

## Émission de lumière dans le visible

*Dans lequel la lumière collectée dans le visible est étudiée. Le montage optique, associé à notre MCBJ, nous permet d'imager la jonction et de recueillir l'électroluminescence du CMP. Nous présentons au lecteur l'évolution du signal en fonction des grandeurs électriques. Une étude quantitative du signal optique émis en fonction de la puissance électrique injectée est réalisée dans la classe de données correspondante à des contacts quasi-monoatomiques ( $G \simeq 2e^2/h$ ). Notre approche fait suite aux travaux du groupe de Marseille, qui s'appuyaient sur un modèle développé par le groupe de Kiev. Les résultats y sont décrits comme le rayonnement (de type corps noir) d'un gaz à des températures de l'ordre de 2000 K d'électrons chauds. Par un ajustement numérique nous déterminons l'efficacité de chauffage de ce gaz d'électrons chauds.*

### 5.1 Image de la jonction

Les avancées dans la fabrication d'échantillons et le montage optique utilisé, décrits dans la partie précédente, nous permettent d'obtenir un signal optique confortable. En effet, pour moins d'un  $mW$  dissipé dans la jonction, on observe de la lumière à l'œil nu.

Nous présentons dans la figure 5.1 une image d'un échantillon, éclairé pour reconnaître le fil, capturée par notre CCD. L'illumination est intentionnellement faible afin d'avoir le contraste suffisant pour distinguer l'image de notre jonction de l'électroluminescence du CMP. On peut voir sur la figure 5.1 les deux électrodes macroscopiques alignées selon l'axe horizontal et la zone de contact émettant un rayonnement.

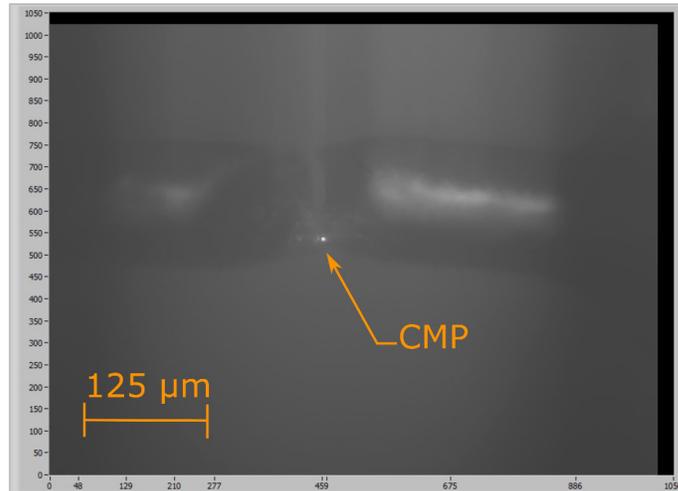


FIGURE 5.1 – Image en niveau de gris de la jonction illuminée et de l'électroluminescence du CMP, les abscisses et ordonnées correspondent au numéro de ligne et de colonne des pixels de la matrice CCD. Le grandissement utilisé est de  $\times 30$ .

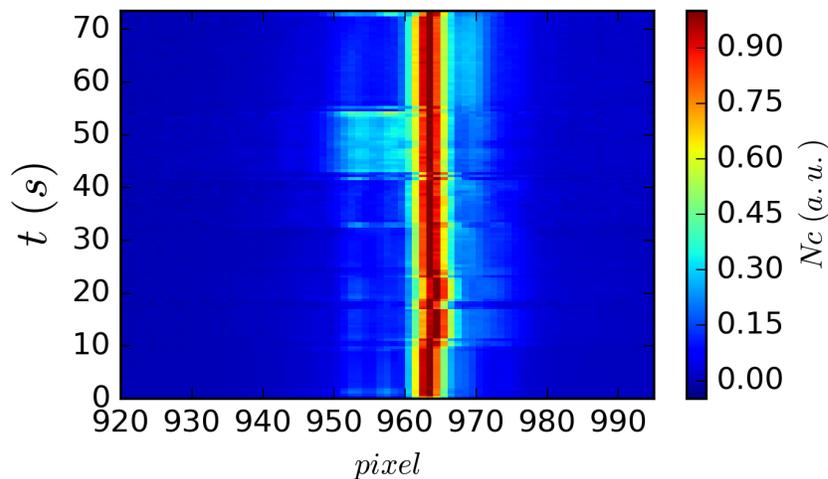


FIGURE 5.2 – Profil spatial 1D de l'image de la source acquise sur une durée totale de 74 secondes. En ordonnée, le temps auquel est acquis le profil, en abscisse le numéro du pixel. On constate que la position du maximum est stable à un pixel près sur l'ensemble de la série de profils.

Le point lumineux évolue en intensité mais sa position ne change pas. Pour l'illustrer nous présentons dans cette série d'expériences le profil spatial, normalisé par le maximum, du signal émis que nous avons enregistré pendant une minute et représenté sur le graphe

de la figure 5.2. On peut voir que le maximum est stable en position au cours du temps. C'est important pour deux aspects de notre protocole de mesure :

- En mode comptage<sup>1</sup>, nous enregistrons le nombre de coups, non pas sur toute l'image, mais sur un superpixel centré sur le maximum du profil d'émission.
- En mode spectroscopie, il est indispensable que la source ne bouge pas durant l'ensemble de nos mesures.

## 5.2 Étude de l'intensité lumineuse

### Évolution temporelle. Espace $(G, P_e)$

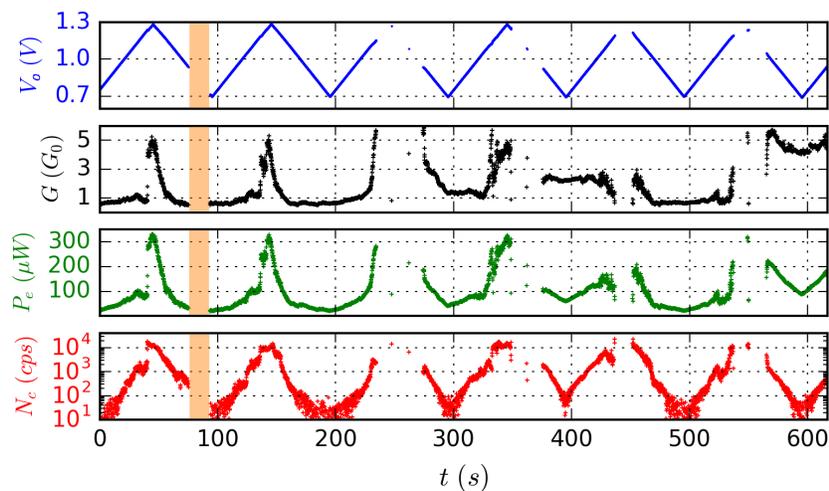


FIGURE 5.3 – Évolution temporelle de la tension de consigne  $V_0$  (points bleus), de la conductance du contact  $G$  (croix noires), de la puissance électrique injectée dans le contact  $P_e$  (croix vertes) et du nombre de coups  $N_c$  mesurés par un superpixel (croix rouges). Afin d'explorer différentes configurations, on impose un signal triangulaire à  $V_0$  autour de 1 V et  $G$  évolue spontanément dans l'intervalle  $[0.6; 6 G_0]$ . La bande beige symbolise une période où la conductance est hors de la fenêtre. La boucle de régulation est activée et aucune donnée n'est enregistrée pendant ce laps de temps.

Nous présentons ici les différents résultats concernant l'étude de l'intensité de l'électroluminescence du CMP soumis à une tension de polarisation  $V_{bias}$  et parcouru

1. Nous utilisons le terme de comptage pour signifier que nous comptons la totalité des événements, par opposition au mode spectroscopie où la lumière est dispersée et nous comptons le nombre d'événements en fonction de l'énergie des photons.

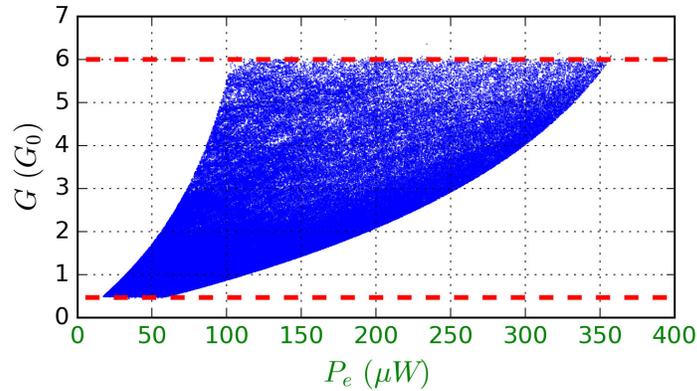


FIGURE 5.4 – Ensemble des couples de variables  $(P_e, G)$  mesurés, représentant l'espace des phases exploré. Les pointillés rouges indiquent les limites haute et basse de l'intervalle de conductance fixé. La tension  $V_0$  appliquée au circuit varie entre 0.7 et 1.3 V.

par un courant  $I$ . Afin d'étudier le signal lumineux collecté, nous intégrons tous les photons arrivant depuis le contact sur la matrice CCD. Nous enregistrons simultanément la quantité de photons  $N_c$  reçus par un superpixel du détecteur pendant le temps d'exposition  $t_{exp} \simeq 100 \text{ ms}$ , ainsi que le courant  $I$  moyenné sur  $t_{exp}$ . Nous déduisons du courant la valeur de la tension appliquée à la jonction  $V_{bias}$  ainsi que sa conductance  $G$ .

Les CMP fabriqués en or présentent un caractère ohmique [33], les trois grandeurs  $(G, I, V_{bias})$  sont donc reliées par la relation  $I = GV_{bias}$ . Il n'y a que deux variables indépendantes. De plus, A.Downes *et al.* [5] ont relié l'émission de lumière des CMP à un corps noir formé par un gaz à la température  $T_e$  d'électrons chauds, où  $T_e$  est fonction de la puissance électrique injectée  $P_e = IV_{bias}$ . Nous choisissons donc naturellement de réduire le triplet de variables  $(G, I, V_{bias})$  au couple  $(G, P_e)$ .

Nous représentons l'évolution temporelle de  $(V_0, G, P_e, N_c)$  sur la figure 5.3. Afin d'augmenter l'espace des phases exploré, nous imposons une tension de consigne triangulaire  $V_0 \in [0.7; 1.3 \text{ V}]$  de période 100 s, permettant de considérer  $V_0$  comme constante sur  $t_{exp}$ . On peut suivre l'évolution spontanée de la conductance  $G$ , contrainte dans l'intervalle  $[0.6; 6 G_0]$ , ainsi que la puissance  $P_e$  effectivement injectée dans notre contact.

Nous avons placé l'ensemble des couples  $(G, P_e)$  mesurés sur le graphe de la figure 5.4, représentant l'espace des phases exploré. Faisant cela, nous oublions la chronologie des états explorés par le CMP.

On ajoute à ce couple de variables, le nombre de coups mesurés par notre caméra. L'accumulation d'une grande quantité de triplets  $(G, P_e, N_c)$ , environ 471.000, nous permet d'appliquer notre traitement statistique présenté dans le chapitre 4, mais à un nuage de points 3D. Nous obtenons le graphe de la figure 5.5 avec en abscisses la puissance électrique injectée dans le contact en  $\mu W$ , en ordonnées la conductance du contact en unité de  $G_0$  comme plus haut. Nous rajoutons en échelle de couleurs le logarithme décimal de  $N_c$  calculé sur chaque classe. On remarque deux tendances sur ce graphe :

-A  $G$  constant il y a une augmentation de  $N_c$  sur quatre ordres de grandeur avec la puissance  $P_e$  variant sur un ordre de grandeur.

-En revanche, à puissance électrique constante  $N_c$  diminue avec une augmentation de la conductance. Nous y reviendrons dans la discussion.

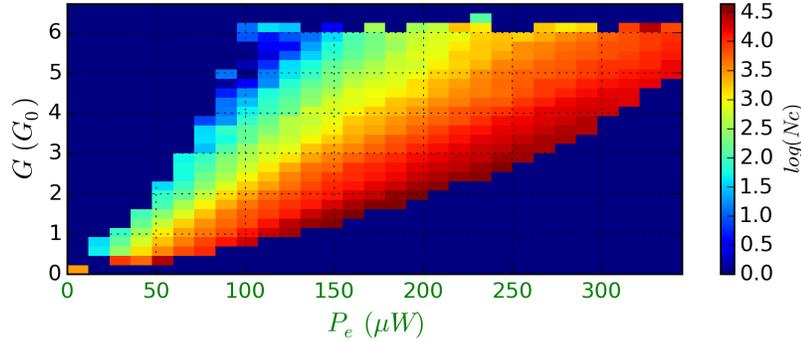


FIGURE 5.5 – Représentation en échelle de couleurs du logarithme décimal de la moyenne de  $N_c$ , calculée à l'aide de la méthode décrite au chapitre 4, en fonction du couple de variables  $(G, P_e)$ .  $G$  est exprimée en unité de  $G_0$ ,  $P_e$  en  $\mu W$ . A  $G$  constant,  $N_c$  augmente de quatre ordres de grandeur avec  $P_e$  variant sur un ordre de grandeur. A  $P_e$  constante,  $N_c$  diminue avec une augmentation de  $G$ . Nous y reviendrons dans la discussion.

Les travaux de A.Downes *et al.* [5] ont placé leur analyse dans le cadre du modèle développé par le groupe de Kiev [6] : Les électrons chauds athermiques injectés par le contact ponctuel forment un gaz thermalisé à une température  $T_e$  sur des distances inférieures à la longueur d'interaction électron-phonon.  $T_e$  est reliée à la puissance électrique injectée par l'équation 5.1 où  $\alpha$  traduit l'efficacité d'échauffement du gaz d'électrons chauds.

$$k_B T_e = \sqrt{(k_B T_L)^2 + \alpha P_e} \quad (5.1)$$

Lorsque  $T_L \ll T_e$  cette équation est réduite à :

$$k_B T_e = \sqrt{\alpha P_e} \quad (5.2)$$

Pour entreprendre une étude plus quantitative, nous allons d'abord restreindre l'espace des phases à  $G \in [0.93; 1.15 G_0]$ . Nous nous limitons donc aux données acquises pour des conductances autour de  $G_0$ , comme si nous les avions mesurées sur un plateau de conductance.

## Contact monoatomique et gaz d'électrons chauds

Après avoir classé les triplets de points  $(G, P_e, N_c)$  tel que  $G \in [0.93; 1.15 G_0]$ , nous calculons la valeur moyenne de  $N_c$  (voir figure 5.6) selon la méthode décrite dans le chapitre 4. Ceci revient à considérer une coupe horizontale de la figure 5.5, coupant l'axe vertical à  $G = G_0$ .

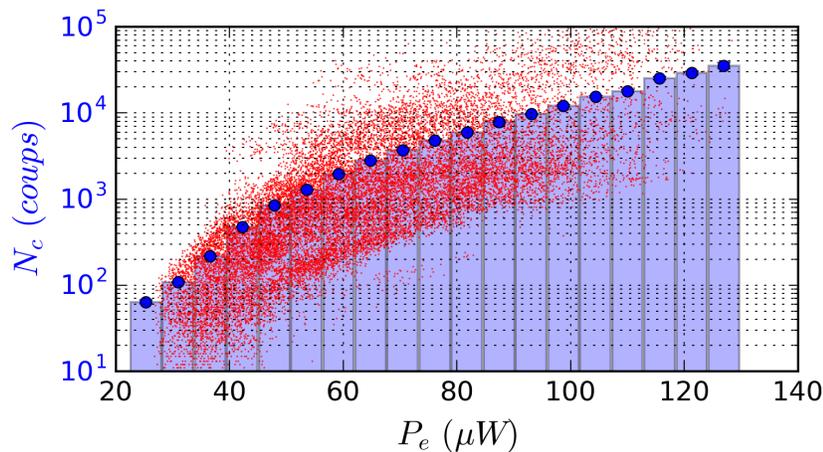


FIGURE 5.6 – Pour la classe de données autour du quantum de conductance,  $G_0$ , évolution de la quantité de signal visible  $N_c$  en fonction de la puissance électrique injectée  $P_e$ . Les points rouges indiquent l'ensemble des points de mesure de  $N_c$  en fonction de  $P_e$ . Les colonnes bleues indiquent le découpage de l'axe des abscisses en classes de  $P_e$ . Les ronds bleus indiquent les valeurs moyennes de  $N_c$  calculées sur chaque classe de  $P_e$ .

Si nous suivons le modèle décrit par A.Downes *et al.* [5], nous pouvons écrire  $N_c$  comme la quantité de signal optique émise par un corps noir dans la bande passante  $BW$

de notre détecteur.

$$L(E, T_e) = A \frac{E \rho(E)}{\exp\left(\frac{E}{k_B T_e}\right) - 1} \quad (5.3)$$

$$N_c(T_e) = \int_{BW} F(E) L(E, T_e) dE \quad (5.4)$$

$L(E, T_e)$  est la luminance d'un corps noir à la température  $T_e$ ,  $E$  l'énergie des photons émis,  $A$  une constante de normalisation,  $\rho(E)$  densité d'état optiques ( $\rho(E) \propto E^2$  dans le cas du corps noir) et  $F(E)$  la fonction de réponse du détecteur.

En utilisant l'équation 5.2, on peut remplacer la température du gaz d'électrons chauds par  $\sqrt{\alpha P_e}$  dans l'équation 5.3. Nous ajustons ensuite nos données avec la fonction de l'équation 5.5 par la méthode des moindres carrés,  $\alpha$  et  $A^2$  étant les paramètres d'ajustements.

$$N_c(P_e, A, \alpha) = A \int_{BW} F(E) \rho(E) \frac{E}{\exp\left(\frac{E}{\sqrt{\alpha P_e}}\right) - 1} dE \quad (5.5)$$

Les résultats présentés sur la figure 5.7 montrent un accord très satisfaisant entre notre modèle et les mesures expérimentales.

De cet ajustement de l'intensité de lumière collectée pour des conductances de l'ordre de  $G_0$ , nous obtenons le coefficient d'efficacité d'échauffement des électrons  $\alpha = 0.10\hbar$ . On calcule la température  $T_e$  du gaz d'électrons chauds, à l'aide de l'équation 5.2, que l'on représente sur l'axe horizontal supérieur du graphe de la figure 5.7. On peut noter que  $T_e \gg T_L = 300 K$ , ce qui valide l'hypothèse faite plus haut. De plus, La ligne en pointillés rouges verticale indique la température de fusion de l'or,  $T_m = 1338 K$ .

Remarquons que la valeur de  $\alpha$ , extraite de nos résultats, est extrêmement proche de celles obtenues par A.Downes *et al.* ( $\alpha = 0.09\hbar$  et  $0.11\hbar$ ) [5], dans des conditions de conductances similaires mais dans une géométrie sensiblement différente. Plus récemment, M.Buret *et al.* [12] ont extrait un  $\alpha$ , valant  $0.08\hbar$ , d'expériences d'émission de lumière depuis des jonctions électroformées à des conductances de  $0.8 G_0$ . Nous résumons ces différents résultats dans le tableau 5.1.

---

2.  $A$  est un paramètre de normalisation que nous n'avons pas exploité, relié à la géométrie du système et à la collection de lumière.

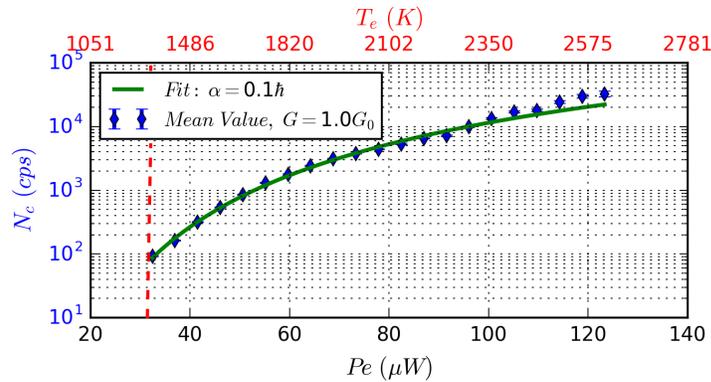


FIGURE 5.7 – Ajustement de la quantité de signal  $N_c$  collectée dans la bande passante de notre caméra CCD en fonction de  $P_e$ , pour  $G \in [0.93; 1.15 G_0]$ .  $\alpha$  est un des paramètres d'ajustements utilisés, traduisant l'efficacité d'échauffement du gaz d'électrons chauds. On peut noter que rapidement  $T_e \gg T_L$ . La ligne en pointillés rouge verticale indique la température de fusion de l'or  $T_m = 1338 K$ .

Groupes	Dispositif	$\alpha$ ( $\hbar$ )
Downes <i>et al.</i> [5]	STMBJ-LE	0.09, 0.11
Buret <i>et al.</i> [12]	Jonction électroformée	0.08
Malinowski <i>et al.</i> [37]	MCBJ-LE	0.10

TABLE 5.1 – Résumé des coefficients  $\alpha$ , extraits des résultats obtenus par les différents groupes. Bien que les géométries et les dispositifs expérimentaux soient différents, les coefficients  $\alpha$ , pour  $G \simeq G_0$  sont très proches.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude de l'intensité intégrée sur toute la bande passante de notre CCD de l'électroluminescence du CMP.

Nous avons exploré des géométries allant du contact monoatomique jusqu'à des contacts de  $6 G_0$ . Nous avons augmenté le nombre de configurations testées en faisant aussi varier la puissance électrique  $P_e$  injectée dans le contact par modulation de la tension de consigne  $V_0$ . Simultanément, nous avons mesuré le nombre de coups  $N_c$  enregistrés par la caméra CCD et le courant électrique  $I$ . Nous avons constaté :

- A  $G$  donnée une très forte augmentation de  $N_c$  avec  $P_e$ .

- A  $P_e$  donnée, une légère diminution de  $N_c$  avec une augmentation de  $G$ .

Nous y reviendrons au chapitre 8.

Nous avons étudié, pour des contacts quasi-monoatomiques, l'évolution de  $N_c$  en fonction de  $P_e$ . Nous avons utilisé un modèle d'émission par un gaz à haute température d'électrons chauds sa température  $T_e$  est reliée à  $P_e$  par un ajustement à nos données expérimentales. La valeur du paramètre  $\alpha$ , traduisant l'efficacité de l'échauffement du gaz d'électrons, extraite de l'ajustement pour  $G \simeq G_0$  est en très bon accord avec des résultats obtenus par différents groupes dans des géométries pourtant très différentes.

On peut interroger plus avant le modèle en analysant le spectre de l'électroluminescence et en le comparant aux prédictions théoriques d'un modèle de type corps noir.



# Chapitre 6

## Spectroscopie Visible

*Dans lequel l'électroluminescence du contact, sous une tension de polarisation  $V_{bias}$ , est analysée spectralement. Nous y reportons d'abord la détection de photons d'énergie  $E$  supérieure à  $2eV_{bias}$  pour  $V_{bias} = 0.56$  V. Sur des durées longues d'acquisition, les spectres moyens confirment le modèle du gaz à haute température d'électrons chauds. Sur de plus courtes durées, les spectres acquis, qui capturent des géométries plus éphémères, permettent toutefois de faire le lien avec le groupe de Kiel en montrant des émissions structurées typiques de résonances plasmoniques de cavité. L'utilisation de la similarité spectrale  $\gamma$ , introduite au chapitre 4, nous permet d'estimer un temps caractéristique d'évolution de la cavité.*

### 6.1 Spectroscopie optique

Nous avons vu au chapitre précédent que l'intensité totale issue de l'expérience était compatible avec un modèle d'émission à partir d'un gaz à haute température d'électrons chauds. Un tel gaz ne saurait avoir un spectre d'émission quelconque. Afin de confirmer ce modèle nous avons entrepris une analyse spectroscopique du rayonnement.

Le modèle n'impose pas de limite supérieure à l'énergie des photons émis, contrairement au phénomène de STM-LE où  $E < eV_{bias}$  [4]. Le groupe de R. Berndt, ayant observé une coupure dans le spectre à  $E = 2eV_{bias}$ , a proposé un modèle d'excitation à deux électrons de type "Auger" assisté par des trous chauds [11]. Ce modèle permettant de rendre compte de la présence de photons d'énergie supérieure à celle des électrons excitateurs, impose par construction une limite dans le spectre d'émission à  $E = 2eV_{bias}$ .

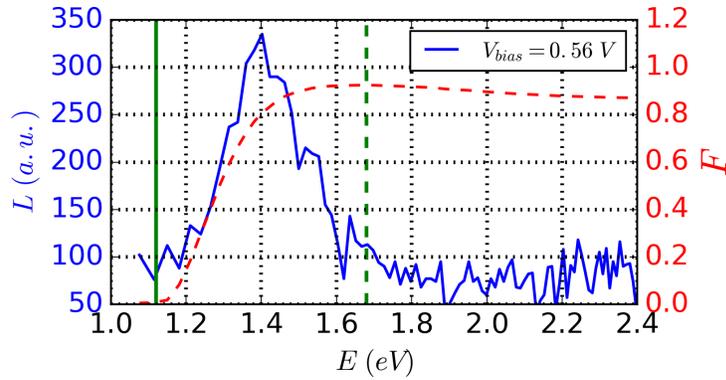


FIGURE 6.1 – Spectre émis par le CMP pour une tension de polarisation  $V_{bias} = 0.56 V$ , une conductance  $G \simeq G_0$  sur une durée d'acquisition de 90 s. La ligne continue verte indique la limite  $E = 2 eV_{bias}$ , la ligne en pointillés verte indiquent la limite  $E = 3 eV_{bias}$ . La réponse de la caméra (pointillé rouge) est représentée à titre indicatif sur l'échelle de droite mais n'est pas prise en compte.

Comme nous l'avons écrit en introduction, sur ce point précis les résultats du groupe de Kiel et de Marseille diffèrent.

Après A.Downes *et al.* [5] et plus récemment M.Buret [12], nous confirmons ici que l'émission de photons d'énergie  $E > 2eV_{bias}$  est parfois possible. A faible tension de polarisation ( $V_{bias} = 0.56 V$ ) nous observons un signal au delà de  $E = 2 eV_{bias}$  reporté dans la figure 6.1. Des photons d'énergie allant jusqu'à  $3.eV_{bias}$  sont détectés.

Ces résultats, à température ambiante, à l'air et à faible tension de polarisation, confortent un modèle d'électroluminescence par un gaz à haute température d'électrons chauds. Le mécanisme proposé par le groupe de R.Berndt, rend très bien compte de leurs expériences. Toutefois il ne suffit pas à expliquer l'ensemble des observations expérimentales. M.Buret *et al.* ont avancé une explication à cette divergence : Les photons émis à haute énergie,  $E > 2.4 eV$ , peuvent occasionner des transitions électroniques de la bande 5d vers la bande de conduction [38] (voir figure 6.2). La limite,  $E = 2 eV_{bias}$ , ne serait donc atteinte qu'à forte polarisation ( $V_{bias} > 1.2 V$ ) et ne serait pas intrinsèque au mécanisme d'excitation ou d'émission mais au matériau formant le contact.

Nous avons vu précédemment, dans les figures 5.5 et 5.7, que la quantité de lumière semblait liée à la puissance électrique  $P_e$  injectée dans le contact. Nous présentons sur le graphique de la figure 6.3(a) le spectre intégré sur une durée de 10 min, en imposant

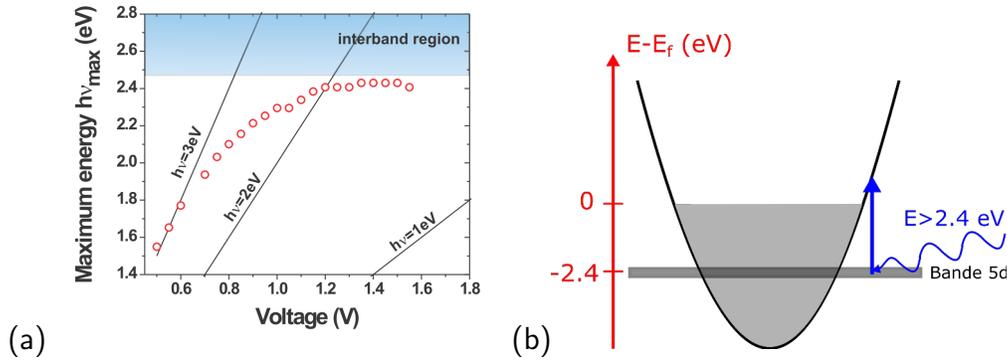


FIGURE 6.2 – (a) Energie maximale des photons collectés en fonction de la tension de polarisation des électrons, mesurée dans des expériences d’émission de lumière depuis des jonctions atomiques électroformées, extrait de [12]. Sur ce graphique sont repérés les limites  $E = eV_{bias}$ ,  $E = 2.eV_{bias}$  et  $E = 3.eV_{bias}$  ainsi que la zone d’absorption interbande des photons. (b) Exemple de transition électronique entre la bande 5d et la bande de conduction pour des photons d’énergies supérieures à  $2.4$  eV.

$V_0 = 1.5$  V. Remarquons que la conductance évoluant spontanément pendant ces dix minutes,  $V_{bias}$  évolue aussi.

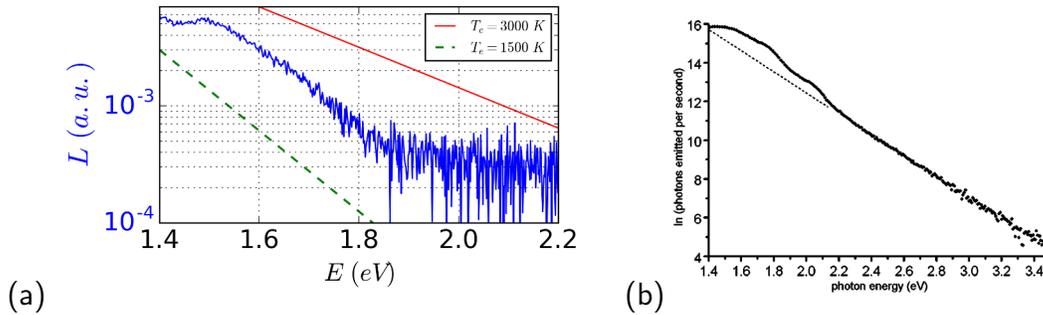


FIGURE 6.3 – (a) Spectre émis depuis notre échantillon intégré sur une durée de  $10$  min, avec  $V_0 = 1.5$  V. Le spectre présente une décroissance exponentielle, de coefficient  $-1/(k_b T_e)$ . La ligne de pointillés verts correspond à une température  $T_e = 1500$  K. La ligne rouge correspond à une température  $T_e = 3000$  K. (b) Spectre d’émission acquis en STM-BJ par A.Downes *et al.* [5], avec  $V_{bias} = 1$  V. Ils en déduisent une température électronique  $T_e = 1930$  K.

Le spectre mesuré présente un comportement en exponentiel décroissante. Nous avons représenté sur ce graphe les pentes attendues pour des corps noirs de température  $1500$  K (pointillés verts) et  $3000$  K (ligne rouge). Nous retrouvons des résultats similaires à ceux obtenus par A.Downes *et al.* [5] (voir figure 6.3(b)) ainsi que ceux obtenus par

M.Buret *et al.* [12] sur la décroissance exponentielle de la partie hautes énergies du spectre. On observe de légères modulations, sur nos spectres, similaires à celles rapportées par A.Downes *et al.* [5] et M.Buret *et al.* [12]. En revanche, les spectres présentés dans la figure 6.3 acquis à température ambiante sur de longues durées ne présentent pas la structuration plasmonique importante rapportée par le groupe de Kiel [11].

## 6.2 Modulation plasmonique par la cavité

Le spectre présenté sur la figure 6.3(a) a été mesuré sur une durée de dix minutes. Que se passe-t-il si nous réduisons le temps d'acquisition des spectres ?

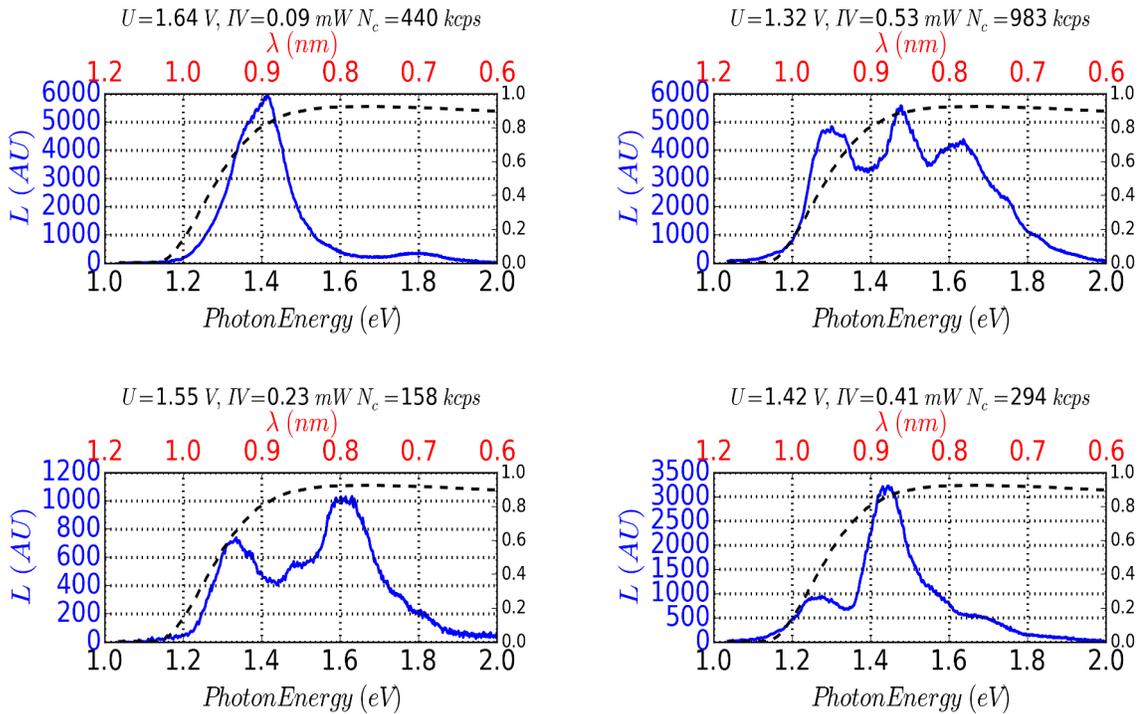


FIGURE 6.4 – Spectres mesurés sur un temps d'exposition de  $t_{exp} = 500$  ms dans différentes conditions de tension de polarisation et de puissance électrique injectée  $P_e$ . Les spectres sont sélectionnés au hasard sans corrélation en temps. Les spectres ne sont pas corrigés de la réponse spectrale de la caméra, qui est représentée à titre indicatif (pointillés noirs). Réduire le temps d'exposition laisse moins de temps à la géométrie pour évoluer. Geler le système à basse température est un autre moyen.

Nous présentons, dans la figure 6.4, des spectres acquis avec un temps d'exposition de  $t_{exp} = 500 \text{ ms}$ .

On retrouve un spectre présentant une structuration importante. Cette structuration en mode est attribuée à la cavité formée par les électrodes au sein de laquelle se trouve notre CMP. La figure 6.4 illustre la diversité des spectres d'émissions que nous pouvons mesurer à partir du "même" échantillon.

Si la géométrie est connue, la réponse de la cavité peut être calculée pour s'en affranchir lors de l'étude de phénomènes sous-jacents. En effet, le calcul analytique de la réponse de la cavité a été réalisé par R.W.Rendell et D.J.Scalapino dans le cas de jonctions tunnel confinées dans des microstructures de géométries variables [39]. Plus tard, en STM-LE, J.Aizpurua *et al.* ont étudié l'influence de la forme de la pointe sur le spectre de la lumière émise [40]. Toutes ces études ont été réalisées dans le cas de jonctions tunnel.

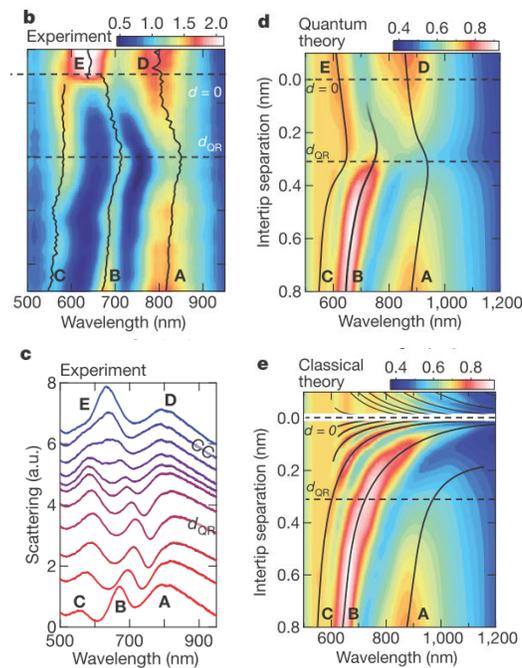


FIGURE 6.5 – Résultats de mesures et prédictions théoriques du décalage des résonances plasmoniques. **b** Évolution de la forme du spectre en fonction de la séparation entre électrodes. **c** Spectres à différentes valeurs de la distance entre électrodes. **d** Résultats obtenus par calculs numériques dans le régime quantique d'émission de lumière. **e** Résultats obtenus par calculs numériques dans le régime classique d'émission de lumière. Extrait de [41]

Que se passe-t-il lorsque l'on réduit la distance séparant les électrodes jusqu'au contact ?

La théorie classique, développée par R.W.Rendell et D.J.Scalapino, prévoit un décalage vers le rouge des résonances lorsque la distance entre les électrodes diminue<sup>1</sup> [39]. Après des prédictions théoriques [42], K.J.Savage *et al.* [41] ont publié une étude, théorique et expérimentale, sur l'existence d'un régime quantique d'émission de lumière dans des jonctions allant du régime tunnel au contact. Ces résultats (voir figure 6.5) montrent un décalage non-monotone des résonances les limitant à des énergies supérieures à  $1.2 eV$ .

### 6.3 Similarité spectrale, évolution de la forme des spectres

Nous présentons sur la figure 6.6 deux spectres consécutifs acquis avec un temps d'exposition  $t_{exp} = 0.25 s$ . Notre dispositif expérimental nous permet d'observer que la fonction de réponse plasmonique de la cavité peut rester inchangée sur des durées de l'ordre de  $0.5 s$ . Nous calculons à titre indicatif la similarité, introduite au chapitre 4, de ces deux spectres  $\gamma = 62.10^{-6}$ .

En une demi-seconde et à température ambiante, les mouvements atomiques dans la proximité du contact sont nombreux, notamment dûs à la diffusion thermique d'atomes [43, 44]. Nous constatons que ces mouvements d'atomes, hors atomes "de contact", n'influencent que peu la modulation par la cavité. Quelle est l'échelle de temps introduisant des modifications de la fonction de réponse de la cavité ?

Nous avons enregistré les spectres d'émissions de manière ininterrompue tant que la régulation n'a pas été activée. Nous représentons, dans la figure 6.7, les spectres acquis au cours du temps. Nous filmons ainsi l'évolution lente de la réponse de la cavité sur des durées de l'ordre de  $3 s$ . On peut voir que, bien que de proche en proche les spectres semblent similaires, des modifications significatives ont eu lieu entre le premier ( $t = 0 s$ ) et le dernier ( $t \simeq 3 s$ ) spectre de cette série.

Afin d'étudier l'évolution temporelle de la cavité, nous avons introduit au chapitre 4 la similarité  $\gamma_{ij}$  de deux spectres  $i$  et  $j$ .  $\gamma$  toujours positif, vaut zéro pour des spectres

1. C'est d'ailleurs en cherchant à observer ce décalage en rapprochant la pointe d'un STM de la surface, sur les conseils de P.Jonhanson, que Downes *et al.* [5] avaient "touché" et étaient passés au contact.

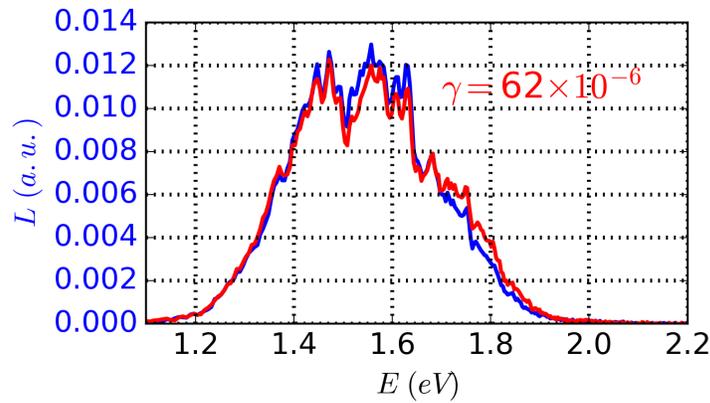


FIGURE 6.6 – Spectres consécutifs d'électroluminescence du CMP.  $L$  correspond à la luminance spectrale normalisée en unité arbitraire et  $E$  énergie des photons. Cas où les deux spectres sont très similaires, facteur de similarité  $\gamma = 62 \cdot 10^{-6}$ .

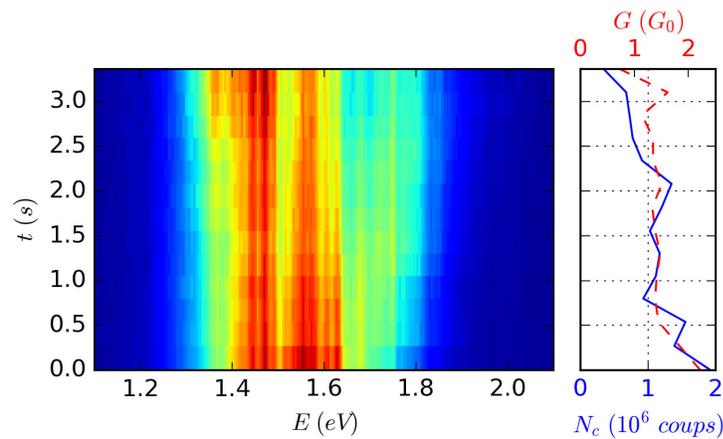


FIGURE 6.7 – A gauche, évolution temporelle du spectre normalisé d'électroluminescence du CMP, tant que la boucle de régulation n'est pas activée. Nous portons en abscisse l'énergie  $E$  des photons. L'échelle de couleurs s'étend du bleu au rouge, le rouge correspondant au maximum d'amplitude. A droite, évolution temporelle du nombre de coups  $N_c$  mesurés sur la totalité du spectre et de la conductance  $G$  du CMP portées sur les axes des abscisses. Le temps est reporté sur l'axe des ordonnées commun aux deux figures.

identiques. Nous appliquons cette méthode sur les séries de spectres consécutifs pendant lesquelles la régulation n'a pas été activée.

Au sein d'une série, nous comparons un spectre à  $t_i$  avec un spectre à  $t_j = t_i + \tau$  en calculant  $\gamma_{ij} = \gamma(t_i, \tau)$ . Afin d'obtenir une mesure moyenne de la similarité de deux spectres séparés de  $\tau$ , nous appliquons cet outil mathématique à l'ensemble des couples

de spectres  $i$  et  $j$  séparés de  $\tau$ . Ainsi, on calcule la similarité moyenne  $\Gamma$  tel que :

$$\Gamma(\tau) = \langle \gamma(t_i, \tau) \rangle_{t_i} \quad (6.1)$$

On reporte dans la figure 6.8 les résultats de ce calcul étendu à l'ensemble des séries de spectres. On peut voir ici que  $\Gamma$  est une fonction croissante de  $\tau$ .

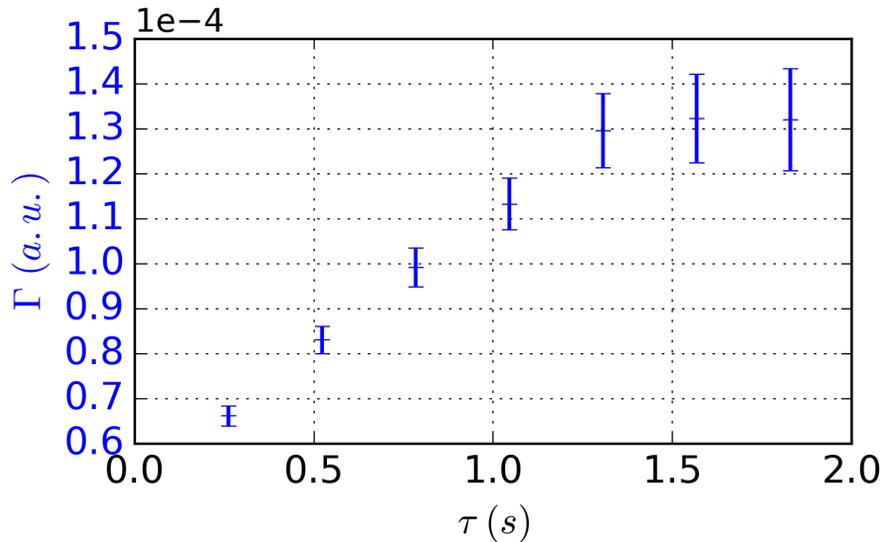


FIGURE 6.8 – Évolution de la similarité moyenne  $\Gamma$  avec  $\tau$ , calculée sur des séries de spectres consécutifs tant que la régulation n'a pas été activée.

## Conclusion

Dans ce chapitre nous avons mis en évidence, à faible tension de polarisation, des spectres composés de photons à des énergies supérieures au double de l'énergie de polarisation des électrons.

En travaillant sur des temps d'acquisition longs, les spectres acquis ne présentaient pas de structuration plasmonique importante. Le comportement en exponentielle décroissante de la partie haute énergie du spectre est attribué au rayonnement type corps noir du gaz à haute température d'électrons chauds.

Notre montage et la mise à profit de l'évolution de la cavité, nous ont permis de mettre en évidence une grande variété de réponses spectrales de la cavité, formée par les

deux électrodes du CMP. En introduisant le concept de similarité spectrale, nous avons pu comparer les spectres et suivre l'évolution temporelle de la cavité sur des durées de l'ordre de la seconde.

Le spectre d'électroluminescence d'un contact métallique ponctuel a été assimilé à celui d'un corps noir à des températures de l'ordre de  $2000\text{ K}$ . Suivant la loi de Wien, le maximum du spectre se trouve à  $E = 0.8\text{ eV}$ . La majeure partie de l'énergie rayonnée devrait se trouver dans une gamme d'énergie inférieure à l'énergie limite de détection de notre CCD,  $E = 1.1\text{ eV}$ .

C'est l'une des motivations qui nous a conduit à explorer l'électroluminescence dans le domaine infrarouge.



# Chapitre 7

## Émission de lumière dans l'infrarouge

*Dans lequel l'émission infrarouge depuis des contacts métalliques ponctuels est étudiée. Le même type d'analyse que dans le visible est mené. La bande spectrale de réponse du détecteur peut être réduite en utilisant des fenêtres en silicium et germanium.*

### 7.1 Signal infrarouge

A notre connaissance, aucune mesure d'émission de lumière dans l'infrarouge depuis des CMP n'avait été réalisée avant ces travaux de thèse. Si le modèle développé dans les chapitres précédents est correct alors un gaz à la température  $T_e \simeq 2000 \text{ K}$  d'électrons chauds devrait émettre la majeure partie de son signal dans l'infrarouge.

Dans le domaine visible, l'émission de lumière est couplée avec les modes de plasmons liés à la cavité dans laquelle se trouve le contact (voir chapitre 6). Ces modes ont une influence sur le spectre d'émission de lumière. En revanche, comme nous l'avons précisé au chapitre précédent, dans l'infrarouge, ces résonances ne sont pas attendues [41].

Ces travaux de thèse présentent la première preuve expérimentale d'infrarouges dans le spectre d'électroluminescence du contact métallique ponctuel soumis à une différence de potentiel  $V_{bias}$  et parcouru par un courant  $I$  [45]. Bien que l'on s'attende à avoir une plus grande quantité de signal dans l'infrarouge la sensibilité des détecteurs dans ce domaine d'énergie est bien moindre que dans le visible. Ceci nous incite à augmenter les tensions de consignes et à contraindre la conductance dans un intervalle plus large que dans le visible  $[0.5 ; 20 G_0]$ . Nous représentons sur le graphe de la figure 7.1 l'évolution

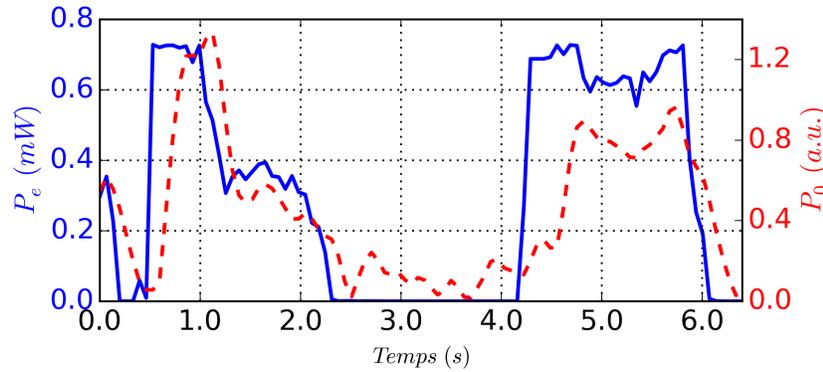


FIGURE 7.1 – Évolution temporelle de la puissance électrique  $P_e$  (ligne bleue) et du signal optique  $P_0$  (pointillé rouge). Le décalage temporel traduit la constante de temps de la chaîne de mesure optique.

temporelle de la puissance électrique injectée dans le contact  $P_e$  et le signal reçu par notre détecteur  $P_0$  sur la totalité de sa bande passante [ 0.2 ; 1.2 eV]. Dans la figure 7.1, en nous mettant au dessus du bruit en  $1/f$  (voir chapitre 3), nous avons pour ces expériences un rapport signal sur bruit de 6 au maximum.

## 7.2 Répartition spectrale du signal infrarouge

Nous avons accès à trois bandes d'énergies dans le domaine du proche infrarouge en utilisant nos plaquettes en silicium et germanium comme décrit dans le chapitre 3. Nous enregistrons, à  $V_0 = 1.7 V$  et pour  $G \simeq 10 G_0$  le signal optique  $P_0$  émis par le CMP, en plaçant devant notre détecteur les différents filtres. Les mesures expérimentales correspondantes sont effectuées avec un unique échantillon et au cours de la même série de mesures.

Ces résultats sont résumés dans le tableau 7.1. Notons que nous avons environ 50% du signal dans la bande passante du germanium.

De ces données nous calculons la quantité de signal dans les trois sous-bandes, rapportée au signal sur toute la bande spectrale de réponse du détecteur. Nous calculons pour différentes températures  $T_e$  ces proportions que nous résumons dans le tableau 7.2.

Filtres	$P_0$ (a.u.)
$\emptyset$	$1.05 \pm 0.04$
Si = 1.12 eV	$0.95 \pm 0.08$
Ge = 0.68 eV	$0.56 \pm 0.06$

TABLE 7.1 – Signal optique  $P_0$  mesuré avec ou sans filtre semi-conducteur pour  $G \simeq 10 G_0$ . Nous avons indiqué la valeur limite supérieure de la bande passante de nos filtres.

On peut voir que les valeurs mesurées se rapprochent des valeurs calculées pour  $T_e \simeq 2500 K$ , température cohérente avec le reste de nos résultats obtenus dans le visible.

Bien que rudimentaires, les résultats de cette étude de répartition d'énergie viennent s'ajouter au faisceau de preuves expérimentales qui supposent un modèle de gaz d'électrons chauds pour source de lumière dans les contacts métalliques ponctuels.

Bande Spectrale (eV)	$Q_{mes}$	$Q_c(300 K)$	$Q_c(1337 K)$	$Q_c(2500 K)$
[ 0.2 ; 0.7 ]	$0.56 \pm 0.06$	0.99	0.92	0.68
[ 0.7 ; 1.1 ]	$0.37 \pm 0.14$	$1.10^{-7}$	0.07	0.28
[ 1.1 ; 1.2 ]	$0.08 \pm 0.12$	$7.10^{-15}$	0.002	0.04

TABLE 7.2 –  $Q_{mes}$  est la proportion du signal optique mesuré pour  $P_e = 650 \mu W$  et  $G \simeq 10 G_0$  dans chaque bande spectrale.  $Q_c$  est la proportion du signal calculée dans chaque bande pour un corps noir à différentes températures. La sensibilité du détecteur a été prise en compte dans le calcul.

## 7.3 Signal infrarouge fonction de la puissance électrique injectée.

Les résultats présentés en figure 7.1 proviennent d'un sous-échantillon de 6 s d'un enregistrement cent fois plus long. Nous répétons le type d'analyse déjà décrite dans le visible au chapitre 5 pour calculer les valeurs moyennes de  $P_0$  comme fonction de  $(P_e, G)$ . A conductance constante, on constate une augmentation de  $P_0$  avec une augmentation de  $P_e$ . A puissance électrique constante on constate une diminution de  $P_0$  avec une augmentation de  $G$ . Ces évolutions sont similaires à celles observées au chapitre 5.

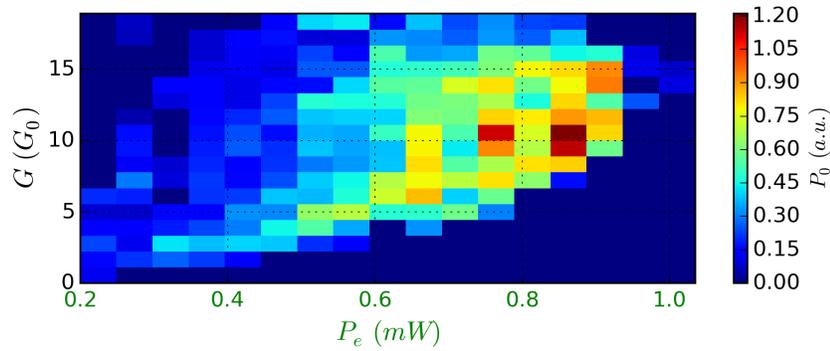


FIGURE 7.2 – Évolution de  $P_0$  la puissance optique émise dans l'infrarouge en fonction du couple de variable  $(G, P_e)$ . On reconnaît les tendances de la figure 5.5 obtenues dans le visible.

Dans l'hypothèse où  $T_e \gg T_L$ , nous utilisons la luminance  $L(E)$  du corps noir (équation 5.3) comme une fonction de  $P_e$ , pour calculer la puissance totale  $P_0$  émise par le contact dans la bande spectrale de réponse de notre détecteur :

$$P_0(P_e, \alpha, A) = A \int_{E_{min}=0.22 \text{ eV}}^{E_{max}=1.2 \text{ eV}} F(E)L(E, P_e, \alpha) dE \quad (7.1)$$

Nous ajustons ensuite nos données expérimentales, en utilisant la méthode des moindres

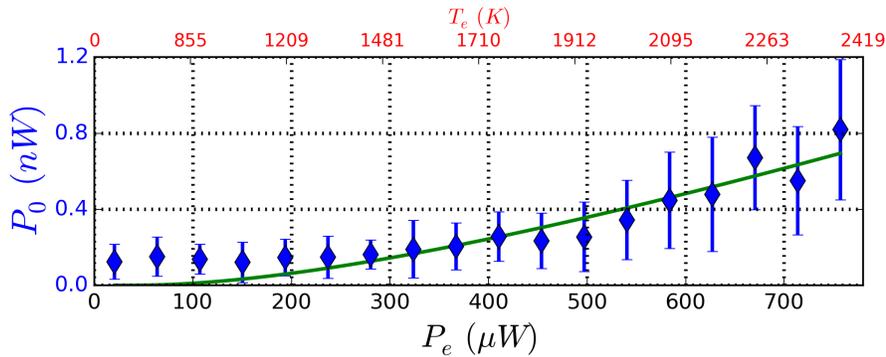


FIGURE 7.3 – Valeurs moyennes de  $P_0$  (point bleus) et ajustement (ligne rouge continue) de la puissance optique  $P_0$  avec  $P_e$ , pour des conductances de la classe  $G \simeq 10.G_0$ . L'ajustement nous permet d'extraire le paramètre  $\alpha = 0.014\hbar$  et de calculer la température  $T_e$  du système d'électrons chauds que nous reportons sur l'axe supérieur des abscisses. A noter que la valeur du paramètre  $\alpha$  est différente de celle obtenue dans le visible.

carrés, avec comme paramètres d'ajustements  $(A, \alpha)$ . Les résultats de cet ajustement présentés sur le graphe de la figure 7.3 nous montre un accord satisfaisant entre le modèle du gaz à la température  $T_e$  d'électrons chauds et l'émission de lumière mesurée dans le domaine infrarouge. De la puissance mesurée  $P_0 \simeq 1 \text{ nW}$ , nous pouvons faire ici une estimation de la puissance émise, de l'ordre du  $30 \text{ nW}$ , par le CMP en considérant que son émission est isotrope, que l'énergie moyenne des photons est de  $0.4 \text{ eV}$  et que notre angle solide de collection est de  $0.4 \text{ sr}$ .

Utilisant le paramètre  $\alpha = 0.014\hbar$  extrait de notre ajustement, nous pouvons calculer la température électronique en fonction de la puissance électrique injectée dans le contact à l'aide de l'équation 5.2. Nous reportons ces valeurs sur l'axe supérieur des abscisses du graphe de la figure 7.3. De même que dans le chapitre 5, la température des électrons atteint plusieurs milliers de degrés validant l'hypothèse  $T_e \gg T_L$ .

## Conclusion

Nous rapportons, dans ce chapitre, l'électroluminescence infrarouge des contacts métalliques ponctuels.

Nous avons mesuré la proportion de signal dans trois sous-bandes de la bande de réponse spectrale de notre détecteur pour  $G \simeq 10 G_0$  et  $P_e = 650 \mu\text{W}$ . En calculant ces différentes proportions pour une température du gaz d'électrons chauds  $T_e = 2500 \text{ K}$ , on obtient un accord satisfaisant les résultats du calcul et entre nos mesures.

L'analyse de l'intensité dans toute la bande de réponse spectrale de notre détecteur nous a permis d'étendre le modèle de gaz d'électrons chauds à la partie infrarouge du spectre. En suivant la même démarche qu'au chapitre 5, nous avons constaté des évolutions similaires de la quantité de lumière émise  $P_0$  avec les variables  $G$  et  $P_e$ . Nous avons extrait le paramètre  $\alpha = 0.014\hbar$  pour des conductances de  $10 G_0$  ainsi que les températures du gaz d'électrons chauds  $T_e$ . Ces dernières restent cohérentes avec nos résultats obtenus dans le visible.

On constate que la valeur du coefficient d'efficacité d'échauffement du gaz d'électrons,  $\alpha \simeq 0.10\hbar$ , extraite des expériences faites à des conductances de l'ordre de  $G_0$  est environ dix fois supérieure à celle obtenue à  $10 G_0$ . Nous avons aussi constaté et souligné dans le chapitre 5, à  $P_e$  constante, que l'électroluminescence diminuait avec l'augmentation de la conductance.

## Émission de lumière dans l'infrarouge fonction de la puissance électrique injectée.

Dans le prochain chapitre nous nous pencherons sur l'influence de la conductance  $G$  sur le coefficient d'efficacité d'échauffement du gaz d'électrons  $\alpha$ .

# Chapitre 8

## Au delà du modèle de Kiev

*Dans lequel nous revisitons nos résultats pour aller au delà du modèle de Kiev. En effet, la palette de configurations explorées nous permet de déterminer expérimentalement la dépendance de  $\alpha$  en fonction de  $G$  et d'en proposer une expression adaptée aux interactions électron-électron dues aux très fortes densités de courant dans les CMP.*

*Pour estimer le volume du gaz d'électrons chauds nous faisons le lien avec des expériences pompe/sonde femtoseconde interrogeant la dynamique des électrons hors équilibre dans des nanobilles d'or.*

*Puis, nous revenons sur l'efficacité d'échauffement du gaz d'électrons chauds. La palette de configurations explorées nous permet en effet de montrer que la température effective peut finalement s'écrire :*

$$k_B T_e = \eta \cdot e V_{bias} = \eta \cdot e \frac{S_0}{G_0} j \quad (8.1)$$

*où  $\eta < 1$ ,  $j$  est la densité de courant et  $S_0$  est la section du fil monoatomique. La valeur de  $\eta$  que nous extrayons de nos expériences de MCBJ à la température ambiante est rapprochée de prédictions théoriques fondamentales sur le bruit de grenaille dans des conducteurs mésoscopiques ainsi que de mesures à 40 mK de la distribution d'énergie des électrons le long d'un fil mésoscopique.*

### 8.1 $\alpha$ dépend de la conductance $G$

Nous avons jusqu'ici observé l'émission de lumière depuis les CMP dans le visible et l'infrarouge. Nous avons interprété cette émission comme celle d'un gaz à haute température d'électrons chauds en nous appuyant sur le modèle de P.M.Tomchuk *et al.*

[6]. Forts de l'ensemble de nos résultats, nous questionnons ce modèle et le portons plus loin.

Dans les chapitres 5 et 7, nous avons extrait deux valeurs de  $\alpha$  notablement différentes. Soit  $0.10\hbar$  et  $0.014\hbar$ , respectivement dans le visible autour de  $G_0$  et dans l'infrarouge autour de  $10 G_0$ . Les valeurs obtenues pour  $G_0$  corroborent très bien les expériences antérieures faites à des conductances similaires. Toutefois, celle obtenue pour  $10 G_0$  est environ dix fois plus faible. Ceci nous invite à revisiter la grande quantité de données obtenues dans le visible (voir figure 5.5) pour des conductances allant de  $0.6$  à  $6 G_0$ . La démarche reste la même que dans le chapitre 5 : Pour chaque classe de conductances  $G$ , en nous appuyant sur le modèle de P.M.Tomchuk, nous extrayons la valeur de  $\alpha(G)$ . La figure 8.1 rapporte les valeurs obtenues.

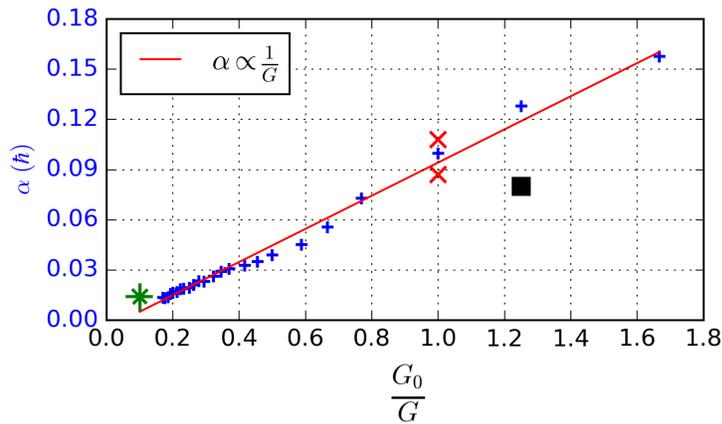


FIGURE 8.1 – Évolution de l'efficacité d'échauffement des électrons  $\alpha$  (croix bleues) en unité de  $\hbar$  en fonction de l'inverse de la conductance,  $1/G$ , extrait de notre étude dans le visible. L'étoile verte correspond au alpha extrait des résultats dans l'infrarouge. La ligne rouge est un ajustement de  $\alpha$  en  $1/G$ . Les croix rouges correspondent aux résultats de A.Downes *et al.* [5], le carré noir à ceux de M.Buret *et al.* [12].

Nous avons tracé  $\alpha$  en fonction de  $1/G$ , et observons une dépendance linéaire. Sur cette figure, nous avons également reporté les valeurs de  $\alpha$  extraites de la littérature [5, 12], on y observe une très forte cohérence de l'ensemble des résultats.

Dans le modèle de P.M.Tomchuk *et al.* [6], l'échange d'énergie se fait par choc avec les parois d'îlots métalliques de taille  $R$ . Le développement mène à une expression de  $\alpha$  (notée  $\alpha_{kiev}$ ) contenant les masses atomique de l'or  $M$  et de l'électron  $m_e$  (voir

équation 8.2).

$$\alpha_{kiev} = \frac{4M\hbar^3}{\pi^2(m_e)^2 E_F} \frac{1}{R^2} \quad (8.2)$$

Dans nos CMP, compte-tenu de la très grande densité de courant  $j \simeq 10^{15} \text{ A.m}^{-2}$ , nous sommes convaincus de l'importance des interactions électron-électron dans les échanges d'énergie. Nous sommes donc enclins à faire évoluer l'écriture de  $\alpha_{kiev}$  en substituant  $M$  par  $m_e$ .

De plus, nous avons déjà souligné la similitude des  $\alpha$  mesurés par A.Downes *et al.* [5], par M.Buret *et al.* [12] ou par nous-même. Il est difficile d'imaginer des îlots, de surcroît de même taille  $R$ , dans ces expériences. Nous substituons donc aussi dans  $\alpha_{kiev}$ ,  $R$  par un paramètre géométrique  $d$ . Paramètre qui ne varierait pas de Downes (2002) à Buret (2015) et que nous discuterons plus bas. Ainsi :

$$\alpha_{mrs} = \frac{4m_e\hbar^3}{\pi^2(m_e)^2 E_F} \frac{1}{d^2} \quad (8.3)$$

Pour  $G \simeq G_0$ , à partir  $\alpha = 0.10\hbar$  extrait au chapitre 5 nous obtenons  $d = 0.24 \text{ nm}$ . Le lecteur aura pu noter que l'ordre de grandeur de  $d$  est celui d'une distance atomique.

Rappelons maintenant que  $\alpha$  est proportionnel à  $1/G$  (voir figure 8.1). Souvenons nous aussi que  $G$  est proportionnelle à la section  $S$  du contact balistique, variant donc par valeurs discrètes avec la conductance [46].

$$G = \frac{S}{S_0} G_0 \quad (8.4)$$

où  $S_0$  est, pour l'or, la section d'un fil monoatomique.

Ainsi  $G$  varie comme la section  $S$  du fil (équation 8.4) et aussi comme  $1/\alpha$  (voir figure 8.1) et donc comme  $d^2$ . Il est donc tentant d'identifier  $S$  avec  $d^2$ , d'autant plus que les ordres de grandeurs, atomiques, sont les mêmes.

Physiquement,  $d$  peut être vue comme la longueur caractéristique qui contraint les électrons.  $d$  se rapproche ainsi du  $R$  proposé par Tomchuk. Toutefois, le transfert d'énergie se fait directement entre électrons dans un contexte de très haute densité de courant.

Cette description unifiée, nous semble-t-il, les différents aspects. Le paramètre géométrique  $d$  ( $d^2 \simeq S$ ) conditionnerait la longueur d'interaction électron-électron  $L_{ee}$ , dont on comprend alors la dépendance en conductance.

## 8.2 Estimation du volume du gaz d'électrons chauds

A ce stade nous savons que, pour des contacts de  $1 G_0$ , deux électrons vont échanger de l'énergie sur une distance typique  $d$  que nous assimilerons à  $L_{ee} = 0.24 \text{ nm}$ <sup>1</sup>. A partir de deux électrons à  $eV_{bias}$  on peut envisager obtenir un électron  $2eV_{bias}$  et l'autre au niveau de Fermi. Pour converger vers un gaz à haute température d'électrons chauds il faudra que ce type de mécanisme se répète un grand nombre de fois, pendant un temps caractéristique, dit de thermalisation  $\tau_{th}$ , auquel nous n'avons pas accès par nos expériences.

Pour discuter ce mécanisme nous nous référons d'abord à des expériences pompe/sonde femtoseconde interrogeant la dynamique des électrons hors équilibre dans des nanobilles d'or [25, 47, 48].

Ces expériences pompe/sonde (figure 8.2(a)) permettent notamment de mesurer  $\tau_{th}$ . Décrivons-les brièvement. Des nanobilles métalliques, isolées dans une matrice céramique, reçoivent à  $t = 0$  une impulsion femtoseconde de photons (la pompe) amenant hors équilibre le gaz d'électrons. Les électrons excités, "athermiques", vont interagir entre eux et former un gaz à haute température  $T_e$  d'électrons chauds (figure 8.2(b)) très comparable à celui que nous créons en injectant des électrons chauds. Ceci se passe sur des durées typiques de quelques dizaines à quelques centaines de femtosecondes. L'énergie est finalement transférée au réseau cristallin via les interactions électron-phonon, conduisant à une augmentation temporaire de la température de la nanobille. Le laser de sonde permet de suivre la dynamique des transferts thermiques via les très faibles variations de transmission du signal optique (voir figure 8.4).

Pour des nanobilles d'or de taille  $1 \text{ nm}$ , le temps de thermalisation  $\tau_{th}$  est de l'ordre de  $100 \text{ fs}$  [47]. Les pertes thermiques vers le réseau à la température  $T_L$  se font en  $g(T_e - T_L)$ ,  $g$  étant la constante de couplage électron-phonon. L'évolution temporelle de

1. Donc avec un temps caractéristique  $\tau_{ee} = L_{ee}/v_f$ ,  $v_f$  étant la vitesse de Fermi des électrons, soit  $\tau_{ee} \simeq 0.2 \text{ fs}$ .

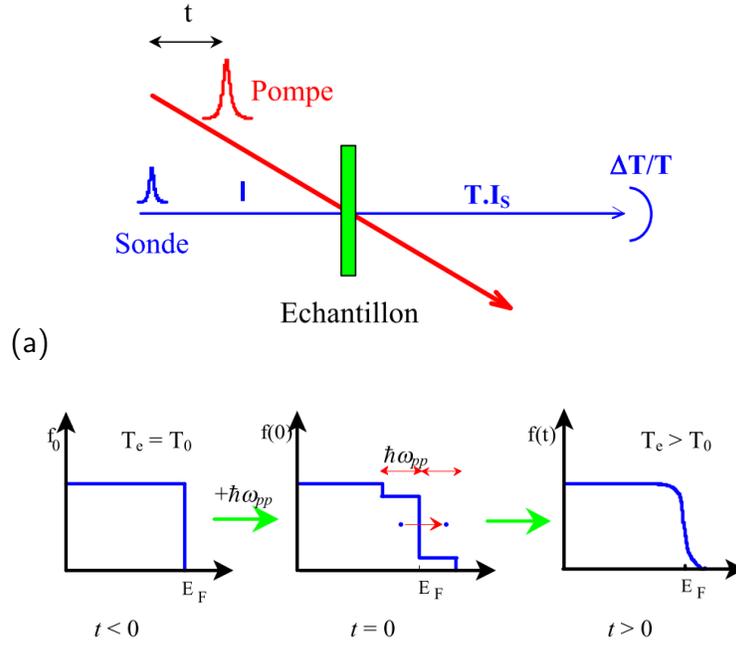


FIGURE 8.2 – (a) Principe des mesures de la dynamique des transferts thermiques des électrons hors équilibre dans des nanobilles d'or. Une impulsion femtoseconde de photons permet de porter hors équilibre le gaz d'électrons. Le laser de sonde permet de suivre la dynamique des transferts thermiques via les faibles variations de transmission du signal optique. (b) Schéma résumant la thermalisation des électrons hors équilibre en gaz à la température  $T_e$  d'électrons chauds. Extrait de [49]

la température, pour le gaz d'électrons s'écrit, avec  $C_e$  capacité calorifique des électrons :

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = -g(T_e - T_L) + p(t) \quad (8.5)$$

Une illustration hydrodynamique de cette équation est donnée dans la figure 8.3.

Dans ces expériences,  $p(t)$  est la densité volumique de puissance apportée par le laser pompe au cours du temps. Pour estimer le volume  $\mathcal{V}_g$  de notre gaz d'électrons chauds balistiquement chauffé, à  $p(t)$  nous substituerons naturellement  $P_e/\mathcal{V}_g$ . Nous faisons ainsi l'hypothèse que toute la puissance injectée dans la jonction contribue à chauffer ce gaz.

Nous faisons également l'hypothèse que toutes les pertes thermiques sont vers les phonons. Cette hypothèse nous semble justifiée car les pertes par rayonnement que nous avons mesuré tout au long de cette thèse n'excèdent pas un pour mille. En régime stationnaire, les ordres de grandeurs des températures électroniques mesurées pour  $G =$

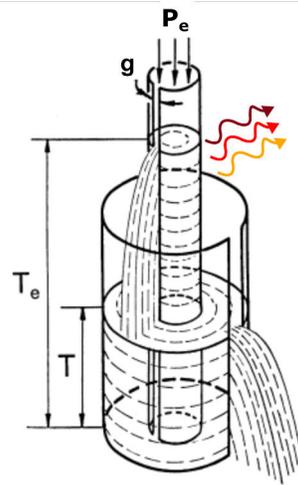


FIGURE 8.3 – Figure tirée et adaptée de l'article de revue [9], illustration hydrodynamique de l'équilibre stationnaire dans un système à deux températures ( $T_e$  et  $T$ ) alimenté par un flux entrant  $P_e$ . Les flèches de couleurs symbolisent l'électroluminescence du gaz d'électrons chauds.

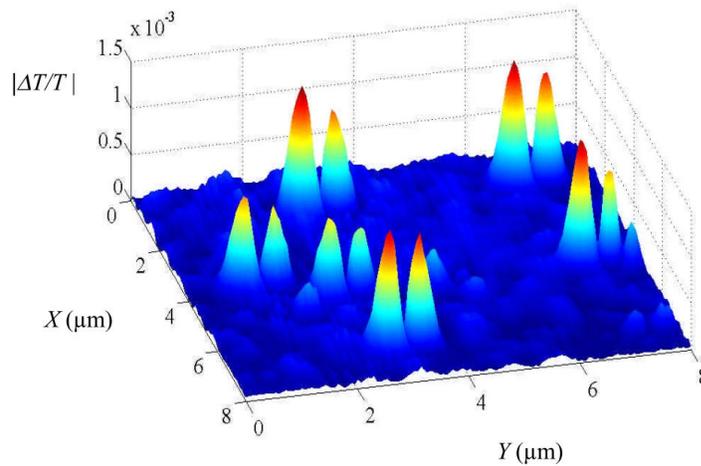


FIGURE 8.4 – Profil spatial de la variation relative de transmission du laser de sonde. Extrait de [49]

$G_0$  et de la valeur de  $g$  extraite de la littérature  $g = 2 \cdot 10^{16} \text{ W K}^{-1} \text{ m}^{-3}$  [47] nous conduisent à un volume de  $\mathcal{V}_g \simeq (10 \text{ nm})^3$ .

Il est également possible d'estimer ce volume  $\mathcal{V}'_g$  d'une autre manière : En considérant,  $\tau_{th}$  et le temps caractéristique entre deux interactions électron-électron  $\tau_{ee} =$

$L_{ee}/v_f$ . Nous pouvons effectivement estimer le nombre  $n$  de diffusions électron-électron par  $n = \tau_{th}/\tau_{ee} \simeq 667$ . En supposant une diffusion tridimensionnel de type marche au hasard, le gaz atteint sa température  $T_e$  dans un volume  $\mathcal{V}'_g = (\sqrt{n}L_{ee})^3$ . Pour  $\tau_{th} = 100$  fs, valeur extraite de [47] on aboutit à un volume de  $\mathcal{V}'_g \simeq (6 \text{ nm})^3$ .

Bien entendu ce ne sont que des premières estimations de la taille de la source et d'autres approches seront nécessaires.

Rapprochons maintenant nos expériences d'expériences de transport dans des conducteurs mésoscopiques maintenus à quelques dizaines de mK. Bien que ce champ de recherche puisse sembler assez éloigné (ni photon, ni contact ponctuel), nous allons voir que nous y trouvons aussi un gaz d'électrons chauds. Nous y verrons la dépendance de sa température en fonction des paramètres électriques et des prédictions sur sa localisation.

### 8.3 Nouvelle expression de l'équation $k_B T_e = \sqrt{\alpha(G)P_e}$

Avant d'aborder les expériences de physique mésoscopique mentionnées ci-dessus, considérons une autre conséquence de la dépendance de  $\alpha(G)$  en  $1/G$ . Pour les hautes températures de gaz d'électrons nous avons  $k_B T_e = \sqrt{\alpha(G)P_e}$ . Or  $P_e = GV_{bias}^2$ . Donc  $k_B T_e$  est proportionnel à  $V_{bias}$ . Nous introduisons alors un coefficient adimensionnel  $\eta$  tel que :

$$k_B T_e = \eta \cdot e V_{bias} \quad (8.6)$$

En nous appuyant sur l'équation 8.6, on constate que la tension de polarisation  $V_{bias}$  suffit à obtenir  $T_e$ . Pour obtenir la valeur de  $\eta$ , nous pouvons ajuster les données présentées dans la figure 5.5 au chapitre 5 en nous appuyant sur l'équation 8.7.

$$N_c(V_{bias}, \eta, A) = A \int_{BW} F(E) \rho(E) \frac{E}{\exp(\frac{E}{\eta \cdot e V_{bias}}) - 1} dE \quad (8.7)$$

Sur la figure 8.5 on constate un très bon accord entre l'ajustement et les données expérimentales. Nous obtenons de notre ajustement  $\eta = 0.18$ .

Bien que nous ayons montré que  $k_B T_e = \eta \cdot e V_{bias}$ , nous n'excluons pas que la physique du mécanisme d'échauffement du gaz d'électrons réside plus dans la densité de courant  $j$  que dans l'énergie de polarisation des électrons  $e V_{bias}$ . Notons en effet, que dans les CMP, la tension de polarisation est liée à la densité de courant par l'équation

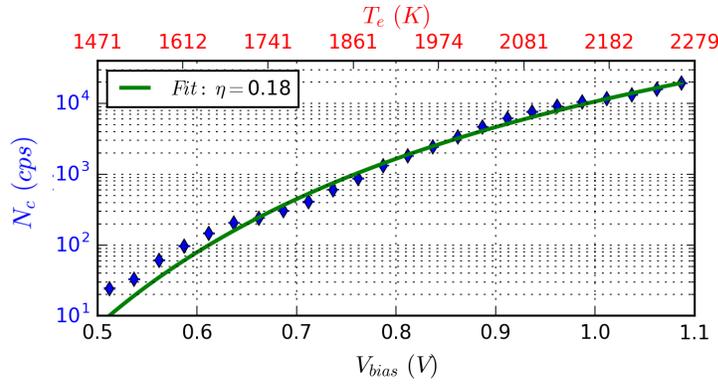


FIGURE 8.5 – Évolution de la quantité de signal visible  $N_c$  en fonction de la tension de polarisation des électrons  $V_{bias}$ . La ligne verte correspond aux résultats de l'ajustement de nos données avec notre modèle développé dans l'équation 8.7. On obtient  $\eta = 0.18$ .

suivante :

$$G_0 V_{bias} = S_0 j \tag{8.8}$$

On peut donc réécrire l'équation 8.6 comme :

$$k_B T_e = \eta \cdot e V_{bias} = \eta \cdot e \frac{S_0}{G_0} j \tag{8.9}$$

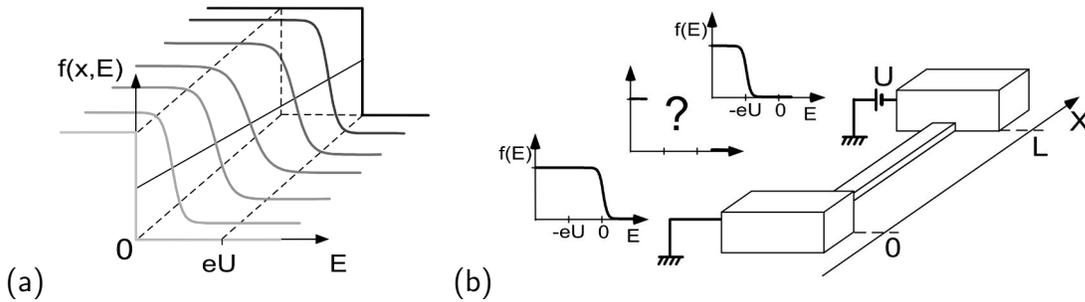


FIGURE 8.6 – (a) Évolution de la fonction de distribution des électrons dans le régime des forts échanges entre électrons. (b) Dispositif expérimental d'étude des distributions des électrons le long d'un fil mésoscopique reliant deux électrodes macroscopiques. Une différence de potentiel  $U$  est appliquée aux bornes du fil. Les fonctions de distributions des électrons dans les électrodes sont des fonctions de Fermi à la température  $T_L$  décalées en énergie de  $-eU$ . Extrait de la thèse de F.Pierre [26]

Notons également que dans leur publication sur les calculs de bruit dans des conducteurs mésoscopiques à  $T_L = 0 K$ , M.J.M.DeJong et C.W.J.Beenakker [27] parviennent, pour une jonction parfaitement symétrique, à  $k_B T_e = \eta_{dj} \cdot eV_{bias}$ .

Cette prédiction a été expérimentalement confirmée lors de la thèse de F.Pierre [26]. Pour illustrer la distribution d'électrons chauds dans des fils mésoscopiques nous nous appuyons sur des schémas tirés de ce document [26] et de son article [50]. La figure 8.6(a) schématise ainsi le passage d'une distribution à température nulle centrée sur  $E_f + eV_{bias}$  dans une électrode-réservoir à une distribution à température nulle centrée sur  $E_f$  dans l'autre électrode-réservoir. Cette transition se fait en passant par des distributions de Fermi d'électrons chauds de température  $T_e(x)$  maximale au milieu du fil mésoscopique. Le dessin montre aussi que l'ordre de grandeur de la largeur de cette distribution de Fermi est une fraction de  $eU$  sur la figure, soit  $eV_{bias}$  avec nos propres notations. Dans leurs expériences (voir figure 8.6(b)) les auteurs ont imaginé un dispositif qui permet de mesurer la fonction de distribution des électrons à l'abscisse  $x$  le long du fil. Dans le régime où les interactions électron-électron prédominent, ces expériences permettent de calculer  $\eta$  à partir de la mesure de la largeur de la distribution de Fermi dans le fil mésoscopique.

Le tableau 8.1 regroupe les valeurs extraites des résultats obtenus par les différents groupes. Les valeurs de  $\eta$  issues des expériences de contacts ponctuels sont inférieures à

Sources	Dispositif	$T_L$	$\eta$
DeJong <i>et al.</i> [27]	Fils mésoscopiques (Théorie)	0 K	0.28
Pierre <i>et al.</i> [26]	Fils mésoscopiques (Expériences)	0.04 K	0.275
Downes <i>et al.</i> [5]	CMP en STMBJ-LE	300 K	0.19, 0.17
Buret <i>et al.</i> [12]	CMP électroformée	300 K	0.14
Malinowski <i>et al.</i> [37]	CMP MCBJ-LE	300 K	0.18

TABLE 8.1 – Résumé des coefficients  $\eta$ , extraits des résultats obtenus par les différents groupes.

celles reportées pour les fils mésoscopiques. Précisons que dans les CMP les géométries ne sont pas strictement unidimensionnelles et que les électrodes ne sont pas non plus nécessairement symétriques, ce qui pourrait expliquer les différences.

Dans les fils mésoscopiques, le maximum de température électronique est atteint au milieu du fil. A la température ambiante, nos "fils" sont de section atomique mais également de longueur atomique [24]. Il est pratique de se figurer le nanogaz d'électrons

chauds, induit par l'injection balistique d'électrons, à l'entrée de l'électrode d'extraction. Toutefois, nous sommes plus enclins à penser que ce gaz se répartit de part et d'autre du contact ponctuel. D'un volume de quelques nanomètres au cube il serait alors peu enfoui dans le métal, favorisant ainsi l'émission de photons. Les électrons chauds atteindraient donc la surface. Ce qui est en accord avec les expériences réalisées dans le groupe L.Lapena [51] qui montrent aussi l'émission d'électrons chauds dans le vide avec des géométries similaires à celle du groupe de Kiev [52].

# Conclusions et perspectives

L'électroluminescence à l'échelle du contact métallique ponctuel a été au cœur de cette thèse expérimentale. Mes travaux ont commencé par la mise en place d'un dispositif d'étude de ce phénomène dans deux gammes du rayonnement électromagnétique, le visible et l'infrarouge. Cette étude s'est appuyée sur la culture et le savoir faire du groupe Sources Sondes Ponctuelles du CINaM, à la fois à propos des contacts métalliques ponctuels que sur l'étude de l'émission de lumière depuis des sources nanométriques.

Sur un plan instrumental, de nombreuses améliorations de ce dispositif sont évidemment possibles, depuis la jonction proprement dite en passant par la MCBJ, par l'optique de collection, d'analyse spectroscopique et les détecteurs. Maitriser la température et l'atmosphère (vide, liquide, gaz) et l'environnement de la jonction est aussi de nature à permettre d'explorer plus en avant la physique du mécanisme.

Les pages qui précèdent ont toutefois montré, je pense, que le dispositif actuel nous a permis d'obtenir un grand nombre de résultats.

Après ces travaux, le sujet me paraît maintenant mûr pour une étude "métrologique" plus systématique des paramètres pertinents : température, volume du gaz, brillance, modèle, etc...

Intrinsèquement, en ce qui concerne le matériau, nous ne sommes pas limités à l'or. L'utilisation de métaux différents, tel que l'argent ou le platine, permettrait d'accéder à des densités de courant ainsi que des propriétés optiques différentes.

Une telle démarche est indispensable si nous voulons comparer nos données avec une formulation unifiée de l'électro-luminescence à l'échelle nanométrique dans des systèmes hors-équilibres dans le cadre d'une généralisation de la loi de Krichhoff. De nombreux phénomènes couplent transport électronique et électroluminescence. La compréhension de ces phénomènes présente des intérêts non seulement fondamentaux [53, 54] mais aussi appliqués [55].

En outre, sur le plan des applications, avec de tels volumes ( $\sim \lambda/100$ ) sièges de l'émission de lumière, les contacts métalliques ponctuels pourraient avoir des applications comme nano-source de lumière blanche ou d'électrons thermo-émis.

# Annexe A

## Étalonnage du dispositif de spectroscopie optique visible

Les équations de l'optique géométrique permettent d'obtenir la déviation comme fonction de l'énergie du photon à incidence constante en utilisant les notations de la figure A.1.

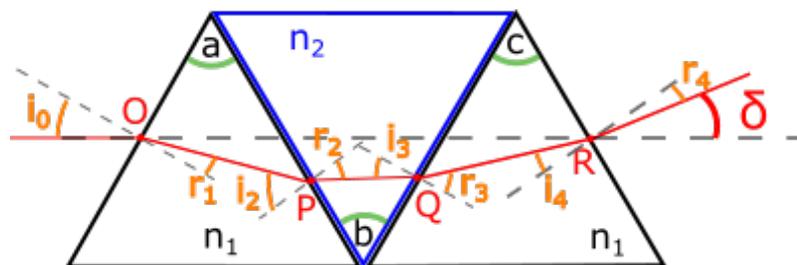


FIGURE A.1 – Schéma du trajet optique d'un rayon dans le PVD. Les différents angles sont fonctions des indices ( $n_1, n_2$ ), de l'angle d'incidence  $i_0$  et des angles aux sommets des prismes ( $a, b, c$ ). Ils sont donnés par les lois de la réfraction et les relations géométriques des prismes

$$r_1 = \arcsin\left(\frac{\sin(i_0)}{n_1(E)}\right) \quad (\text{A.1})$$

$$i_2 = a - r_1 \quad (\text{A.2})$$

$$r_2 = \arcsin\left(\frac{n_1(E) \sin(i_2)}{n_2(E)}\right) \quad (\text{A.3})$$

$$i_3 = b - r_2 \quad (\text{A.4})$$

$$r_3 = \arcsin\left(\frac{n_2(E) \sin(i_3)}{n_1(E)}\right) \quad (\text{A.5})$$

$$i_4 = c - r_3 \quad (\text{A.6})$$

$$r_4 = \arcsin(n_1(E) \sin(i_4)) \quad (\text{A.7})$$

$$\delta(E) = c + a - a - i_0 - r_4 \quad (\text{A.8})$$

$E$  est l'énergie du photon incident. La dépendance en énergie réside dans l'évolution des indices optiques avec celle-ci, qui est définie dans les tables d'optiques. La grandeur qui nous intéresse est le décalage  $D$  par rapport à l'image géométrique introduit par le prisme dans le plan image du microscope.

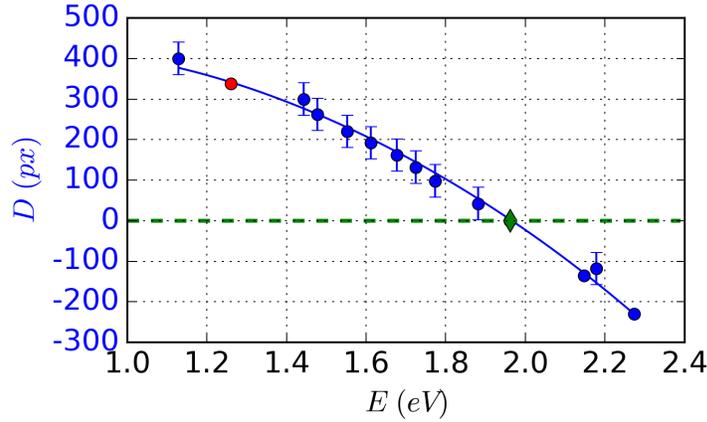


FIGURE A.2 – Ajustement numérique liant la déviation  $D$  en  $px$  sur la camera en fonction de l'énergie du photon  $E$ . Le point vert correspond à l'énergie non-déviée par le prisme et le rond rouge à la position du notch centré autour de  $E_n = 1.26$  eV.

$$D(E) = f \tan(\delta(E) + \delta_0) \quad (\text{A.9})$$

On effectue une détermination expérimentale de la fonction  $D(E)$  associée à notre montage en utilisant des lampes spectrales (mercure et hydrogène), un laser He-Ne et

différents filtres calibrés associés à une lampe blanche. Ces derniers permettent d'obtenir des points de mesures dans la gamme du rouge/infrarouge.

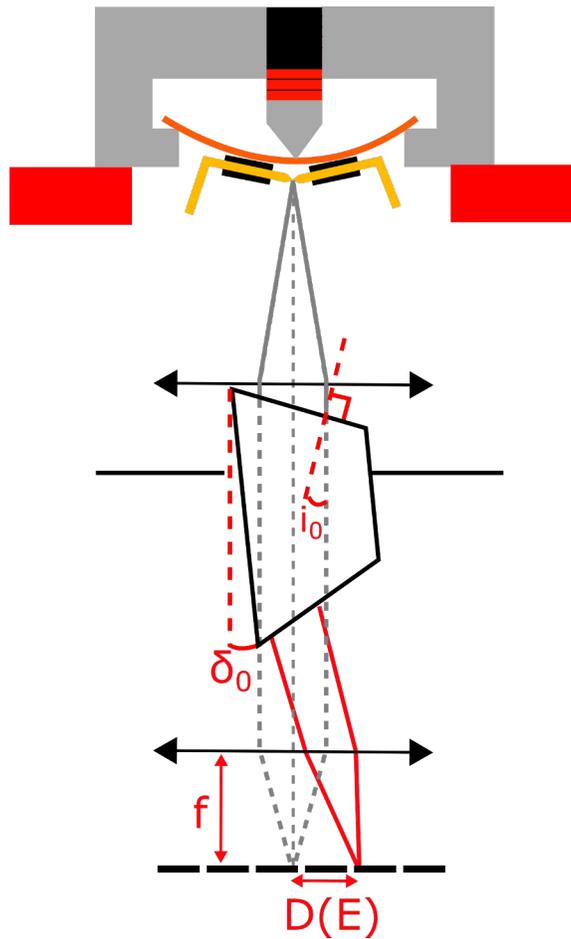


FIGURE A.3 – Schéma présentant les paramètres d'ajustement de la déviation  $D(E)$ ,  $i_0$  angle d'incidence du faisceau sur la face d'entrée du prisme,  $\delta_0$  angle entre le grand côté du prisme et l'axe optique et  $f$  la distance focale de la lentille de tube.



# Bibliographie

- [1] J. K. Gimzewski and R. Möller. Transition from the tunneling regime to point contact studied using scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. B*, 36 :1284–1287, Jul 1987.
- [2] BJ Van Wees, H Van Houten, CWJ Beenakker, J Gr Williamson, LP Kouwenhoven, D Van der Marel, and CT Foxon. Quantized conductance of point contacts in a two-dimensional electron gas. *Physical Review Letters*, 60(9) :848, 1988.
- [3] Nicolas Agrait, Alfredo Levy Yeyati, and Jan M. van Ruitenbeek. Quantum properties of atomic-sized conductors. *Physics Reports*, 377(2–3) :81 – 279, 2003.
- [4] J. K. Gimzewski, J. K. Sass, R. R. Schlitter, and J. Schott. Enhanced photon emission in scanning tunnelling microscopy. *EPL (Europhysics Letters)*, 8(5) :435, 1989.
- [5] A. Downes, Ph. Dumas, and M. E. Welland. Measurement of high electron temperatures in single atom metal point contacts by light emission. *Applied Physics Letters*, 81(7) :1252, 2002.
- [6] P. M. Tomchuk and R. D. Fedorovich. Emission of hot electrons from thin metal films. *Soviet Physics-Solid State volume 8, n 1, july 1966*, 1966.
- [7] Makusu Tsutsui, Yumi Teramae, Shu Kurokawa, and Akira Sakai. Local heating in noble metal nanocontacts under high biases at 77k. *Applied surface science*, 252(24) :8677–8682, 2006.
- [8] M Tsutsui, S Kurokawa, and A Sakai. Bias-induced local heating in au atom-sized contacts. *Nanotechnology*, 17(21) :5334, 2006.

- 
- [9] R.D. Fedorovich, A.G. Naumovets, and P.M. Tomchuk. Electron and light emission from island metal films and generation of hot electrons in nanoparticles. *Physics Reports*, 328(2–3) :73 – 179, 2000.
- [10] V Sivel, R Coratger, F Ajustron, and J Beauvillain. Control of photon emission by scanning tunneling microscopy in air. *Physical Review B*, 50(8) :5628, 1994.
- [11] Guillaume Schull, Nicolas Néel, Peter Johansson, and Richard Berndt. Electron-plasmon and electron-electron interactions at a single atom contact. *Physical Review Letters*, 102(5), Feb 2009.
- [12] Mickael Buret, Alexander V. Uskov, Jean Dellinger, Nicolas Cazier, Marie-Maxime Mennemanteuil, Johann Berthelot, Igor V. Smetanin, Igor E. Protsenko, Gérard Colas des Francs, and Alexandre Bouhelier. Spontaneous hot-electron light emission from electron-fed optical antennas. *Nano Letters*, 15(9) :5811–5818, 2015. PMID : 26214575.
- [13] Ph Dumas, M Gu, C Syrykh, JK Gimzewski, I Makarenko, A Halimaoui, and F Salvan. Direct observation of individual nanometer-sized light-emitting structures on porous silicon surfaces. *EPL (Europhysics Letters)*, 23(3) :197, 1993.
- [14] M.Gu. *Cartographie d emission de photons en STM. Application a la luminescence locale du silicium poreux*. PhD thesis, 1993.
- [15] C.Syrykh. *Cartographie et spectroscopie du rayonnement de nanoagregats d'argent individuellement excites par STM*. PhD thesis, 1995.
- [16] Ph Dumas, C Syrykh, IV Makarenko, and F Salvan. Stm-induced light emission of supported silver nanocrystallites. *EPL (Europhysics Letters)*, 40(4) :447, 1997.
- [17] Ph Dumas, V Derycke, IV Makarenko, R Houdre, P Guaino, A Downes, and F Salvan. Scanning-tunneling-microscopy-induced optical spectroscopy of a single gaas quantum well. *Applied Physics Letters*, 77(24) :3992–3994, 2000.
- [18] Ph.Guaino. *Spectroscopie de l emission de lumiere en STM. Application a un puits quantique unique de semiconducteur*. PhD thesis, 2001.
- [19] Andrew Downes and Philippe Dumas. Chemical analysis and optical properties of metallic nanoclusters. *Applied surface science*, 212 :770–774, 2003.

- 
- [20] Thomas Leoni. *Contribution à l'étude des contacts atomiques et moléculaires ponctuels*. PhD thesis, Université de la Méditerranée-Aix-Marseille II, 2009.
- [21] Thomas Leoni, Remi Zoubkoff, Sabrina Homri, Nadine Candoni, Petar Vidakovic, Alain Ranguis, Hubert Klein, Andres Saul, and Philippe Dumas. Are conductance plateaus independent events in atomic point contact measurements? a statistical approach. *Nanotechnology*, 19(35) :355401, 2008.
- [22] Monzer Alwan. *Etude expérimentale de contacts métalliques et moléculaires ponctuels : de l'objet individuel aux statistiques*. PhD thesis, Aix-Marseille, 2012.
- [23] Hubert Klein, Thomas Leoni, Remi Zoubkoff, Philippe Dumas, and Andres Saul. Conductance fluctuations in gold point contacts : an atomistic picture. *Nanotechnology*, 23(23) :235707, 2012.
- [24] Monzer Alwan, Nadine Candoni, Philippe Dumas, and Hubert R. Klein. Statistical evidence of strain induced breaking of metallic point contacts. *The European Physical Journal B*, 86(6), 2013.
- [25] A. Arbouet, D. Christofilos, N. Del Fatti, F. Vallée, J. R. Huntzinger, L. Arnaud, P. Billaud, and M. Broyer. Direct measurement of the single-metal-cluster optical absorption. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :127401, Sep 2004.
- [26] Frédéric Pierre. *Interaction électron-électron dans les fils mésoscopiques*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2000.
- [27] MJM De Jong and CWJ Beenakker. Semiclassical theory of shot noise in mesoscopic conductors. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 230(1) :219–248, 1996.
- [28] John Moreland and J. W. Ekin. Electron tunneling experiments using nb-sn break junctions. *Journal of Applied Physics*, 58(10) :3888–3895, 1985.
- [29] C. J. Muller, J. M. van Ruitenbeek, and L. J. de Longh. Conductance and supercurrent discontinuities in atomic-scale metallic constrictions of variable width. *Phys. Rev. Lett.*, 69(1) :140–143, 1992.
- [30] J. L. Costa-Kramer, N. Garcia, P. Garcia-Morales, P. A. Serena, M. I. Marques, and A. Correia. Conductance quantization in nanowires formed between micro and macroscopic metallic electrodes. *Phys. Rev. B*, 55(8) :5416–5424, 1997.

- 
- [31] Supriyo Datta. *Electronic transport in mesoscopic systems*. Cambridge university press, 1997.
- [32] Jason N. Armstrong, R. M. Schaub, Susan Z. Hua, and Harsh Deep Chopra. Channel saturation and conductance quantization in single-atom gold constrictions. *Physical Review B*, 82(19), Nov 2010.
- [33] S. K. Nielsen, M. Brandbyge, K. Hansen, K. Stokbro, J. M. van Ruitenbeek, and F. Besenbacher. Current-voltage curves of atomic-sized transition metal contacts : An explanation of why au is ohmic and pt is not. *Phys. Rev. Lett.*, 89 :066804, Jul 2002.
- [34] M. Tsutsui, K. Shoji, M. Taniguchi, and T. Kawai. Formation and self-breaking mechanism of stable atom-sized junctions. *Nano Letters*, 8(1) :345–349, 2008.
- [35] P. Velez, S. A. Dassie, and E. P. M. Leiva. When do nanowires break ? A model for the theoretical study of the long-term stability of monoatomic nanowires. *Chemical Physics Letters*, 460(1-3) :261–265, July 2008.
- [36] David P Doane. Aesthetic frequency classifications. *The American Statistician*, 30(4) :181–183, 1976.
- [37] T.Malinowski. Ce travail. 2015.
- [38] P. B. Johnson and R. W. Christy. Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B*, 6 :4370–4379, Dec 1972.
- [39] R. W. Rendell and D. J. Scalapino. Surface plasmons confined by microstructures on tunnel junctions. In *PHYSICAL REVIEW B VOLUME 24, 5 UMBER 6 15 SEPTEMBER*, 1981.
- [40] J. Aizpurua, S. P. Apell, and R. Berndt. Role of tip shape in light emission from the scanning tunneling microscope. *Physical Review B*, 2000.
- [41] Kevin J. Savage, Matthew M. Hawkeye, Rubén Esteban, Andrei G. Borisov, Javier Aizpurua, and Jeremy J. Baumberg. Revealing the quantum regime in tunnelling plasmonics. *Nature*, 491(7425) :574–577, Nov 2012.
- [42] Isabel Romero, Javier Aizpurua, Garnett W Bryant, and F Javier García De Abajo. Plasmons in nearly touching metallic nanoparticles : singular response in the limit of touching dimers. *Optics express*, 14(21) :9988–9999, 2006.

- 
- [43] R Ferrando and G Treglia. High-temperature study of the schwoebel effect in au (111). *Physical review letters*, 76(12) :2109, 1996.
- [44] Grazyna Antczak and Gert Ehrlich. *Surface diffusion : metals, metal atoms, and clusters*. Cambridge University Press, 2010.
- [45] T Malinowski, HR Klein, M Iazykov, and Ph Dumas. Infrared light emission from atomic point contacts. *arXiv preprint arXiv :1602.05867 / Soumis a Eur.Phys.Lett*, 2016.
- [46] J. A. Torres, J. I. Pascual, and J. J. Sáenz. Theory of conduction through narrow constrictions in a three-dimensional electron gas. *Phys. Rev. B*, 49 :16581–16584, Jun 1994.
- [47] N Del Fatti, C Voisin, M Achermann, S Tzortzakis, D Christofilos, and F Vallée. Non-equilibrium electron dynamics in noble metals. *Physical Review B*, 61(24) :16956, 2000.
- [48] C Voisin, D Christofilos, PA Loukakos, N Del Fatti, F Vallée, J Lermé, M Gaudry, E Cottancin, M Pellarin, and M Broyer. Ultrafast electron-electron scattering and energy exchanges in noble-metal nanoparticles. *Physical Review B*, 69(19) :195416, 2004.
- [49] F.Vallee. Reponses optiques spectrale et temporelle des nanoparticules metalliques, document communique par philippe dumas.
- [50] F Pierre, H Pothier, D Esteve, and MH Devoret. Energy redistribution between quasiparticles in mesoscopic silver wires. *Journal of Low Temperature Physics*, 118(5-6) :437–445, 2000.
- [51] L.Lapena. Communication privee, 2015.
- [52] RD Fedorovich, AG Naumovets, AP Ostranitsa, and PM Tomchuk. Electron emission from regular chain-like island structures. *International Journal of Electronics Theoretical and Experimental*, 69(1) :179–183, 1990.
- [53] P Wurfel. The chemical potential of radiation. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 15(18) :3967, 1982.

- 
- [54] Jean-Jacques Greffet, Patrick Bouchon, Giovanni Brucoli, Emilie Sakat, and François Marquier. Generalized kirchhoff law. *arXiv preprint arXiv :1601.00312*, 2016.
- [55] Justin Iveland, Lucio Martinelli, Jacques Peretti, James S Speck, and Claude Weisbuch. Direct measurement of auger electrons emitted from a semiconductor light-emitting diode under electrical injection : identification of the dominant mechanism for efficiency droop. *Physical review letters*, 110(17) :177406, 2013.

---

## Résumé

Cette thèse expérimentale traite de l'électroluminescence de contacts atomiques en or. Ces contacts sont parcourus par des électrons balistiques.

Les contacts métalliques ponctuels sont formés et pilotés à l'aide d'un dispositif de jonction brisée contrôlée mécaniquement. Ce dispositif a été développé au laboratoire. Les contacts sont formés à partir d'un fil d'or et sont étudiés à la température ambiante et à l'air.

La jonction est opérée à des conductances de l'ordre de  $G_0 = 2e^2/h$ . Elle est soumise à des tensions de l'ordre du volt.

L'électroluminescence est observée dans le visible au travers d'un microscope optique. Le détecteur est une caméra sensible en silicium. Pour l'analyse du spectre émis, un dispositif dispersif en ligne, insérable dans la colonne du microscope, a été spécifiquement développé. Pour l'infrarouge, le détecteur monocanal est en InAsSb, lui aussi refroidi. L'optique de collection est alors à miroirs.

Nos mesures électriques et optiques simultanées permettent de sonder la physique des interactions entre électrons et photons à l'échelle nanométrique. L'électroluminescence est attribuée à l'émission spontanée d'un nanogaz d'électrons chauds, conséquence des très haute densités de courant. La température maximale du gaz, de l'ordre de 2000 K, est alors atteinte dans un volume très réduit, estimé à quelques nanomètres au cube. Cette température est fonction des conditions opératoires. Pour ces nanojonctions d'or, nous parvenons à en donner une expression analytique simple.

Ces travaux complètent et confortent des expériences similaires menées depuis le début des années 2000 dans le groupe, à Kiel et à Dijon. Ils sont discutés dans ce contexte et dans le cadre d'un modèle initialement développé pour expliquer l'émission d'électrons chauds à partir de films métalliques granulaires. Nos résultats sont également rapprochés de résultats d'expériences pompe/sonde femtoseconde interrogeant la dynamique des électrons hors équilibre dans des nanobilles d'or ainsi que d'expériences à basse température de transport en physique mésoscopique.

## Abstract

This experimental thesis deals with electroluminescence from gold atomic point contacts. Ballistic electrons flow through these contacts.

Metallic point contacts are formed and driven with a home-made mechanically controlled break junction device. The nanojunctions are made from gold wires. Experiments are performed at room temperature and in the air.

The junctions are driven at conductances of the order of  $G_0 = 2e^2/h$ , and biased in the volt range. Electroluminescence is observed in the visible range with an infinity corrected inverted optical microscope. The detector is a high sensitivity silicon camera. To perform spectral analysis, a dispersive on-line device has been developed to be inserted directly within the microscope. A reflective objective collects infrared photons and focuses them onto an InAsSb photovoltaic cooled detector.

Our simultaneous electrical and optical measurements allow us to investigate the physics of electrons and photons interactions at the nanometric scale. Electroluminescence is explained by the spontaneous emission of a hot electron nanogaz favoured by huge current densities. The maximum electron gas temperature, of the order of 2000 K, is then reached within a limited volume, of a few cubic nanometers. This high electron temperature depends on operating conditions. Based on experimental results we propose a simple expression of this temperature in gold ballistic nanojunctions.

This work extends and supports similar, although in different operating conditions, electroluminescence studies performed since the early 2000's in our research group in Marseille, in Kiel and in Dijon. The results are discussed in this context and in the framework of a model first introduced to account for hot electron emission from thin granular metallic films. Moreover, we discuss the mechanism leading to the hot electron gaz with the support of pump/probe femtosecond experiments probing the nonequilibrium electron dynamics in gold nanosphere and with the support of low temperature mesoscopic transport experiments.