

Vers des boîtes quantiques à base de graphène

par

Simon Branchaud

mémoire présenté au département de Physique
en vue de l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.)

FACULTÉ DES SCIENCES
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 8 octobre 2010



Library and Archives
Canada

Published Heritage
Branch

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Direction du
Patrimoine de l'édition

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file *Votre référence*
ISBN: 978-0-494-70783-8
Our file *Notre référence*
ISBN: 978-0-494-70783-8

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.


Canada

Le 29 octobre 2010

*le jury a accepté le mémoire de Monsieur Simon Branchaud
dans sa version finale.*

Membres du jury

**Professeur Alexandre Blais
Directeur de recherche
Département de physique**

**Dr Andy Sachrajda
Codirecteur de recherche
Institut des sciences des microstructures, CNRC**

**Professeur Denis Morris
Membre
Département de physique**

**Professeur Claude Bourbonnais
Président rapporteur
Département de physique**

À mes parents et amis

Sommaire

Le graphène est un matériau à base de carbone qui est étudié largement depuis 2004. De très nombreux articles ont été publiés tant sur les propriétés électroniques, qu'optiques ou mécaniques de ce matériel. Cet ouvrage porte sur l'étude des fluctuations de conductance dans le graphène, et sur la fabrication et la caractérisation de nanostructures gravées dans des feuilles de ce cristal 2D.

Des mesures de magnétorésistance à basse température ont été faites près du point de neutralité de charge (PNC) ainsi qu'à haute densité électronique. On trouve deux origines aux fluctuations de conductance près du PNC, soit des oscillations mésoscopiques provenant de l'interférence quantique, et des fluctuations dites Hall quantique apparaissant à plus haut champ ($>0.5T$), semblant suivre les facteurs de remplissage associés aux monocouches de graphène. Ces dernières fluctuations sont attribuées à la charge d'états localisés, et révèlent un précurseur à l'effet Hall quantique, qui lui, ne se manifeste pas avant $2T$. On arrive à extraire les paramètres caractérisant l'échantillon à partir de ces données.

À la fin de cet ouvrage, on effectue des mesures de transport dans des constriction et îlots de graphène, où des boîtes quantiques sont formées. À partir de ces mesures, on extrait les paramètres importants de ces boîtes quantiques, comme leur taille et leur énergie de charge.

Remerciements

Je tiens à remercier l'équipe de physique quantique du CNRC, principalement mon co-directeur le Dr. Andrew Sachrajda, qui m'a guidé avec beaucoup de patience et beaucoup d'encouragement durant les travaux liés à ce projet. Je suis particulièrement reconnaissant pour sa disponibilité et son support constant. Je voudrais aussi remercier Piotr Zawadzki, qui m'a enseigné les systèmes de cryogénie en détail, me permettant ainsi d'être indépendant en laboratoire, ce que j'apprécie énormément. Un grand merci au Dr. Alicia Kam qui a aussi toujours été d'un grand support et qui m'a enseigné les rudiments de la nanofabrication. Merci aussi à Louis Gaudreau, Ghislain Granger et Sergei Studenikin pour leur aide indispensable en physique des semi-conducteurs et pour tout l'Hélium liquide emprunté! Je suis aussi redevable au Dr. Guy Austing et à Chris Payette qui m'ont donné un grand coup de main avec l'installation et l'opération du cryostat utilisé pour la plupart des résultats présentés ici. Les discussions avec le Dr. François Peeters ont été d'une grande aide à la réalisation des mesures sur les fluctuations, et je le remercie. Merci également à tous mes professeurs à l'Université de Sherbrooke qui m'ont inculqué une excellente base en physique, notamment mon co-superviseur Alexandre Blais qui m'a guidé à travers les principes fondamentaux de la physique mésoscopique. Mes parents, Louis Branchaud et Line Villeneuve ont été d'un grand support, et je les remercie profondément. Je dois aussi souligner tout le support moral apporté par mon frère Vincent, ma copine Anik, et les gars du bureau d'en bas, David, Martin et Peter.

Table des matières

Sommaire	vii
Table des matières	xi
Liste des figures	xiii
Introduction	1
1 Notions théoriques	3
1.1 Structure cristalline	3
1.1.1 Structure électronique, réseau réciproque et Zone de Brillouin	4
1.1.2 Structure de bande	5
1.2 Propriétés Électroniques du Graphène	10
1.2.1 Effet de champ ambipolaire	10
1.2.2 Chiralité et paradoxe de Klein	11
1.2.3 Effet Hall Quantique Irrégulier	13
1.3 Fluctuations de Conductance	16
1.3.1 Fluctuations universelles de conductance	16
1.3.2 Localisation Faible/Antilocalisation faible	18
1.3.3 Fluctuations provenant des flaques électron-trou	19
1.4 Nanostructures	19
1.4.1 Boîtes quantiques	19
1.4.2 Ouverture d'un gap dans le graphène	23
1.4.3 Formations de boîtes quantiques dans les constrictionns	23
1.4.4 Qubits de spin	24

2 Aspects expérimentaux	25
2.1 Fabrication	25
2.1.1 Préparation du substrat, exfoliation et identification du graphène	25
2.1.2 Dépôt des grilles et fabrication de nanostructures	27
2.2 Montage expérimental	28
2.2.1 Modification et installation du cryostat	28
2.2.2 Techniques en courant direct	28
2.3 Mesures préliminaires	30
2.3.1 Courbe de Dirac et nettoyage thermique	30
2.3.2 Mobilité et densité de porteurs	32
2.3.3 Effet Hall quantique	33
3 Fluctuations de conductance dans le graphène	35
3.1 Motivations	35
3.2 Dépendance en température	35
3.3 Creux dans la résistance	38
3.4 Fluctuations à haute densité	39
3.5 Fluctuations près du point de neutralité de charge	40
3.6 Fluctuations Hall quantiques	42
3.7 Taille des fluctuations	46
4 Nanostructures	49
4.1 Motivations	49
4.2 Constrictions	50
4.2.1 Ouverture d'un gap dans les constrictions	50
4.2.2 Transport à travers la constriction et formation de boîtes quantiques	51
4.3 Boîtes quantiques	53
4.3.1 Contrôle des boîtes quantiques	54
Conclusion	57
Bibliographie	61

Liste des figures

1.1	Configuration électronique du graphène.	3
1.2	Configuration des orbitales du graphène.	4
1.3	Gauche : Structure du graphène, faite de deux structures triangulaires interpénétrées, ayant \mathbf{a}_1 et \mathbf{a}_2 comme vecteurs unités et δ_i , $i = 1, 2, 3$ comme vecteurs de plus proches voisins. Droite : Zone de Brillouin correspondante, les cônes de Dirac sont situés aux points K et K'. Figure adaptée de [1] .	4
1.4	Spectre énergétique (en unités de t) pour des valeurs finies de t et t' , avec $t = 2.7$ eV et $t' = 0.2t$. La partie droite est un agrandissement de l'une des bandes près d'un point de Dirac, pour montrer la relation de dispersion linéaire. Figure tirée de [1]	9
1.5	Gauche : Effet de champ ambipolaire dans le graphène, on voit que le maximum de résistance n'est pas infini, mais est environ 4.5 k Ω . Droite : Conductivité à partir de la partie gauche en $\sigma = 1/\rho$	11
1.6	Transmission d'un fermion de Dirac à travers une barrière de potentiel. Le transport à travers la barrière est possible puisqu'il existe un état trou possédant la même énergie et la même chiralité que l'électron incident. .	13
1.7	Représentation de l'effet Hall quantique conventionnel. Les pics jaunes et bleus représentent les niveaux de Landau pour les trous et électrons, respectivement. Image tirée de [2]	14
1.8	a : Effet Hall quantique irrégulier dans le graphène. La conductivité de Hall σ_{xy} (courbe rouge) et la résistivité longitudinale ρ_{xx} (courbe bleue) en fonction de la densité de porteurs. On voit la quantification en $(N + 1/2)4e^2/h$. b : Représentation schématique de la dépendance en $N^{1/2}$ de la séparation des niveaux de Landau. Figure adaptée de [3]	15

1.9	EHQ dans le graphène à température de la pièce. La grande séparation en énergie entre les deux premiers niveaux de Landau permet de résoudre les plateaux à haute température. Image tirée de [4]	16
1.10	a. Fluctuations universelles de conductance, l'interférence entre deux chemins cause les fluctuations. b. Localisation faible, due à l'interférence entre deux chemins égaux, mais de rotation opposée, on voit facilement comment ce type de localisation disparaît avec l'application d'un champ magnétique.	16
1.11	Circuit équivalent pour une boîte quantique individuelle.	20
1.12	Schéma montrant le principe du blocage de Coulomb, avec la séparation énergétique entre les pics. Figure reproduite avec l'accord de Louis Gaudreau.	21
1.13	Diagramme de stabilité pour deux boîtes quantiques, chacune fortement couplée à une grille de contrôle.	22
1.14	Diamants de Coulomb pour une boîte quantique.	23
2.1	Contraste en fonction de l'épaisseur de SiO ₂ et de la longueur d'onde incidente. Image tirée de [5]	26
2.2	Spectre Raman du graphène près du pic 2D selon le nombre de couches, image tirée de [6]	26
2.3	Photographie d'un échantillon terminé monté sur son support	28
2.4	Schéma du cryostat utilisé, on voit le voile d'azote liquide et les espaces pouvant contenir de l'hélium liquide.	29
2.5	Gauche : Support à échantillons avant la modification. Droite : Nouveau support à échantillon fabriqué pour être compatible avec deux types d'échantillons et câble coaxial pour l'application de hauts voltages de grille.	30
2.6	Schéma des différentes configurations de mesure. a. Branchement pour un échantillon à 4 contacts ohmiques. b. Branchement pour une nanostructure à grilles latérales. Dans les 2 cas, le fil rouge est le voltage de grille globale.	31
2.7	Courbes de Dirac ; Vert : Courbe prise à 300K, avant nettoyage thermique. Bleu : Courbe prise à 1K, avant nettoyage thermique. Orange : Courbe prise à 1K, après nettoyage thermique.	32
2.8	Gauche : Effet de champ ambipolaire dans le graphène, on voit que le maximum de résistance n'est pas infini, mais est environ 4.5 kΩ. Droite : Conductivité à partir de la partie gauche en $\sigma = 1/\rho$	32

2.9	Mobilité des porteurs à différentes densités pour l'échantillon qui sera étudié au chapitre 3. Contrairement aux gaz 2D d'électrons, la mobilité est maximale lorsque la densité de porteurs est faible.	33
2.10	a. Effet Hall Quantique dans le graphène à champ magnétique fixe, avec variation de l'énergie de Fermi. b. EHQ à énergie de Fermi fixe en variant le champ magnétique. Dans tous les deux cas la résistance longitudinale est en rouge et la résistance transverse en noir. On peut voir la séquence de plateaux correspondant à une monocouche de graphène. Ici le voltage de grille est 20V, soit haute densité électronique. c. Même courbe, mais au point de Dirac, $V_g = 1.5V$. d. $V_g = 0V$, soit près du point de Dirac. e. et f. sont respectivement 9V et -5V, soit à distance égale du point de Dirac dans le régime d'électrons et de trous.	34
3.1	Résistance longitudinale en fonction du champ magnétique à différents températures. Les oscillations sont présentes jusqu'à 60 K. La courbe à 1.8K est à ses valeurs actuelles, les autres sont chacune décalées de 500 Ω	36
3.2	Gauche : Résistance longitudinale en fonction du champ magnétique pour différentes températures, une résistance de fond a été soustraite pour extraire l'amplitude des fluctuations de conductance. Droite : Longueur de cohérence de phase en fonction de la température, calculés à partir d'une fonction d'autocorrélation.	37
3.3	Logarithme naturel des amplitudes RMS des fluctuations en fonction de la température.	37
3.4	Résistance de l'échantillon en fonction du voltage de grille et du champ magnétique, on peut voir un creux près du PNC. La flèche indique la position du PNC.	39
3.5	Résistance en fonction du voltage de grille et du champ magnétique dans la région à haute densité d'électrons, on observe des fluctuations universelles de conductance variant lentement en fonction de la densité. Le graphique du centre est la dérivée en fonction du champ magnétique, et celui de droite la dérivée en fonction de la densité de porteurs.	40
3.6	Diagramme en chute d'eau des fluctuations universelles de conductance, chaque courbe correspondant à un voltage de grille différent entre 19 et 20 V.	41

3.7	Transformée de Fourier des fluctuations de conductance universelles, montrant la diversité de celles-ci.	41
3.8	Résistance en fonction du voltage de grille et du champ magnétique autour du PNC, le graphique du centre est la dérivée en fonction du champ magnétique, et celui de droite la dérivée en fonction de la densité de porteurs. La flèche indique la position du PNC.	42
3.9	Diagramme en chute d'eau des fluctuations autour du PNC, on voit une évolution rapide en fonction de la densité de porteurs, chaque ligne correspondant à une densité de porteurs différente.	43
3.10	Résistance longitudinale en fonction du voltage de grille et du champ magnétique, la partie de droite est une mesure à plus haute résolution du premier quadrant de la partie de gauche. La flèche indique la position du PNC.	44
3.11	Résistance en fonction du voltage de grille et du champ magnétique, le graphique du centre est la dérivée en fonction du champ magnétique, et celui de droite la dérivée en fonction de la densité de porteurs. On peut voir 3 ensembles de lignes parallèles suivant les facteurs de remplissage propres aux monocouches de graphène. La flèche de gauche indique la position du PNC, et les lignes pointillées jaunes l'étendue du désordre en densité.	45
3.12	Écrantage et compressibilité dans l'échantillon en fonction de la position du niveau de Fermi. Voir texte pour explications.	47
3.13	Gauche : Schéma de l'échantillon de graphène montrant la position des boîtes quantiques (points rouges) mentionnées plus haut. Droite : Zoom sur les lignes de la figure 3.11, les lignes pointillées jaunes sont un guide pour l'oeil. La séparation entre ces lignes permet de calculer l'énergie de charge et la taille de la boîte quantique correspondante.	48
4.1	Image au microscope électronique de la constriction utilisée. On y trouve les contacts ohmiques source (S) et drain (D), et les grilles latérales T et B.	50
4.2	Formation de boîtes quantiques dans les constriction, voir texte pour explications. Figure adaptée de [7]	51
4.3	Diagramme de stabilité des boîtes quantiques formées dans la constriction. La ligne pointillée rouge indique l'étendue des voltages de grille de la figure	
4.4	51

4.4	Diamants de Coulomb dans la constriction, on en retire l'énergie de charge de la boîte quantique.	52
4.5	Croisement de niveaux dans l'échantillon de graphène, les flèches indiquent l'endroit où il y a croisement entre les pics de Coulomb. On mesure le courant différentiel en fonction de la grille T et du champ magnétique. . .	53
4.6	Image à microscope à effet tunnel d'un échantillon de boîte quantique, les lignes pointillées sont un guide visuel des gravures dans le graphène. . . .	53
4.7	Courant à travers un transistor à un électron, voir texte pour détails, figure tirée de [8]	54
4.8	Haut : Courant à travers la structure de la figure 4.6 en fonction de la grille globale, on voit un minimum de courant sur une grande échelle. Bas : Zoom sur la boîte pointillée rouge de la figure ci-haut, on voit des oscillations de Coulomb, à partir desquelles on calcule l'énergie de charge de la boîte quantique.	55
4.9	Image au microscope électronique d'une double boîte quantique dans le graphène	57

Introduction

Le graphène est certainement la plus grande vedette dans le monde de la physique du solide depuis qu'il a été isolé efficacement en 2004 [9]. Ce matériel, un allotrope du carbone, possède des propriétés très distinctes. Étant une monocouche atomique, il s'agit du matériau le plus mince étudié à ce jour, c'est le matériau le plus résistant jamais mesuré. Les porteurs dans le matériau possèdent une masse effective nulle, possèdent la plus haute mobilité intrinsèque connue, peuvent se propager sur des distances de l'ordre du micron sans diffusion, et ce, même à température de la pièce. En fait, les électrons se comportent plutôt comme des photons dans le graphène, ce qui permet l'étude de l'électrodynamique quantique dans des expériences à plus basse énergie que ce qui était nécessaire jusqu'à maintenant.

Or le graphène est aussi un matériel extrêmement prometteur pour l'électronique et la spintronique de demain. Puisque l'interaction spin-orbite est très faible dans ce matériel, et que la décohérence due au spin nucléaire est négligeable grâce au spin nucléaire de 0 dans le carbone 12 [1], et à la faible proportion de carbone 13 (1% environ), les qubits de spin dans des boîtes quantiques de graphène peuvent avoir un long temps de décohérence. Cependant, avant de fabriquer des qubits de spin, on doit fabriquer et contrôler une boîte quantique, ce qui, dans le graphène, n'est pas une mince tâche en raison de la difficulté à y former des barrières tunnel. Certains groupes, notamment à l'ETH à Zurich et en Californie, ont remédié à cette situation à l'aide de nano-rubans de graphène [7, 10], et ont réussi à fabriquer des boîtes quantiques et des transistors à un électron [8, 11]. Pour bien contrôler ces systèmes, nous verrons plus tard qu'il est impératif de comprendre les fluctuations de conductance dans les échantillons de graphène. L'étude des fluctuations de conductance est un sujet chaud [12–14], puisqu'elle donne une vue d'ensemble du désordre dans les échantillons de graphène, et des processus de localisation menant à la formation de boîtes quantiques.

On présente dans cet ouvrage, une étude sur les différents types de fluctuations de conductance pouvant apparaître dans les échantillons de graphène, à différents régimes de densité de porteurs et sous champ magnétique. On étudie aussi des nanostructures gravées dans des feuilles de graphène, qui sont les étapes préliminaires vers des qubits de spin dans ce matériau.

Au chapitre 1, on présente les notions théoriques importantes pour la compréhension des données recueillies ici. On calcule la structure de bande du graphène pour faire ressortir ses propriétés électroniques, on étudie l'effet Hall quantique dans ce matériau, et on s'intéresse aux phénomènes de localisation, et de fluctuations de conductance. On fait aussi une courte présentation sur la théorie des boîtes quantiques, et la fabrication de barrière tunnel dans les échantillons.

Le chapitre 2 porte sur les techniques expérimentales, on y montre la fabrication des échantillons, le système cryogénique utilisé et les circuits de mesure. On y voit des mesures préliminaires servant à déterminer si les échantillons sont bel et bien des monocouches de graphène et à calculer leur mobilité et la densité des porteurs. On mesure aussi l'effet Hall quantique pour extraire certains paramètres de l'échantillon.

Les chapitres 3 et 4 portent sur les mesures expérimentales, le chapitre 3 est une étude des fluctuations de conductance dans le graphène, où l'on montre le comportement en température de la conductance. On y voit aussi le rôle majeur que jouent les flaques d'électrons et de trous présentes près du point de neutralité de charge. On étudie les fluctuations universelles de conductance à haute densité électronique, et finalement, on montre un nouveau type de fluctuations qui sont un précurseur à l'effet Hall quantique, provenant de boîtes quantiques Hall quantiques.

Le dernier chapitre est un ensemble de mesures qui ont été faites sur les nanostructures fabriquées au CNRC, soit une constriction de 100nm par 100nm, et une structure semblable à un transistor à un électron contenant un îlot séparé par deux constriction. On trouve les tailles des boîtes quantiques apparaissant dans ces structures et on les compare aux tailles des fluctuations mises en évidence au chapitre précédent.

Chapitre 1

Notions théoriques

1.1 Structure cristalline

Le graphène est un allotrope du carbone, tout comme les nanotubes de carbone, le graphite, le diamant, ou les fullerènes. Sa structure électronique diffère de la configuration $2s^2 2p^2$ classique du carbone. Le graphène est arrangé en une structure hexagonale en nid d'abeille formant une couche d'un seul atome d'épaisseur. La configuration électronique moléculaire la plus stable correspond à $6N$ états hybrides sp_2 et $2N$ états p_z . Le remplissage de ces états est illustré à la figure 1.1.

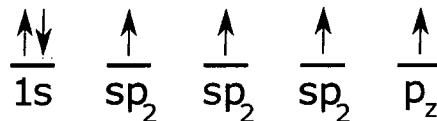


FIGURE 1.1 – Configuration électronique du graphène.

Il y a trois orbitales sp_2 symétriques, à moitié remplies séparées de 1.42 \AA , à un angle de 120° . Il y a donc trois liens σ covalents et invariables sous rotation dans le plan du graphène, et un lien π à moitié rempli, perpendiculaire à la surface, comme illustré à la figure 1.2.

Même si le graphène est une couche monoatomique, on dit qu'il s'agit d'un cristal semi 2D, puisque le théorème de Mermin-Wagner stipule qu'une brisure spontanée d'une symétrie continue est impossible dans un cristal purement 2D. Un tel cristal ne peut donc pas présenter d'ordre à longue distance, puisque peu d'énergie est nécessaire à la création de fluctuations qui déformeront le cristal. On trouve des ondulations spatiales dans le graphène, même lorsque déposé sur un substrat comme le dioxyde de silicium. Ces

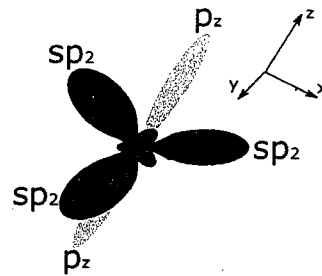


FIGURE 1.2 – Configuration des orbitales du graphène.

ondulations contribuent à la stabilité du cristal [3]. À cause de sa structure cristalline, le graphène possède deux types de bords, soit les bords *zig-zag* et les bords dits *armchair*. Nous reviendrons plus tard à ces deux types, puisqu'ils gouvernent le transport dans les rubans étroits.

1.1.1 Structure électronique, réseau réciproque et Zone de Brillouin

Plusieurs des propriétés électroniques intéressantes du graphène s'expliquent lorsque l'on considère sa structure électronique. Ainsi, en 1947, P.R. Wallace [15] étudiait les propriétés du graphite, quand il a songé à négliger les interactions entre les plans (séparés de 3.37 Å, qui est plus qu'entre les atomes dans le graphène) pour se concentrer sur le transport dans les couches monoatomiques. Il a ensuite utilisé la méthode du couplage fort pour calculer la structure de bande du graphène, c'est ce que nous allons faire ici.

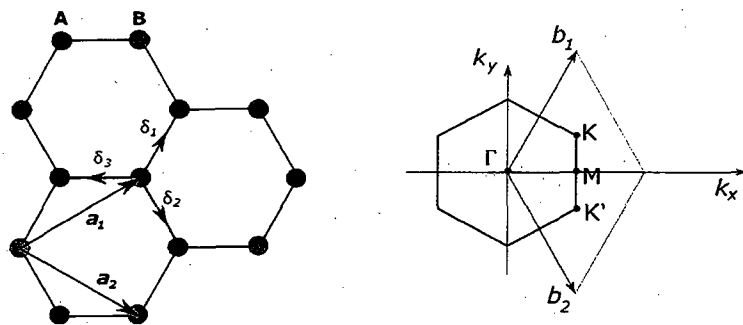


FIGURE 1.3 – Gauche : Structure du graphène, faite de deux structures triangulaires interpénétrées, ayant a_1 et a_2 comme vecteurs unitaires et δ_i , $i = 1, 2, 3$ comme vecteurs de plus proches voisins. Droite : Zone de Brillouin correspondante, les cônes de Dirac sont situés aux points K et K'. Figure adaptée de [1].

La première étape consiste à trouver les vecteurs primitifs, ou vecteurs unitaires et la cellule unitaire. La partie gauche de la figure 1.3 indique la structure hexagonale avec ces

vecteurs, et les deux réseaux triangulaires A et B, il y a donc deux atomes par cellule unité.

Les vecteurs unités sont donc :

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

Où $a = 1,42 \text{ \AA}$, la distance interatomique, les vecteurs du réseau réciproques deviennent :

$$\vec{b}_1 = \frac{2\pi}{3a}(1, \sqrt{3}) \quad \vec{b}_2 = \frac{2\pi}{3a}(1, -\sqrt{3}). \quad (1.2)$$

À partir de ces vecteurs, on peut construire la première zone de Brillouin, telle que montrée dans la partie droite de la figure 1.3. On peut alors calculer la structure de bande en utilisant la méthode du couplage fort.

1.1.2 Structure de bande

On commence par considérer un électron par site de l'orbitale non-pairée, ses fonctions de Wannier sont :

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \sum_{\vec{R}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \varphi(\vec{r} - \vec{R}), \quad (1.3)$$

Où $\vec{R} = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2$ est l'ensemble des vecteurs du réseau, avec n_1 et n_2 entiers, et $\varphi(\vec{r} - \vec{R})$ est la fonction d'onde de l'orbitale p_z . Il y a deux atomes par cellule unité, la fonction φ devient donc une combinaison linéaire des deux fonctions d'ondes orbitales individuelles

$$\varphi(\vec{r} - \vec{R}) = \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) + \lambda\varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2). \quad (1.4)$$

Dans cette expression, les indices 1 et 2 représentent chacun des deux atomes dans la cellule unité et λ l'amplitude relative des fonctions d'onde. La fonction d'onde devient alors :

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \sum_{\vec{R}_1} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) + \lambda \sum_{\vec{R}_2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_2} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) \quad (1.5)$$

La prochaine étape consiste à résoudre l'équation aux valeurs propres $H\psi = E\psi$:

$$\begin{aligned} & H \sum_{\vec{R}_1} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) + \lambda \sum_{\vec{R}_2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_2} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) \\ &= E \sum_{\vec{R}_1} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) + \lambda \sum_{\vec{R}_2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_2} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) \end{aligned} \quad (1.6)$$

En multipliant cette équation de deux façons, soit par φ_1^* et φ_2^* à gauche et en intégrant sur \vec{r} , on obtient les deux équations :

$$\begin{aligned} & \int \varphi_1^* H \sum_{\vec{R}_1} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) + \lambda \sum_{\vec{R}_2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_2} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) \\ &= \int \varphi_1^* E \sum_{\vec{R}_1} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) + \lambda \sum_{\vec{R}_2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_2} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) \end{aligned} \quad (1.7)$$

$$\begin{aligned} & \int \varphi_2^* H \sum_{\vec{R}_1} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) + \lambda \sum_{\vec{R}_2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_2} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) \\ &= \int \varphi_2^* E \sum_{\vec{R}_1} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) + \lambda \sum_{\vec{R}_2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_2} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) \end{aligned} \quad (1.8)$$

On néglige le recouvrement des fonctions d'ondes de sites différents, soit :

$$\int \varphi_i^*(\vec{r}) \varphi_j(\vec{r} - R_j) d\vec{r} = 0 \quad (1.9)$$

Pour $i \neq j$, l'ensemble d'équations devient donc

$$\begin{aligned} H_{11} + \lambda H_{12} &= ES \\ H_{21} + \lambda H_{22} &= \lambda ES \end{aligned} \quad (1.10)$$

où

$$H_{11} = \sum_{\vec{R}_1} \int \varphi_1^*(\vec{r}) H e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) d\vec{r} \quad (1.11)$$

$$H_{12} = \sum_{\vec{R}_2} \int \varphi_1^*(\vec{r}) H e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) d\vec{r} \quad (1.12)$$

$$H_{21} = \sum_{\vec{R}_1} \int \varphi_2^*(\vec{r}) H e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) d\vec{r} \quad (1.13)$$

$$H_{22} = \sum_{\vec{R}_2} \int \varphi_2^*(\vec{r}) H e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) d\vec{r} \quad (1.14)$$

et

$$S = \sum_{\vec{R}_1} \int e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \varphi_1^*(\vec{r}) \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) d\vec{r} = \sum_{\vec{R}_2} \int e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} \varphi_2^*(\vec{r}) \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) d\vec{r} \quad (1.15)$$

Nous avons négligé le recouvrement entre les différentes fonctions d'onde, ainsi $S = 1$, puisque la somme sur \vec{R} se réduit à $\vec{R} = 0$ avec des fonctions d'onde normalisées. Par symétrie, on a aussi $H_{11} = H_{22}$ et $H_{12} = H_{21}$, l'équation 1.10 devient alors

$$\begin{aligned} H_{11} + \lambda H_{12} &= E \\ H_{12} + \lambda H_{11} &= \lambda E \end{aligned} \quad (1.16)$$

Simplifions λ en utilisant le calcul matriciel :

$$E = H_{11} \pm |H_{12}| \quad (1.17)$$

Nous devons obtenir H_{11} et H_{12} , puisqu'il faut exprimer cette relation de dispersion en vecteurs d'onde pour obtenir la structure de bande. On commencera avec un hamiltonien de cette forme :

$$H = H_{at}(\vec{r}) + \Delta U(\vec{r}) \quad (1.18)$$

où H_{at} est l'hamiltonien contenant les énergies cinétiques et potentielles de l'électron dues à son appartenance à l'orbitale p . Puisque cet hamiltonien est le même pour tous les électrons, il va déplacer la structure de bande par une constance, on choisira donc cet hamiltonien comme nul. D'un autre côté, ΔU est la correction nécessaire à l'obtention du vrai potentiel cristallin.

En remplaçant dans les deux termes que nous cherchons, on trouve alors :

$$H_{11} = \sum_{\vec{R}_1} \int \varphi_1^*(\vec{r}) \Delta U(\vec{r}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{R}_1} \varphi_1(\vec{r} - \vec{R}_1) d\vec{r} \quad (1.19)$$

$$H_{12} = \sum_{\vec{R}_2} \int \varphi_1^*(\vec{r}) \Delta U(\vec{r}) e^{i\vec{k} \cdot \vec{R}_2} \varphi_2(\vec{r} - \vec{R}_2) d\vec{r} \quad (1.20)$$

Approximons maintenant que les interactions n'existent qu'entre les plus proches et seconds plus proches voisins, pour se débarrasser des sommations. Les deux équations précédentes montrent que H_{11} correspond aux interactions avec les seconds plus proches voisins et H_{12} avec les plus proches voisins. Les termes où $\vec{R} = 0$ n'ont aucune dépendance en \vec{k} , et donc ne déplacent la structure de bande que par une constante. Nous allons donc les négliger. Introduisons maintenant les termes tunnel t et t' , correspondant respectivement au transfert électronique entre plus proches voisins et seconds plus proches voisins :

$$\begin{aligned} t' &= \int \varphi_1^*(\vec{r}) \Delta U(\vec{r}) \varphi_1(\vec{r} - \vec{A}) d\vec{r} \\ t &= \int \varphi_1^*(\vec{r}) \Delta U(\vec{r}) \varphi_2(\vec{r} - \vec{B}) d\vec{r} \end{aligned} \quad (1.21)$$

Où \vec{A} et \vec{B} sont les vecteurs joignant les seconds plus proches voisins et plus proches voisins, respectivement, soit appartenant aux réseaux triangulaires A et B.

On peut alors établir la relation de dispersion dans l'espace des \vec{k} à partir de l'équation 1.17 :

$$E = \sum_C e^{i\vec{k} \cdot \vec{A}} t' \pm \sum_D |e^{i\vec{k} \cdot \vec{B}} t| \quad (1.22)$$

Avec C les seconds plus proches voisins et D les plus proches voisins. Cette équation a été résolue par Wallace :

$$\begin{aligned} E &= -t' [2 \cos(\sqrt{3}k_y a) + 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a\right) \cos\left(\frac{3}{2}k_x a\right)] \\ &\pm t \sqrt{3 + [2 \cos(\sqrt{3}k_y a) + 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a\right) \cos\left(\frac{3}{2}k_x a\right)]} \end{aligned} \quad (1.23)$$

La figure 1.4 montre le spectre énergétique (en unités de t) pour des valeurs finies de t et t' , avec $t = 2.7$ eV et $t' = 0.2t$. Le terme en \pm de l'équation 1.23 établit la bande supérieure (+) et la bande inférieure (-), l'espace entre ces bandes correspond alors au gap $E_g = 2|H_{12}|$.

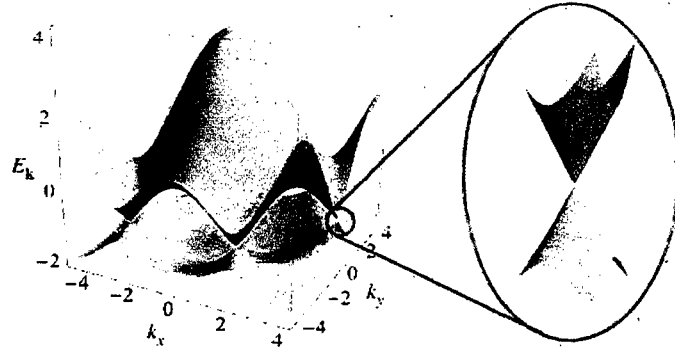


FIGURE 1.4 – Spectre énergétique (en unités de t) pour des valeurs finies de t et t' , avec $t = 2.7$ eV et $t' = 0.2t$. La partie droite est un agrandissement de l'une des bandes près d'un point de Dirac, pour montrer la relation de dispersion linéaire. Figure tirée de [1]

Il y a des points où le gap est nul dans la zone de Brillouin, le graphène est donc un *semiconducteur à gap nul*. Ces points sont appelés points K , ou points de Dirac. Ils se situent près de l'énergie de Fermi. Comme on le voit à la figure 1.4, près de $E = 0$, donc E_f pour le graphène neutre, la relation de dispersion devient conique. Elle est linéaire en amplitude de la quantité de mouvement. Elle peut donc être approximée comme :

$$E(\vec{q}) = \pm v_f \vec{q} \quad (1.24)$$

où \vec{q} est la quantité de mouvement par rapport au point de Dirac, et $v_f = dE/dq$ est la vitesse de Fermi, aussi calculée par Wallace comme :

$$v_f = \frac{3ta}{2} \approx 1 \cdot 10^6 \text{ m/s} \quad (1.25)$$

Cette équation implique que près de l'énergie de Fermi, les électrons ont une vitesse constante dans le graphène, indépendante de l'énergie. Cela est tout à fait contraire à leur comportement habituel dans les cristaux ayant une relation de dispersion quadratique près des frontières de la zone de Brillouin. Les photons possèdent une relation de dispersion linéaire, avec constante de proportionnalité c , on peut donc croire que les électrons se

comporteront sensiblement de la même façon que les photons, ce qui rapproche la physique de la matière condensée de l'électro-dynamique quantique. La prochaine section porte sur ce rapprochement.

1.2 Propriétés Électroniques du Graphène

1.2.1 Effet de champ ambipolaire

Une des premières manifestations de la linéarité de la structure de bande et de la nature semi-métallique du graphène est l'effet de champ ambipolaire. En effet, en appliquant un voltage de grille globale à l'échantillon, il est possible de varier la densité de porteurs n dans le graphène. Si on considère un modèle de condensateur à plaques parallèles, où la grille globale est une plaque et le graphène en est une autre, on obtient :

$$n = \frac{\epsilon_0 \epsilon V_g}{d \cdot e}, \quad (1.26)$$

Où V_g est le voltage de grille, d l'épaisseur de la couche de SiO_2 , ϵ_0 la permittivité du vide, et ϵ la permittivité relative, ici on utilisera celle du SiO_2 , e est la charge élémentaire. Le voltage appliqué induit donc un changement de l'énergie de Fermi dans la structure de bande. L'expression précédente peut s'écrire sous la forme $n = \alpha V_g$, où α est une constante de proportionnalité de l'ordre de $7.2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}\text{V}^{-1}$ pour 300 nm d'oxyde de silicium.

On s'attendrait à avoir une concentration de porteurs nulle à $V_g = 0$, et donc une conductivité nulle, mais les résultats expérimentaux sont bien différents.

La figure 1.5 montre les résultats expérimentaux obtenus à 4 K en variant le voltage de grille. On voit que la conductivité a un minimum à environ $6 e^2/h$, où e^2/h est le quantum de conductance. La conductivité est linéaire autour du point de Dirac, ce qui reproduit le résultat $\sigma = \mu n e$ [1]. Cependant, autour de $V_g = 0$, la conductivité change rapidement, démontrant le changement de porteurs trous à porteurs électrons. La conductivité minimale finie du graphène est le sujet de plusieurs études, et reste un problème à résoudre, mais la plupart des théories pointent, comme on le verra plus tard, vers un mélange de trous et d'électrons en flaques qui participent à la conduction [16, 17].

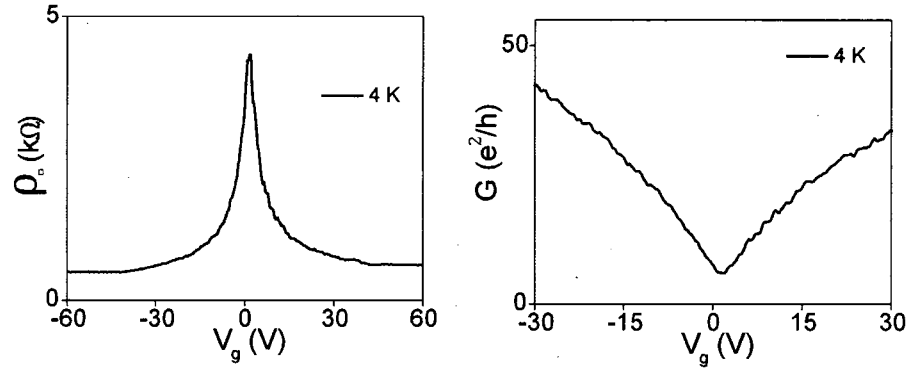


FIGURE 1.5 – Gauche : Effet de champ ambipolaire dans le graphène, on voit que le maximum de résistance n'est pas infini, mais est environ 4.5 kΩ. Droite : Conductivité à partir de la partie gauche en $\sigma = 1/\rho$.

1.2.2 Chiralité et paradoxe de Klein

Nous avons montré plus haut que les porteurs de charge dans le graphène se comportent de façon semblable à des photons, on les décrit donc avec l'équation de Dirac plutôt que celle de Schrödinger. Cependant, les électrons ne sont pas relativistes, ils se comportent plutôt comme des quasiparticules ressemblant à des photons avec une vitesse environ $c/300$.

Ils sont aussi considérés sans masse, comme les photons. En effet, en prenant la définition de la masse effective :

$$m^* = \frac{\hbar}{d^2 E / dk^2} \quad (1.27)$$

Avec l'équation 1.25, on trouve $m^* = 0$. De même, de la relativité restreinte :

$$E = \sqrt{m^2 c^4 + p^2 c^2} \quad (1.28)$$

Donc, $E = pc$ pour une masse nulle, nous redonnant la relation de dispersion linéaire pour les électrons dans le graphène. Les électrons sont donc gouvernés par l'équation de Dirac :

$$H = \hbar v_f \begin{pmatrix} 0 & k_x - ik_y \\ k_x + ik_y & 0 \end{pmatrix} = \hbar v_f \vec{\sigma} \cdot \vec{k}, \quad (1.29)$$

Où $\vec{\sigma}$ est le vecteur des matrices de Pauli. Il s'agit de la façon quantique de décrire le comportement d'électrons relativistes, ayant la vitesse de Fermi plutôt que la vitesse de la lumière. On appelle donc ces particules fermions de Dirac. On utilise cette matrice

puisque près de $E = 0$, les deux sous-réseaux doivent être pris en compte pour remplir les états électroniques. Il en ressort alors une double dégénérescence qui affectera les propriétés électroniques du graphène. Ces deux sous-réseaux peuvent être représentés par des fonctions d'onde à deux composantes, aussi appelées *spineurs*, mais puisque ces fonctions correspondent à des réseaux et non à des spins, on les appellera *pseudospin*.

La projection de $\vec{\sigma}$ dans la direction de la quantité de mouvement \vec{k} , positive pour les électrons, mais négative pour les trous, mène au concept de chiralité, qui peut s'interpréter comme ceci : un électron se propageant dans la direction $+k$ avec une énergie E origine de la même branche, et donc du même réseau, qu'un trou se propageant dans la direction opposée avec une énergie $-E$. Leur *pseudospin* pointe alors dans la même direction, soit parallèle au mouvement des électrons et anti-parallèle au mouvement des trous [18]. La dualité de la chiralité provient donc des deux réseaux distincts dans la structure cristalline du graphène, et joue un rôle important dans ses propriétés de transport, notamment le paradoxe de Klein.

Le paradoxe de Klein [19] est un effet quantique selon lequel des électrons relativistes peuvent pénétrer une barrière de potentiel de hauteur plus élevée que leur énergie au repos (soit $V_0 > mc^2$), la probabilité de tunnel à travers la barrière devrait être 1 indépendamment de la hauteur ou de la largeur de la barrière. C'est un effet totalement contraire à la mécanique quantique non-relativiste qui prévoit une décroissance exponentielle de la probabilité de franchir la barrière selon sa hauteur.

Ce paradoxe s'explique par la conjugaison symétrique de charge entre les électrons et les positrons. Ainsi, les électrons sont repoussés par une barrière de potentiel trop élevée, mais les positrons sont attirés. La symétrie entre électrons et positrons permet à ces derniers d'égaliser la fonction d'onde des électrons à travers la barrière, créant ainsi des états positroniques avec une haute transmission. Si le modèle à une seule particule fonctionne bien pour expliquer l'effet tunnel de Klein dans le graphène, on doit utiliser la théorie quantique des champs pour résoudre le problème dans la situation de paires électron/positron. Cela dit, cet effet nécessite des champs électriques d'environ 10^{16} V/cm ; il n'a donc pas été observé expérimentalement.

En regardant la symétrie électron-trou dans le graphène, on peut voir une ressemblance avec les paires électron-positron. Comme mentionné plus haut, les porteurs dans le graphène se comportent de manière relativiste, avec une vitesse 300 fois plus basse que

la vitesse de la lumière, tout en étant sans masse. Dans le cas du graphène, le champ électrique nécessaire à l'observation du paradoxe de Klein serait alors de l'ordre de 10^5 V/cm, ce qui est raisonnable pour les laboratoires de physique de la matière condensée.

Katsnelson *et al.* [18] ont calculé la transmission à travers une barrière carrée pour le graphène, la solution étant :

$$T = \frac{\cos^2(\phi)}{1 - \cos^2(qD) \sin^2(\phi)}, \quad (1.30)$$

T est la probabilité de transmission, ϕ l'angle d'incidence des électrons par rapport à la barrière; D la largeur de la barrière et q une fonction de la hauteur de la barrière et de l'énergie de l'électron. En traçant cette fonction, on trouve que la probabilité de transmission est 1 lorsque ϕ est zéro. La figure 1.6 montre le processus de transmission à travers une telle barrière. Pour qu'il y ait transport, un mode incident d'électron doit être égalisé par un mode de trou à l'intérieur de la barrière. Donc plus la barrière est haute, plus il est probable qu'un tel mode existe, la probabilité de transmission est donc plus grande en augmentant la hauteur de la barrière.

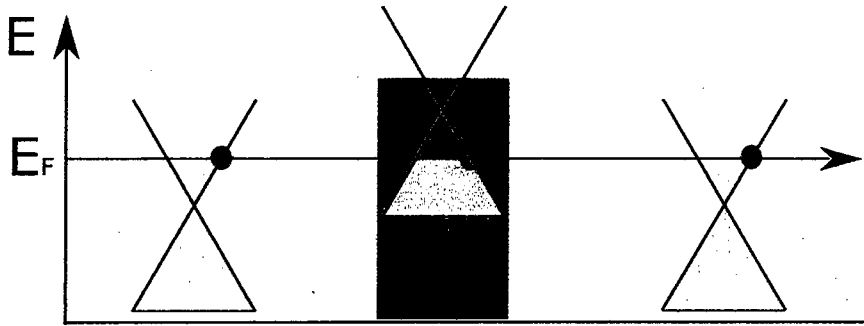


FIGURE 1.6 – Transmission d'un fermion de Dirac à travers une barrière de potentiel. Le transport à travers la barrière est possible puisqu'il existe un état trou possédant la même énergie et la même chiralité que l'électron incident.

1.2.3 Effet Hall Quantique Irrégulier

Un effet important observé dans le graphène, est l'effet Hall quantique irrégulier. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué perpendiculairement au graphène, le spectre d'énergie devient quantifié, et les électrons occupent des niveaux discrets (niveaux de Landau). En variant la densité de porteurs avec un voltage de grille globale, le nombre de

niveaux de Landau occupés change, causant alors un effet d'escalier dans la conductance transverse σ_{xy} , avec une séparation de $2e^2/h$ entre chaque plateau, le facteur 2 provenant de la dégénérescence de spin. La résistivité longitudinale ρ_{xx} montre des pics aux transitions entre les plateaux, correspondant aux niveaux accessibles pour le transport. Cependant, ρ_{xx} est nulle entre ces pics, c'est l'effet Hall quantique.

On quantifie les niveaux de Landau d'électrons confinés en 2D sujets à un champ magnétique perpendiculaire comme :

$$\epsilon_N = \hbar\omega_c(N + 1/2), \quad (1.31)$$

où ω_c est la fréquence cyclotron, soit eB/m^* et N le nombre quantique associé à chaque niveau de Landau. Le niveau 0 a donc une énergie $\epsilon_0 = \hbar\omega_c/2$. Tant que l'énergie de Fermi du système est sous cette valeur, les électrons ne peuvent occuper le premier niveau de Landau et la conductivité est nulle. La distance entre les plateaux est proportionnelle à l'énergie entre les niveaux de Landau, qui est elle-même constante. Un balayage du voltage de grille globale (et donc de la densité de porteurs) donnera naissance à des plateaux équidistants tel qu'illustré à la figure 1.7.

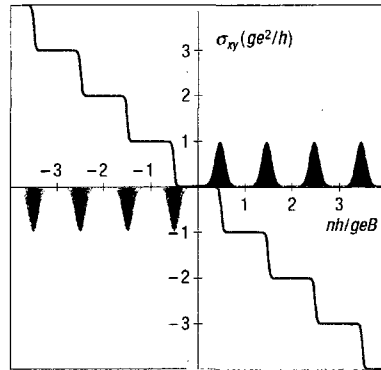


FIGURE 1.7 – Représentation de l'effet Hall quantique conventionnel. Les pics jaunes et bleus représentent les niveaux de Landau pour les trous et électrons, respectivement. Image tirée de [2]

La figure 1.8 montre le comportement de l'effet Hall quantique dans le graphène. La hauteur des plateaux est ici $4e^2/h$, puisqu'il y a une dégénérescence double additionnelle provenant des deux sous-réseaux (de la chiralité). Cependant, les plateaux ne sont pas à des valeurs entières de $N(4e^2/h)$, mais sont décalés et suivent une séquence de $(N + 1/2)(4e^2/h)$. Un autre aspect important est que, près du point de Dirac ($n = 0$), il semble n'y avoir qu'un niveau de Landau accessible qui montre une transition entre

deux plateaux dans la conductivité de Hall et un pic de résistivité longitudinale. On comprend que l'effet Hall quantique irrégulier est donnée par la quantification de Landau des fermions de Dirac sans masse calculée par Gusynin et Sharapov [20] :

$$\epsilon_N = \sqrt{2e\hbar c_*^2 B(N + 1/2 \pm 1/2)} \quad (1.32)$$

Avec c_* la vitesse de Fermi. Cette équation explique le comportement irrégulier de l'EHQ dans le graphène. Le terme en \pm correspond à la chiralité des porteurs, soit au pseudospin décrit un peu plus haut. Pour le premier niveau de Landau à $N = 0$, il y a un niveau accessible à $\epsilon = 0$, mais seulement pour un pseudospin, le signe négatif dans l'équation précédente. Il y a donc un niveau qui chevauche le point zéro, cela explique la transition entre les deux plateaux à $n = 0$, ainsi que la séquence demi-entiers. Pour $N \neq 0$, la séquence continue, mais en traînant tout de même ce «demi-plateau ». La différence d'énergie entre les niveaux de Landau est en $N^{1/2}$, la séparation entre les plateaux devrait donc diminuer quand la concentration de porteurs augmente (figure 1.8b).

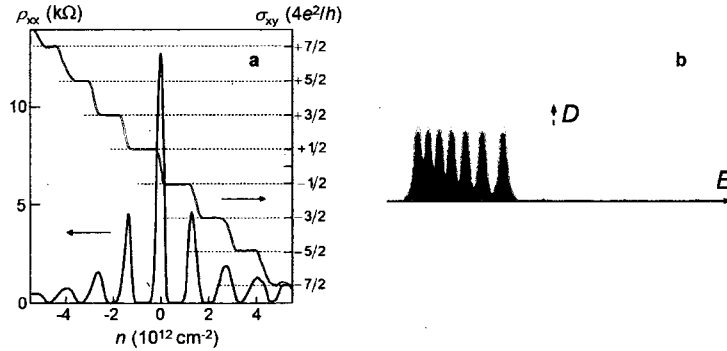


FIGURE 1.8 – a : Effet Hall quantique irrégulier dans le graphène. La conductivité de Hall σ_{xy} (courbe rouge) et la résistivité longitudinale ρ_{xx} (courbe bleue) en fonction de la densité de porteurs. On voit la quantification en $(N + 1/2)4e^2/h$. b : Représentation schématique de la dépendance en $N^{1/2}$ de la séparation des niveaux de Landau. Figure adaptée de [3]

Enfin, une autre propriété particulière au graphène est qu'on peut y observer l'EHQ à température de la pièce, lorsque l'on applique un champ magnétique suffisamment élevé. La figure 1.9 montre cet effet à 300 K avec un champ de 29 T. Il est possible de résoudre ces plateaux à température de la pièce en raison de la nature relativiste des porteurs dans le graphène. Ainsi, la séparation entre les deux premiers niveaux, tirée de l'équation (1.32) pour un champ magnétique de 29 T est environ 2500 K, ce qui est un ordre de grandeur au-dessus de l'énergie thermique $k_B T$.

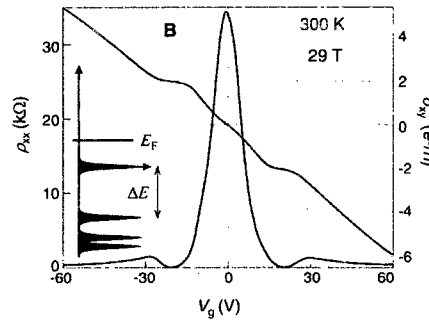


FIGURE 1.9 – EHQ dans le graphène à température de la pièce. La grande séparation en énergie entre les deux premiers niveaux de Landau permet de résoudre les plateaux à haute température. Image tirée de [4]

1.3 Fluctuations de Conductance

1.3.1 Fluctuations universelles de conductance

La résistivité d'un système est reliée à la probabilité de collision le long de différents parcours entre deux points. Selon le modèle de Drude, la conductance totale entre deux points est la somme algébrique de la conductance de chaque mode électronique occupé à une énergie de Fermi donnée [21]. Cependant, ce modèle classique est incomplet et n'arrive pas à expliquer tous les effets observés dans plusieurs matériaux à basse température et sous champ magnétique. En effet, sous ces conditions, des effets quantiques apparaissent, et la résistivité doit être calculée en considérant les interactions électron-électron.

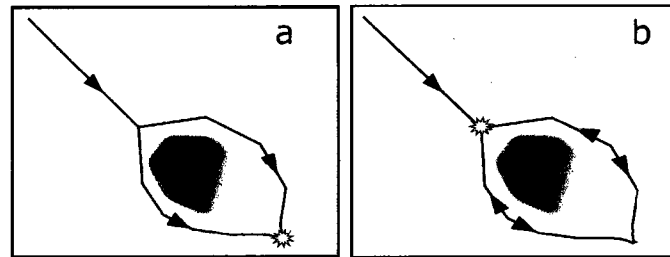


FIGURE 1.10 – a. Fluctuations universelles de conductance, l'interférence entre deux chemins cause les fluctuations. b. Localisation faible, due à l'interférence entre deux chemins égaux, mais de rotation opposée, on voit facilement comment ce type de localisation disparaît avec l'application d'un champ magnétique.

Les fluctuations universelles de conductance sont un effet quantique étudié depuis plusieurs dizaines d'années dans les systèmes mésoscopiques [21]. Elles surviennent en

transport dans les situations où la cohérence de phase est conservée. En utilisant l'image de parcours équivalents entre deux points, on peut concevoir que ces fluctuations résultent de l'interférence entre les fonctions d'onde des porteurs qui parcourent deux chemins formant une boucle (voir figure 1.10a). Il s'agit d'une image semblable à l'effet Aharonov-Bohm dans un anneau métallique. Pour une géométrie en anneau, plus parfaite que la boucle de la figure 1.10a, on peut imaginer un parcours passant par la moitié gauche de l'anneau, et un autre passant par la moitié droite. Sans champ magnétique perpendiculaire à l'anneau, ces deux parcours auront une différence de phase nulle et interféreront constructivement. En variant le champ magnétique, la différence de phase induite pour chaque parcours sera différente, et l'on observera des fluctuations dans la conductance, entre interférence constructive et destructive des fonctions d'onde des porteurs. Ces fluctuations auront une dépendance en fréquence suivant la taille de l'anneau [21].

La situation est semblable avec les fluctuations universelles de conductance. Cependant, au lieu d'un anneau métallique fabriqué sur l'échantillon, on doit imaginer deux parcours équivalents comportant plusieurs collisions, comme à la figure 1.10a. En faisant varier un champ magnétique perpendiculaire à l'échantillon, on observera des fluctuations de conductance de la même façon que pour l'anneau mentionné ci-haut. Si on applique cette interaction électron-électron au modèle de Drude, on voit que la somme algébrique n'est plus valable, puisque cette somme néglige l'interférence destructive ou constructive entre les fonctions d'onde de porteurs empruntant deux parcours équivalents. Il a été montré que l'amplitude e^2/h des fluctuations est constante, et ne dépend ni des impuretés dans l'échantillon, ni de la densité de porteur, ni du champ magnétique appliqué [22], d'où le nom *fluctuations universelles de conductance*. Suivant l'analogie avec l'effet Aharonov-Bohm, l'étude de la fréquence en champ magnétique des fluctuations universelles de conductance met en lumière le désordre présent dans un échantillon mésoscopique. On parlera de taille des fluctuations en parallèle avec l'image de l'anneau, et on utilisera ces fluctuations pour la caractérisation de nos échantillons de graphène.

Le graphène est un semi-métal, loin du point de Dirac, les fluctuations de conductance universelles dans les régions où la densité de porteurs est élevée sont comparables aux fluctuations étudiées dans les métaux [23]. Cependant, les fluctuations de conductance deviennent différentes près du point de Dirac [24].

1.3.2 Localisation Faible/Antilocalisation faible

La localisation faible peut être décrite à partir d'effets d'interférence quantique. Si on revient à l'analogie de l'anneau mentionné plus haut, la localisation faible correspond à l'interférence entre les fonctions d'onde des porteurs suivant deux parcours équivalents revenant à un même point, mais avec un sens de rotation opposé (voir figure 1.10b). Elle nécessite absolument symétrie sous inversion du temps. Il y a alors une correction négative à la conductance due à l'interférence entre ces deux parcours [22]. Évidemment, un champ magnétique appliqué induira une différence de phase entre les deux parcours, qui ne seront plus équivalents, supprimant du même coup la localisation faible. N'importe quel autre phénomène détruisant la symétrie sous inversion du temps aura le même effet. La situation est différente dans le graphène, où la localisation faible n'est pas seulement sensible aux phénomènes inélastiques de perte de phase, mais aussi aux phénomènes de diffusion élastiques [25–27]. Cela est dû à la chiralité des porteurs, expliquée à la section 1.2.2, qui est un nombre quantique additionnel provenant des deux sous-réseaux du graphène [28]. La diffusion élastique qui brise cette chiralité va aussi supprimer la localisation faible (puisque les deux parcours ne seront plus équivalents). Il existe cependant des phénomènes élastiques qui vont rétablir la localisation faible, on parle de diffusion inter-vallée, soit des phénomènes qui permettront l'interférence entre des porteurs de deux vallées (K et K') différentes [29]. McCann *et al.* [25] ont calculé la magnétoconductance moyenne ($\Delta\sigma(B)$) dans le graphène, de façon à établir une image de la localisation faible et de l'antilocalisation faible à l'aide des taux de diffusion inélastiques (τ_ϕ^{-1}), le taux de décohérence de phase et élastiques ($\tau_i^{-1}, \tau_s^{-1}, \tau_w^{-1}$), respectivement le taux de diffusion entre les vallées k et k' , le taux de diffusion par les défauts de surface, et le taux relié à l'anisotropie de la surface de Fermi dans l'espace des k . Ces auteurs obtiennent :

$$\frac{\pi h}{e^2} \cdot \Delta\sigma(B) = F \left(\frac{\tau_B^{-1}}{\tau_\phi^{-1}} \right) - F \left(\frac{\tau_B^{-1}}{\tau_\phi^{-1} + 2\tau_i^{-1}} \right) - 2F \left(\frac{\tau_B^{-1}}{\tau_\phi^{-1} + \tau_i^{-1} + \tau_*^{-1}} \right) \quad (1.33)$$

Le premier terme de cette expression contrôle la localisation faible, et les termes négatifs la localisation antifaible. Ici $\tau_B^{-1} = 4eB/\hbar$ avec e la charge élémentaire et B le champ magnétique appliqué et $\tau_*^{-1} = \tau_s^{-1} + \tau_w^{-1}$. L'antilocalisation faible provient de la phase de Berry de π que possèdent les porteurs dans le graphène [30]. La fonction d'onde de l'électron ou du trou acquiert cette phase quand le porteur complète une trajectoire

fermée. C'est cette phase de π qui détruit l'interférence entre les deux chemins équivalents, et résulte en une augmentation de la conductance. Cette source d'antilocalisation est différente des systèmes habituels dans le GaAs où l'antiphase provient des spins qui changent d'orientation en raison du désordre [21]. Dans le graphène, l'interaction spin-orbite est très faible en raison de la faible masse des atomes de carbone. Plusieurs groupes ont montré cette anti-localisation dans le graphène [12, 31] et montré qu'à faible densité électronique, elle est présente sur une mince plage de champs magnétiques jusqu'à de hautes températures.

1.3.3 Fluctuations provenant des flaques électron-trou

Le graphène étant un film d'un seul atome d'épaisseur, il constitue donc un matériau sujet aux distortions, qu'elles soient d'ordre thermique ou causées par le substrat. Près du point de Dirac, où il y a transition entre trous et électrons, les distortions mènent à des flaques d'électrons et de trous [32, 33]. Ces flaques d'électrons ou de trous agissent comme des impuretés en transport, elles induisent de la dispersion des porteurs et affectent ainsi la conductance [17, 24]. Lorsque la densité de porteurs est près du point de Dirac, mais majoritaire en trous, on s'attend à de petites flaques d'électrons. En appliquant un voltage positif, les flaques d'électrons devraient grossir et les flaques de trous rapetisser. Exactement au point de Dirac, les flaques devraient être sensiblement de la même taille. Puisque les fluctuations de conductance sont généralement indépendantes de la densité de porteurs, de telles fluctuations devraient seulement être observables dans un certain régime de faible densité.

1.4 Nanostructures

1.4.1 Boîtes quantiques

Une boîte quantique est un système à zéro dimension, soit un système où il y a quantification des vecteurs d'onde dans toutes les dimensions. Un tel système possède des niveaux énergétiques discrets, à la manière d'un atome, on les surnomme donc *atomes artificiels*. Afin de mieux comprendre le fonctionnement d'une boîte quantique latérale, qui est le type à l'étude ici, on utilisera l'approche électrostatique.

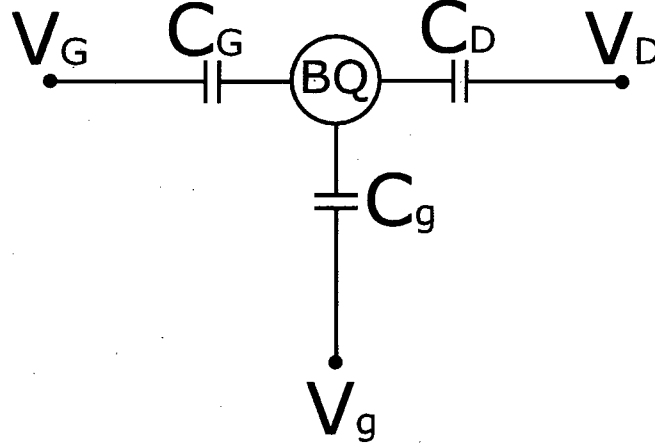


FIGURE 1.11 – Circuit équivalent pour une boîte quantique individuelle.

La figure 1.11 montre le circuit équivalent pour une boîte quantique (BQ) individuelle, couplée à deux réservoirs. V_G , V_D et V_g sont respectivement les potentiels des réservoirs gauche, droit, et de la grille de contrôle. Les capacités entre les réservoirs et la boîte sont C_G et C_D , et la capacité entre la grille de contrôle et la boîte est C_g . L'énergie selon ce modèle est alors :

$$E_{BQ}(N) = \frac{(-N|e| + C_G V_G + C_D V_D + C_g V_g)^2}{2C_\Sigma} \quad (1.34)$$

Avec $C_\Sigma = C_G + C_D + C_g$, N le nombre d'électrons dans la boîte et e la charge élémentaire. Quand le potentiel des réservoirs est à zéro, l'équation prend la forme :

$$E_{BQ}(N) = \frac{(-N|e| + C_g V_g)^2}{2C_\Sigma} \quad (1.35)$$

La figure 1.12 montre l'énergie d'addition de la boîte en fonction du voltage de grille, on voit que pour minimiser l'énergie, on doit ajouter ou enlever des électrons (trous) de la boîte lorsque le voltage de grille est varié. Cela est à l'origine du *Blocage de Coulomb*. À partir de l'Équation 1.34, l'énergie nécessaire pour ajouter un électron dans la boîte devient :

$$\mu_{BQ} = E(N) - E(N-1) = \left(N - \frac{1}{2}\right) \frac{e^2}{C_\Sigma} - e \frac{C_g V_g}{2C_\Sigma} \quad (1.36)$$

Lorsque la différence entre les potentiels des réservoirs tend vers zéro (régime linéaire), la condition pour avoir du transport à travers la BQ est d'aligner le potentiel de la boîte,

μ_{BQ} avec celui des réservoirs. On observe alors des pics de conductance durant le balayage à chaque fois qu'un niveau d'énergie de la boîte satisfait cette condition. La figure 1.12 illustre le phénomène du blocage de Coulomb. On voit que le courant est bloqué excepté lorsque les potentiels électrochimiques des deux réservoirs et de la boîte sont alignés, ou en fait lorsque N et $N+1$ sont dégénérés du point de vue énergétique.

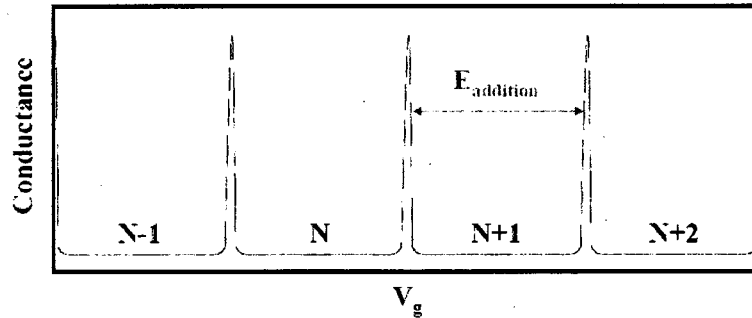


FIGURE 1.12 – Schéma montrant le principe du blocage de Coulomb, avec la séparation énergétique entre les pics. Figure reproduite avec l'accord de Louis Gaudreau.

Dans ce régime, l'énergie de charge de la BQ donne l'énergie d'addition d'un électron :

$$E_{\text{addition}} = \mu_{BQ}(N+1) - \mu_{BQ}(N) = \frac{e^2}{C_{\Sigma}} \quad (1.37)$$

On voit l'énergie d'addition à la figure 1.12, cette énergie nous permet donc de calculer la capacité de la BQ et donc sa taille selon un modèle capacitif simple. Lorsque plusieurs boîtes quantiques sont couplées capacitivement, ou par des barrières tunnel, il y aura une série de pics de blocage de Coulomb pour chacune des boîtes quantiques, et si elles sont fortement couplées à une grille, on pourra alors mesurer un diagramme de stabilité, où le balayage d'une grille permet de passer à travers les niveaux d'une boîte. Si ces boîtes sont bien découplées, le diagramme de stabilité résultant formera un quadrillé, comme on le voit à la figure 1.13. Évidemment, ce diagramme ne reflète pas rigoureusement la réalité, mais il montre bien le principe du diagramme de stabilité.

Dans le régime non-linéaire, soit lorsque la différence de potentiel entre les deux réservoirs est grande, la fenêtre de conduction s'élargit. Le courant peut alors traverser la boîte quantique quand μ_{BQ} se trouve à l'intérieur de cette fenêtre. La figure 1.14 montre la conduction différentielle dI/dV_{SD} à travers la boîte en fonction de la différence de

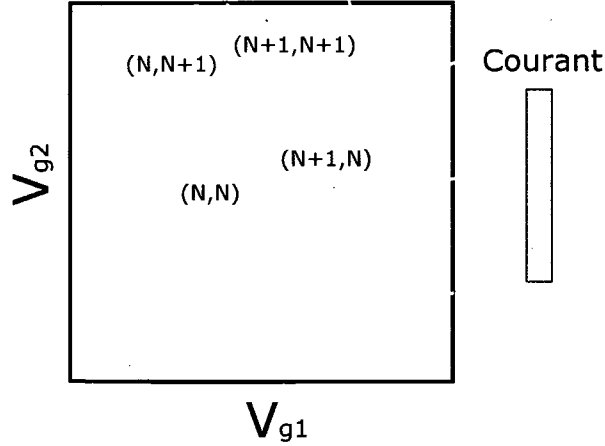


FIGURE 1.13 – Diagramme de stabilité pour deux boîtes quantiques, chacune fortement couplée à une grille de contrôle.

potentiel entre les réservoirs et d'un voltage de grille. Les régions blanches sont nommées diamants de Coulomb et elles correspondent aux valeurs pour lesquelles le courant est bloqué. Il peut y avoir du transport à travers le niveau fondamental dans les régions grises, mais aussi par des niveaux excités. Cependant, cela n'est pas le sujet principal de l'étude présentée ici.

Comme la différence de potentiel appliqué entre les réservoirs est une mesure d'énergie, il est possible d'en extraire l'énergie de charge de la BQ. Les pentes des deux côtés du diamant de Coulomb permettent de trouver les facteurs de conversion en énergie α et β appartenant respectivement à la grille de contrôle et le réservoir balayé (on considère un réservoir balayé alors que l'autre est mis à la Terre). On trouve ces facteurs en résolvant le système d'équations suivant :

$$\text{Pente1} : \mu_G - \mu_D = e\Delta V_{SD} = e\Delta V_g(-\alpha/\beta) \quad (1.38)$$

$$\text{Pente2} : \mu_G - \mu_D = e\Delta V_{SD} = e\Delta V_g\alpha/(1 - \beta) \quad (1.39)$$

L'étude des diamants de Coulomb est donc une mine d'information pour la caractérisation d'une boîte quantique.

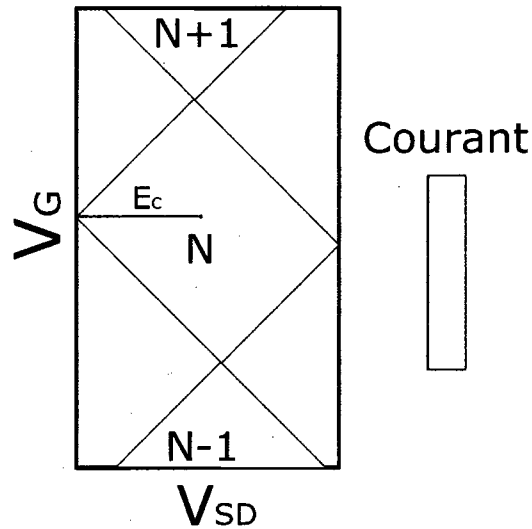


FIGURE 1.14 – Diamants de Coulomb pour une boîte quantique.

1.4.2 Ouverture d'un gap dans le graphène

Le graphène est un semiconducteur à gap nul, le défi à surmonter pour la fabrication de transistors de graphène est donc l'ouverture d'un gap. Dans les gaz d'électrons bidimensionnels, on peut appliquer un voltage sur une grille électrostatique, de manière à fermer tous les canaux de conduction. Cependant, dans le graphène, la présence de l'effet tunnel de Klein empêche cette solution de fonctionner. On a aussi vu plus haut que la conductivité minimale du graphène est toujours non nulle, à cause du mélange des porteurs et des impuretés dans le substrat. L'une des façons d'ouvrir un gap dans le graphène est de découper des nano-rubans [7, 10]. Il a été montré que la grandeur du gap résultant diminue avec la largeur des rubans comme $E_g = \alpha/W$, avec W la largeur du ruban et α une constante entre 0.2 et 1.5 eV/nm selon le modèle utilisé et l'orientation cristallographique [7]. On utilisera ce gap pour fabriquer des transistors à un électron, ou des systèmes de boîtes quantiques dans le graphène.

1.4.3 Formations de boîtes quantiques dans les constriction

Stampfer *et al.* [7] ont démontré qu'à l'intérieur du gap formé dans un nano-ruban, il existe des résonances de transmission et que ces résonances sont dues au blocage de Coulomb résultant de la formation de points quantiques dans les constriction. En effet, autour d'une certaine densité de porteurs, le désordre dans le potentiel du nano-ruban

permet la formation de points quantiques, comme montré à la figure 4.2. La même équipe a aussi montré que l'on pouvait utiliser l'espace en énergie entre ces pics de transmission comme barrière de potentiel [8]. Il est donc possible de fabriquer une boîte quantique dans le graphène. On devra alors utiliser une île de graphène comme point quantique, et deux constriction comme barrières de potentiel.

Comme il a été mentionné plus haut, l'effet tunnel de Klein empêche d'installer des grilles électrostatiques par-dessus le graphène pour contrôler le transport. On utilisera alors des grilles latérales fabriquées à même la feuille de graphène (voir figure 2.6) pour varier localement la densité dans les constriction et dans l'île elle-même afin d'obtenir une boîte quantique fonctionnelle ayant les mêmes caractéristiques que les boîtes quantiques décrites plus haut.

1.4.4 Qubits de spin

Lorsque l'on utilise la charge d'un système comme bit en informatique, cette charge peut prendre seulement deux valeurs, soit 0 ou 1. Ainsi, pour former un nombre entre 0 et 255 par exemple, on doit utiliser 8 de ces bits, qui ne formeront qu'un nombre à la fois. Un qubit est une superposition quantiques de deux états de base, les kets $|0\rangle$ et $|1\rangle$. À chaque instant, le qubit occupe donc *tous* les états possibles simultanément, son état est donc $\alpha |0\rangle + \beta |1\rangle$. Quand on prend la mesure du qubit, on aura donc une probabilité $|\alpha|^2$ de mesurer l'état $|0\rangle$ et une probabilité $|\beta|^2$ de mesurer l'état $|1\rangle$. Dans le cas des qubits de spin, ce sont les spin up et down qui occupent les deux états $|0\rangle$ et $|1\rangle$. L'avantage de tels qubits est qu'ils satisfont aux critères de DiVincenzo [34] pour la fabrication d'un ordinateur quantique, et qu'ils sont étudiés depuis plusieurs années.

Chapitre 2

Aspects expérimentaux

2.1 Fabrication

2.1.1 Préparation du substrat, exfoliation et identification du graphène

Le graphène, n'a pu être isolé et contrôlé sur un substrat d'oxyde de silicium qu'en 2004 [9]. La technique d'exfoliation est simple; il s'agit d'utiliser du graphite de qualité (par exemple HOPG, Natural Graphite), décoller une feuille à l'aide de ruban gommé, puis successivement enlever des couches avec plus de ruban gommé, avant de déposer sur un substrat de SiO_2 .

La révolution provoqué par l'équipe de Geim et Novoselov provenait de la capacité à voir cette couche monoatomique à l'oeil nu, ou avec un microscope optique lorsque les morceaux sont trop petits. En choisissant bien l'épaisseur d'oxyde à la surface du silicium à l'aide d'un modèle basé sur la loi de Fresnel, on peut observer le graphène dans le visible. La figure 2.1 montre les épaisseurs optimales.

On se sert aussi d'autres techniques pour identifier le graphène. Le microscope à force atomique est utile, mais peut potentiellement endommager le graphène et est plutôt lent. On utilise donc la détection par diffusion Raman, qui consiste à éclairer une partie de l'échantillon avec un laser, et de détecter la lumière réémise. Des processus de diffusion inélastique par des modes vibrationnels dans la structure modifieront la fréquence de la lumière réémise. Ferrari *et al.* [6] ont démontré que le graphène avait une signature bien particulière, que l'on peut voir à la figure 2.2. En observant la bande 2D des échantillons que l'on utilisera, on peut savoir avant mesures en transport que le graphène est bien

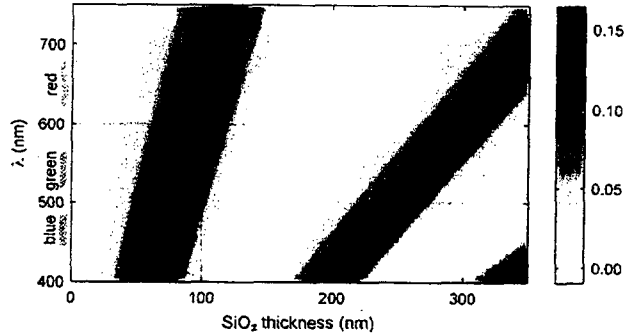


FIGURE 2.1 – Contraste en fonction de l'épaisseur de SiO_2 et de la longueur d'onde incidente. Image tirée de [5]

une monocouche, puisque la signature Raman des bicouches est différente. Le pic 2D provient de la création d'un phonon dans la plus haute branche optique du graphène, près du point K. Or, pour une monocouche, ce phonon ne donne lieu qu'à un seul pic (une seule possibilité de phonon à une énergie de Fermi donnée), tandis qu'il y a deux possibilités de phonons d'énergie semblable, donc deux pics pour une bicouche, Ferrari *et al* ont étudié ce phénomène en profondeur [6].

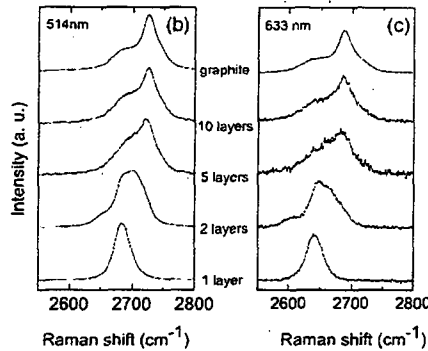


FIGURE 2.2 – Spectre Raman du graphène près du pic 2D selon le nombre de couches, image tirée de [6]

Pour les travaux présentés ici, tous les échantillons ont été fabriqués sur du silicium dopé n d'une épaisseur d'environ 2 mm ayant une épaisseur d'oxide de 300 nm. On prépare les substrats en exposant un côté à une solution d'acide fluorhydrique à 1% pendant environ une minute, ce qui a pour effet d'enlever complètement le SiO_2 de ce côté, permettant ainsi la métallisation Cr/Au pour bien établir le contact avec la grille globale.

Par la suite, on expose l'autre côté de façon à conserver une épaisseur d'environ de

SiO₂ de 300 nm, puis on dépose des marques en forme de croix pour aider à la localisation des feuillets de graphène. Il est important d'avoir une épaisseur d'oxide de 300 nm pour pouvoir facilement identifier le graphène en lumière visible, comme montré à la figure 2.1. Enfin, on exfolie du graphène par-dessus l'oxide et les marques en croix par exfoliation micromécanique.

2.1.2 Déposition des grilles et fabrication de nanostructures

Après l'identification du graphène, il faut le graver pour fabriquer des nanostructures et déposer les grilles de contrôle. Lors de plusieurs essais, sur des échantillons d'essai de matériaux de grille, nous avons établi que les grilles offrant la plus faible résistance de contact sont des grilles Pd/Au.

On commence donc par déposer de la résine (*PMMA*) par enduction centrifuge (*spin coating*) à 5000 trs/min pour 30 secondes, avant de la cuire à 180 degrés Celsius pour 15 minutes. Par la suite, on expose le masque préparé pour les grilles fines au faisceau d'électrons, puis on développe dans une solution d'Isopropanol (IPA) avant de rincer. On dépose 5nm de Pd puis 10nm d'Or par évaporation à faisceau d'électrons, puis on enlève la résine restante dans une solution chauffée de N-Méthylpyrrolidone (NMP) avant de rincer à l'acétone puis de sécher à l'azote.

On répète le procédé pour la déposition des plus gros contacts qui lieront les grilles fines aux fils d'or (*bonding wires*). Finalement, on grave les nanostructures. On dépose encore une fois de la résine par enduction centrifuge, elle est cuite, puis on expose le masque préparé par CAD au faisceau d'électrons. Par la suite on développe, puis on grave la constriction ou le point quantique dans un graveur à plasma O₂ de 50W pour environ 30 secondes. La dernière étape consiste à monter l'échantillon sur un porte-échantillon et à faire des pontages à ultrasons pour relier les grilles au porte-échantillon. La figure 2.3 montre un échantillon terminé.

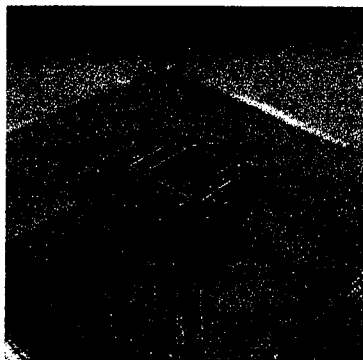


FIGURE 2.3 – Photographie d'un échantillon terminé monté sur son support

2.2 Montage expérimental

2.2.1 Modification et installation du cryostat

L'étude d'échantillons de graphène demande des conditions bien particulières, notamment l'application d'un champ magnétique élevé, d'un voltage de grille de plusieurs dizaines de volts, de basses températures et de mesures en continu pendant plusieurs heures. Au début de ces travaux, nous avons reçu un cryostat Janis à température de base de 1.2 K avec un réservoir d'Hélium comportant un voile d'azote liquide. Ceci permet de conserver l'hélium liquide pendant de très longues périodes (près de 4 jours). La figure 2.4 est un schéma du cryostat.

Afin d'adapter les échantillons utilisés par notre équipe et par une autre équipe utilisant le cryostat, nous avons fabriqué un nouveau porte-échantillons, visible à la figure 2.5. On a aussi monté un câble coaxial permettant d'appliquer des voltages de grille globale de quelques dizaines de volts, sans crainte d'un couplage capacitif avec les minces fils reliant les grilles de contrôle.

2.2.2 Techniques en courant direct

Les mesures dans le graphène consiste généralement à appliquer une différence de potentiel entre une source et un drain, et à mesurer le courant qui passe en fonction de paramètres externes (champ magnétique, voltage de grille globale, grilles latérales, température). Deux techniques ont été utilisées pour les mesures présentées dans cet ouvrage. La première méthode est l'utilisation d'un pont de résistances Oxford AVS-47. La figure 2.6a est un schéma du montage. Cette méthode a été utilisée pour toutes les

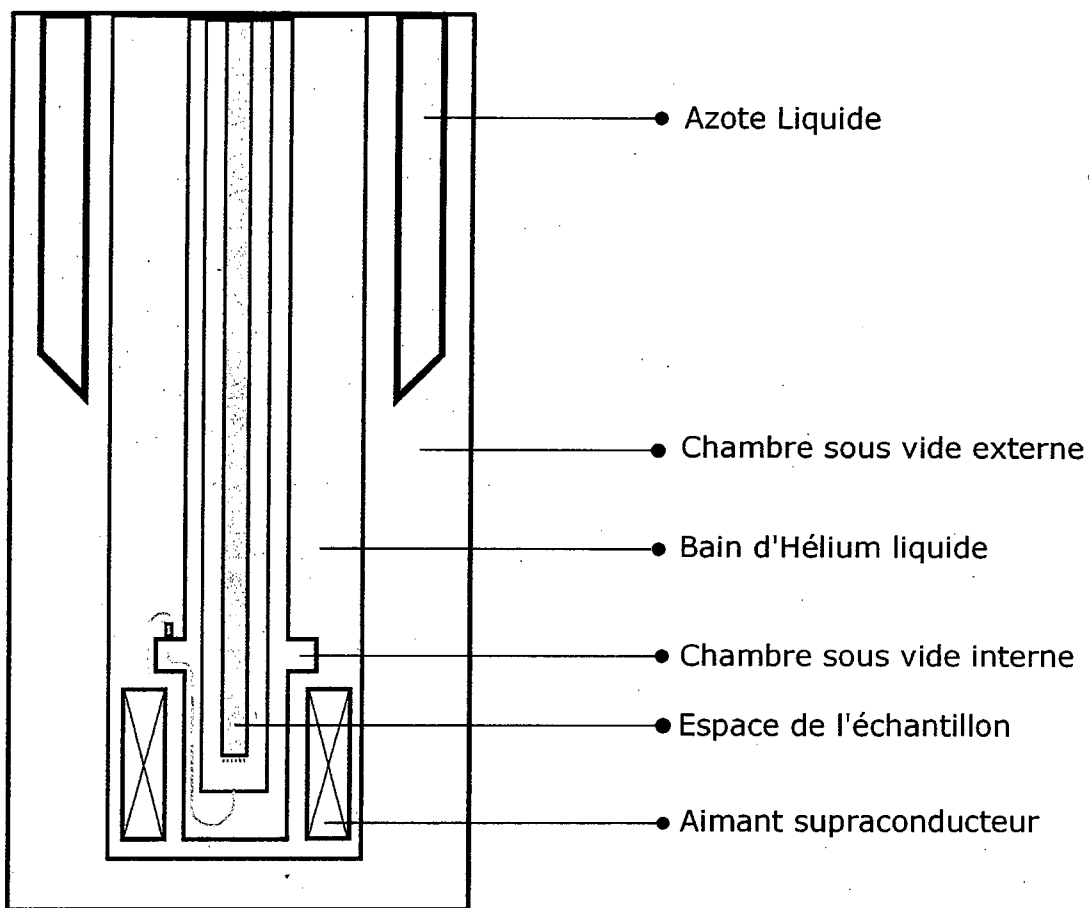


FIGURE 2.4 – Schéma du cryostat utilisé, on voit le voile d'azote liquide et les espaces pouvant contenir de l'hélium liquide.

mesures présentées au chapitre 3, la configuration montrée à la figure 2.6a est une configuration xx, tandis qu'en inversant $V+$ et $I+$ on obtient une configuration xy.

L'autre technique utilisée est présentée à la figure 2.6b, soit l'utilisation d'une source de voltage Agilent E5270B pour appliquer une différence de potentiel et des voltages de grilles. La différence de potentiel appliquée est divisée par 200 pour augmenter la ratio signal/bruit. Le voltage de grille globale est multiplié par 100 avec l'aide d'un amplificateur T-Rek 507750. Le courant est ensuite mesuré par un préamplificateur Ithaco 1211. Dans les deux cas, on utilise un multimètre Keithley 6517 pour lire l'information provenant du pont de résistances ou du préamplificateur. Par mesure de sécurité, une résistance de $1M\Omega$ a été montée dans le circuit d'alimentation des grilles afin d'éviter

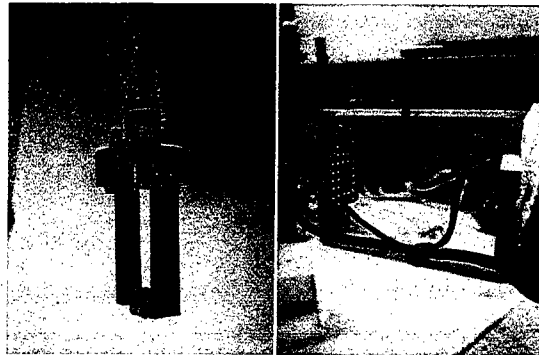


FIGURE 2.5 – Gauche : Support à échantillons avant la modification. Droite : Nouveau support à échantillon fabriqué pour être compatible avec deux types d'échantillons et câble coaxial pour l'application de hauts voltages de grille.

les forts courants en cas de court-circuit au niveau du dispositif. On installe aussi un filtre RF à la sortie de l'amplificateur T-Rek pour augmenter le ratio signal/bruit. Le courant vers l'aimant supraconducteur de 10T est appliqué par un Oxford IPS 120-10, et tout l'équipement électronique est contrôlé par un programme d'acquisition LabVIEW.

2.3 Mesures préliminaires

2.3.1 Courbe de Dirac et nettoyage thermique

La première mesure à effectuer sur un échantillon de graphène est une courbe de Dirac, soit une mesure de la résistance de l'échantillon en fonction de la densité de porteurs. Cela permet de vérifier que les contacts et que la grille globale fonctionnent bien. La figure 2.7 montre les courbes de Dirac prises de différentes manières sur un échantillon test. Cet échantillon provient du groupe de Josh Folk, à l'Université de la Colombie-Britannique. On peut voir qu'à 300K, il y a déjà manifestation de l'effet de champ ambipolaire, et que cela devient encore plus évident à basse température. Cependant, le point de Dirac se trouve à très haut voltage de grille globale, en raisons de dopants de surface, notamment des molécules d'eau [35]. Nous avons développé une méthode pour le ramener vers 0 volts. Il a été démontré que c'est la présence de dopants en surface du graphène, ou encore entre le graphène et le substrat qui cause ce déplacement du point de Dirac [36]. En chauffant l'échantillon, il est donc possible d'éliminer ces dopants et ainsi nettoyer le graphène. Une équipe a aussi montré que chauffer le graphène en passant un fort courant

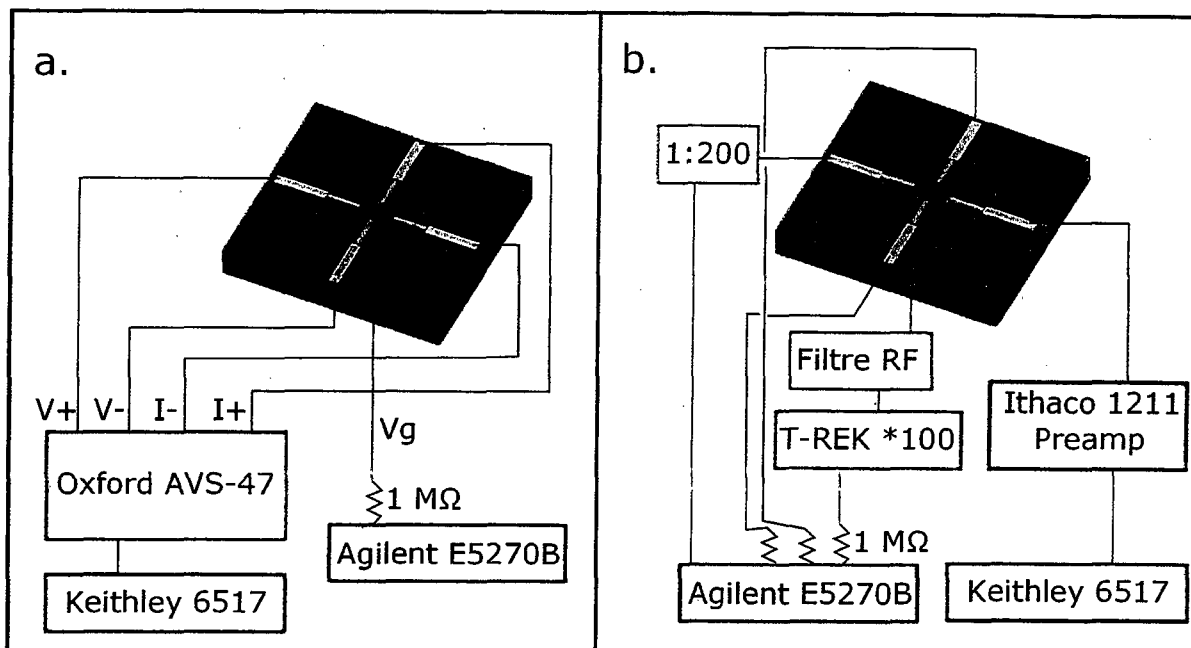


FIGURE 2.6 – Schéma des différentes configurations de mesure. a. Branchement pour un échantillon à 4 contacts ohmiques. b. Branchement pour une nanostructure à grilles latérales. Dans les 2 cas, le fil rouge est le voltage de grille globale.

à travers donne le même résultat [35].

La méthode consiste à placer l'échantillon dans une atmosphère d'hélium, puis de chauffer l'extérieur de l'espace d'échantillon à l'aide d'un séchoir industriel. On mesure la température avec une sonde kelvinox ; lorsque l'échantillon atteint environ 120 degrés Celsius, on pompe l'atmosphère d'hélium en entraînant ainsi les impuretés chargées (qui sont principalement de l'eau). En gardant le graphène chaud et sous vide pendant environ 15 minutes, on arrive à replacer le point de Dirac près de 0V, comme en fait foi la figure 2.7. La courbe de Dirac en conductivité caractérisant l'échantillon étudié au chapitre 3, qui lui, a été fabriqué au CNRC, est montrée à la figure 2.8, dans ce cas particulier, le pic de Dirac se trouve près de 0V, il y a donc peu d'impuretés chargées, et aucun nettoyage thermique de l'échantillon n'est nécessaire. La largeur à mi-hauteur du pic en résistance est d'environ 7V, ce qui est comparable aux valeurs retrouvées dans la littérature [3]. Toutes ces mesures ont été prises à 4 terminaux, de manière à éliminer la résistance de contact.

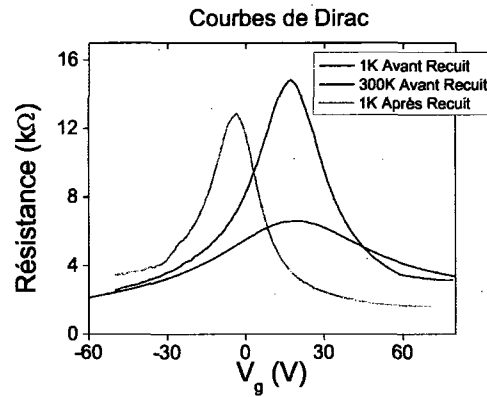


FIGURE 2.7 – Courbes de Dirac; Vert : Courbe prise à 300K, avant nettoyage thermique. Bleu : Courbe prise à 1K, avant nettoyage thermique. Orange : Courbe prise à 1K, après nettoyage thermique.

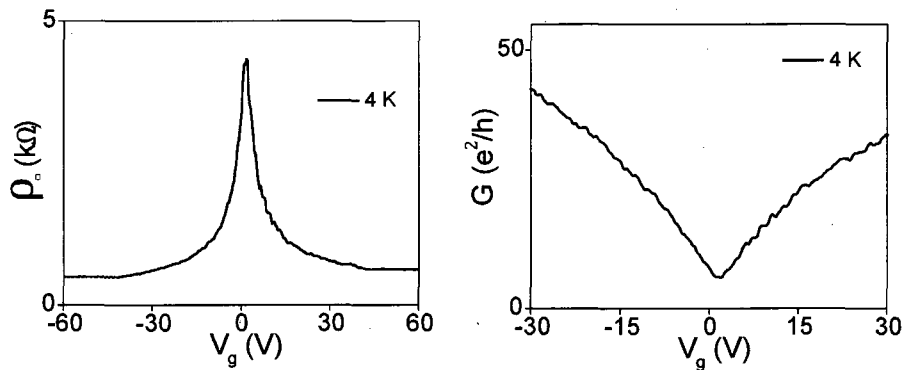


FIGURE 2.8 – Gauche : Effet de champ ambipolaire dans le graphène, on voit que le maximum de résistance n'est pas infini, mais est environ 4.5 kΩ. Droite : Conductivité à partir de la partie gauche en $\sigma = 1/\rho$.

2.3.2 Mobilité et densité de porteurs

Ayant mesuré une courbe de Dirac, on peut commencer à caractériser l'échantillon. Il est notamment possible de connaître la densité de porteurs à l'aide de l'Équation 1.27 du chapitre précédent. On peut aussi mesurer la mobilité des porteurs à différentes densités. Sachant que dans le régime linéaire de conductance, on a $\sigma = \mu n e$, et connaissant la densité de porteurs selon la relation calculée à partir de l'Équation 1.27, on peut facilement extraire la mobilité des porteurs. La figure 2.9 montre la mobilité calculée en fonction de la densité pour l'échantillon qui sera étudié au chapitre 3.

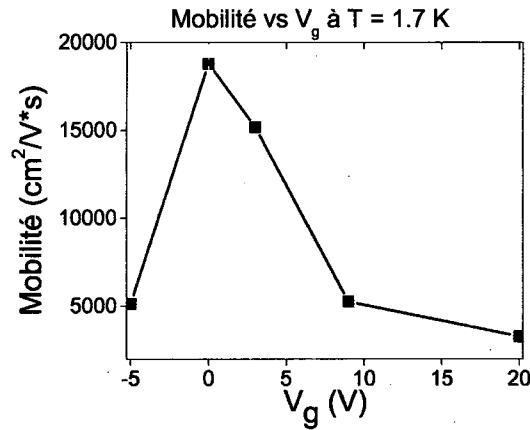


FIGURE 2.9 – Mobilité des porteurs à différentes densités pour l'échantillon qui sera étudié au chapitre 3. Contrairement aux gaz 2D d'électrons, la mobilité est maximale lorsque la densité de porteurs est faible.

2.3.3 Effet Hall quantique

On a vu au chapitre 1 que l'effet Hall quantique se manifeste de manière bien particulière dans le graphène. En effet, la séquence des plateaux dans la résistance transverse est caractéristique pour la monocouche de carbone. Or, il y a deux façons de mesurer l'effet Hall quantique. Il est possible d'appliquer un champ magnétique constant et de varier la densité de porteurs, de façon à faire passer le niveau de Fermi à travers des niveaux de Landau séparés mais fixes, ou encore de garder le niveau de Fermi constant et de varier le champ magnétique pour déplacer les niveaux de Landau. La figure 2.10 montre les deux techniques pour l'échantillon du chapitre 3. On peut voir que la séquence d'une monocouche de graphène est bien visible, on a alors confirmation que l'échantillon à étudier plus en détail a des grilles fonctionnelles, est une monocouche et, par sa courbe de Dirac bien centré à 0, contient peu d'impuretés chargées. De plus, malgré sa géométrie qui n'est pas celle d'une barre de Hall idéale, la résistance longitudinale est bien découplée de la résistance transverse.

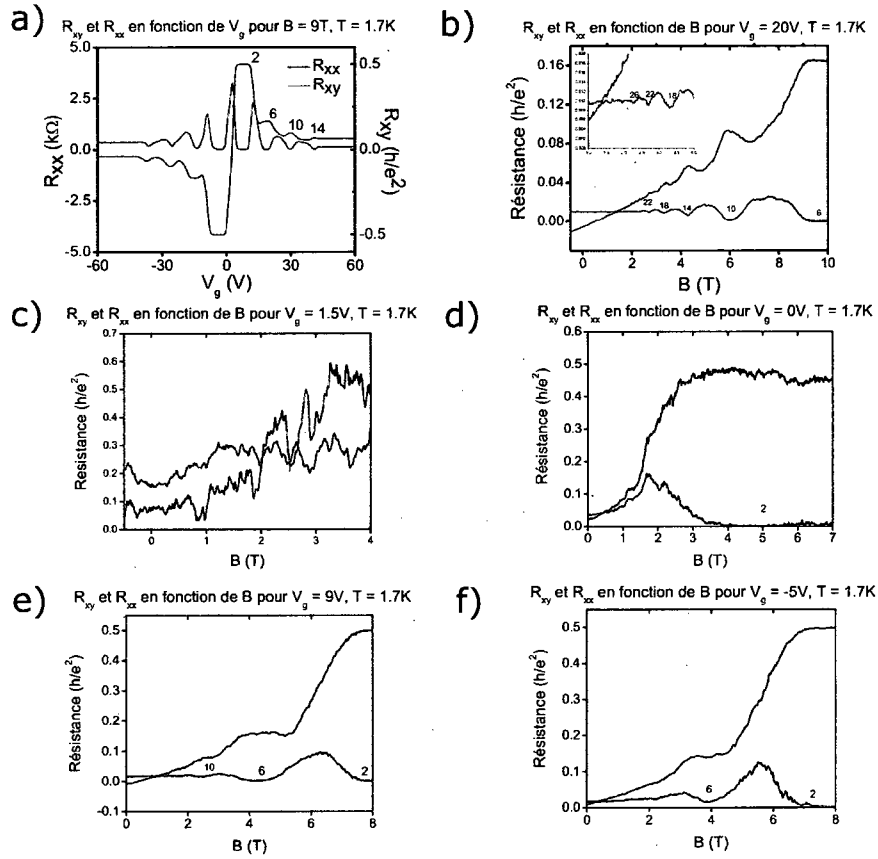


FIGURE 2.10 – a. Effet Hall Quantique dans le graphène à champ magnétique fixe, avec variation de l'énergie de Fermi. b. EHQ à énergie de Fermi fixe en variant le champ magnétique. Dans tous les deux cas la résistance longitudinale est en rouge et la résistance transverse en noir. On peut voir la séquence de plateaux correspondant à une monocouche de graphène. Ici le voltage de grille est 20V, soit haute densité électronique. c. Même courbe, mais au point de Dirac, $V_g = 1.5V$. d. $V_g = 0V$, soit près du point de Dirac. e. et f. sont respectivement 9V et -5V, soit à distance égale du point de Dirac dans le régime d'électrons et de trous.

Chapitre 3

Fluctuations de conductance dans le graphène

3.1 Motivations

On a montré au chapitre 1 que la formation de boîtes quantiques dans le graphène provient des fluctuations de conductance. C'est pourquoi ce chapitre sera concentré sur l'étude des différents types de fluctuations de conductance dans le graphène et sur la caractérisation du désordre dans ce matériau. On pourra établir la taille de ces fluctuations et la possibilité de les contrôler pour former des boîtes quantiques, menant éventuellement à des qubits de spin dans le graphène.

3.2 Dépendance en température

Il a été prouvé que les effets quantiques persistent jusqu'à haute température dans le graphène. Un groupe de Manchester et Columbia a notamment montré que l'effet Hall quantique est observable jusqu'à température de la pièce à des champs magnétiques suffisamment élevés [3]. Il est donc naturel d'étudier le comportement en température des fluctuations universelles de conductance dans le graphène. Puisque ces fluctuations ont une origine quantique, elles devraient disparaître en augmentant la température, et ce, même à température relativement basse. Par exemple, dans les gaz 2D d'électrons dans le GaAs, elles ne sont plus observables à quelques Kelvin. Le graphène étant un matériau bien particulier, on peut s'attendre à toute autre chose.

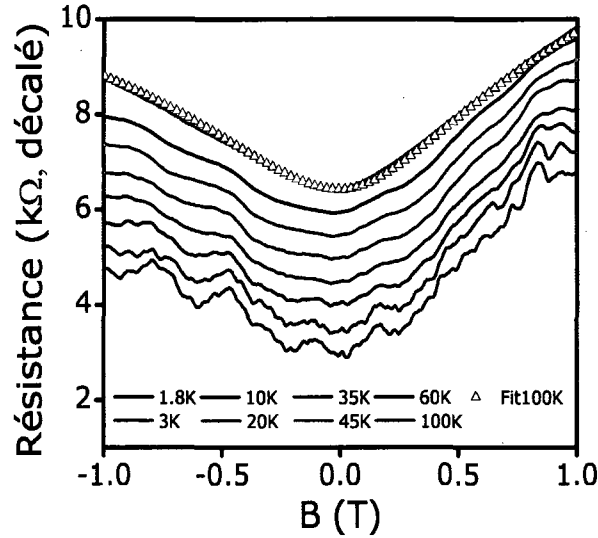


FIGURE 3.1 – Résistance longitudinale en fonction du champ magnétique à différentes températures. Les oscillations sont présentes jusqu'à 60 K. La courbe à 1.8K est à ses valeurs actuelles, les autres sont chacune décalées de 500Ω .

La figure 3.1 montre la résistance longitudinale (R_{xx}) de l'échantillon en fonction du champ magnétique près du point de neutralité de charge. On peut voir que les fluctuations subsistent jusqu'à 60 Kelvin. Elles gardent le même motif lors du réchauffement, mais le motif change totalement après un cycle à plus de 100K. Les courbes ne sont pas totalement symétriques autour du zéro champ magnétique en raison de l'asymétrie des contacts. Des mesures effectuées avec les sondes de voltage et de courant placées dans une géométrie différente confirment la présence de ces fluctuations et l'asymétrie provenant de la géométrie.

La figure 3.2 montre les courbes de la figure 3.1 auxquelles on a soustrait les valeurs de la courbe mesurée à 100K, qu'on l'on étudiera plus en détail à la section suivante. On peut voir les fluctuations de conductance directement, ce qui permet de constater que l'amplitude diminue rapidement en fonction de la température, mais que la forme des fluctuations reste la même. Ceci confirme que le profil de potentiel varie très peu lors du réchauffement de l'échantillon jusqu'à 60K. À partir d'une fonction d'auto-corrélation $G(B)G(B+\Delta B)$ aussi utilisée par un groupe de l'Illinois [12], on calcule la longueur de cohérence de phase en fonction de la température. La longueur de cohérence de phase $L_\phi = (2.4h/eB_c)^{1/2}$ avec B_c la demi-largeur à mi-hauteur de la fonction d'autocorrélation. Le résultat est montré à la figure 3.2.

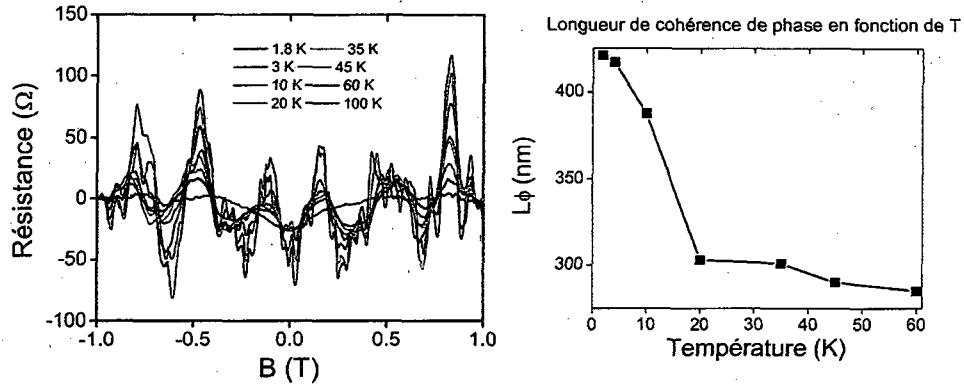


FIGURE 3.2 – Gauche : Résistance longitudinale en fonction du champ magnétique pour différentes températures, une résistance de fond a été soustraite pour extraire l'amplitude des fluctuations de conductance. Droite : Longueur de cohérence de phase en fonction de la température, calculés à partir d'une fonction d'autocorrélation.

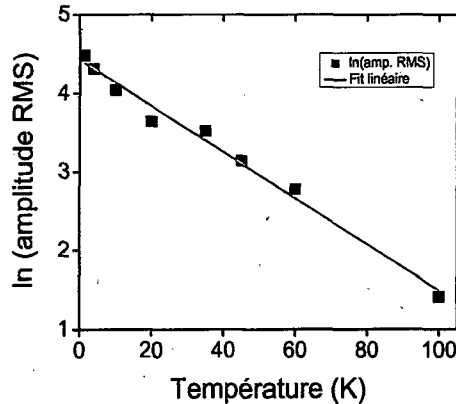


FIGURE 3.3 – Logarithme naturel des amplitudes RMS des fluctuations en fonction de la température.

À la figure 3.3, on calcule le logarithme naturel de l'amplitude RMS des fluctuations de la figure 3.2. On remarque qu'une régression linéaire convient bien à ces données, prouvant que l'amplitude diminue exponentiellement avec la température. Cette diminution exponentielle couplée au changement de forme des fluctuations, donc à une redistribution spatiale des impuretés après un cycle thermique, confirme leur origine quantique [37]. Il reste tout de même fascinant d'observer à quel point les effets quantiques sont présent dans le graphène à haute température malgré une mobilité des porteurs plutôt basse en comparaison aux gaz 2D d'électrons (30 000 contre près de 1 000 000).

3.3 Creux dans la résistance

En poussant un peu plus loin l'étude de la figure 3.1, on voit un creux dans la résistance longitudinale, à faibles champs magnétiques. Ce creux garde la même forme en changeant la température, et subsiste toujours lorsque les fluctuations de conductance ont disparu. La largeur en champ magnétique et la présence du creux à haute température écarte la possibilité qu'il soit dû à l'antilocalisation faible, qui devrait apparaître jusqu'à des températures du même ordre que les fluctuations universelles de conductance. Ce creux est donc dû à un autre phénomène. Cho et Fuhrer [38] ont montré qu'il provient du mélange électrons-trous au point de Dirac, où la mobilité semble plus élevée que ce que l'effet de champ ambipolaire devrait suggérer. Effectivement, des mesures à plus haute densité de porteurs confirment qu'il n'apparaît pas ailleurs qu'autour du point de neutralité de charge (PNC), qui est l'endroit où la concentration en trous et électrons est égale. La présence de flaques d'électrons et de trous ayant sensiblement la même densité et sensiblement la même mobilité donne naissance à ce minimum de résistance, puis la résistance augmente avec le changement de densité relative entre les deux types de porteurs, pour ensuite devenir linéaire en densité. L'équation 3.1, décrivant ce creux, est tirée de Cho et Fuhrer [38] :

$$\rho_{xx}(B) = \left(\sigma_{xx,1} + \frac{\sigma_{xx,0}}{[1 + (\mu B)^2]^{1/2}} \right)^{-1} \quad (3.1)$$

Cette équation convient très bien aux données, comme on peut le voir à la figure 3.1, les triangles sont calculés avec l'Équation 3.1, et la courbe est la résistance à 100 K. On utilise les paramètres $\sigma_{xx,1} = 2.68(1.90)e^2/h$, $\sigma_{xx,0} = 6.17(6.95)e^2/h$ et $\mu = 2.63(2.93)\text{m}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ où $\sigma_{xx,1} + \sigma_{xx,0}$ est la conductivité minimale, $\sigma_{xx,1}$ est un terme phénoménologique provenant du fait que les concentrations et mobilités des électrons et trous ne sont pas strictement égales, et que les contacts ne sont pas placés dans une configuration en barre de Hall parfaite. Les termes entre parenthèses sont utilisés pour calculer le côté gauche de la courbe, puisqu'elle est asymétrique.

La figure 3.4 montre la présence de ce creux en variant la densité de porteurs, on calcule que ce creux existe pour une densité totale de $2 \cdot 10^{11}\text{cm}^{-2}$. Cela est du même ordre que les fluctuations Hall quantiques que l'on étudiera un peu plus tard

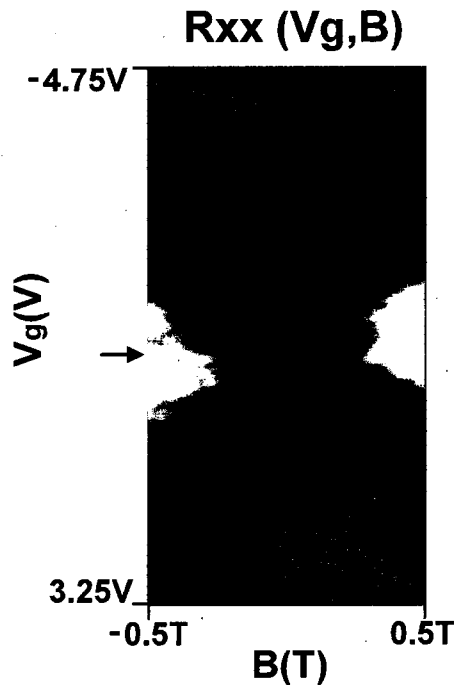


FIGURE 3.4 – Résistance de l'échantillon en fonction du voltage de grille et du champ magnétique, on peut voir un creux près du PNC. La flèche indique la position du PNC.

3.4 Fluctuations à haute densité

Avant de s'intéresser de façon plus détaillée aux fluctuations autour du point de neutralité de charge, il convient d'étudier les fluctuations universelles de conductance à haute densité. Dans ce cas, on s'est intéressé aux fluctuations entre des densités de porteurs de 1.89 et 1.96 cm^{-2} , soit un voltage de grille globale de 19 à 20 V . Les figures 3.5 et 3.6 montrent ces fluctuations et leur dépendance en champ magnétique et en densité, la figure 3.6 montrant les fluctuations moins des valeurs lissées, de façon à mieux observer les oscillations. On calcule l'amplitude des fluctuations comme étant environ 2% de la conductance totale. De plus, on observe que ces fluctuations évoluent relativement lentement en fonction de la densité de porteurs. Ce sont donc des fluctuations universelles de conductance typiques, comme expliqué au chapitre 1.

La figure 3.7 présente la transformée de Fourier des fluctuations de la figure 3.6, montrant une grande variété de tailles de fluctuations. Cette grande variété de tailles de fluctuation provient des multiples centres de diffusion dans l'échantillon, chacun provoquant l'interférence de deux chemins à des champs magnétique différents, comme expliqué

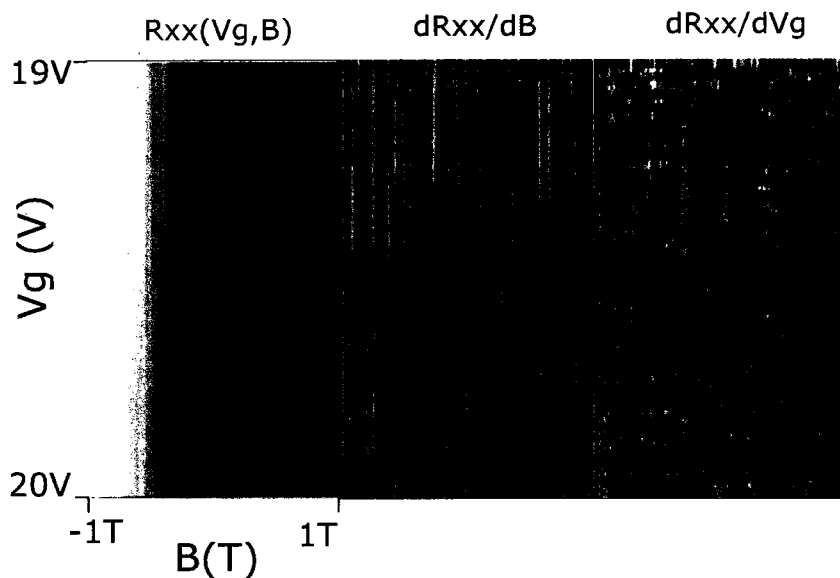


FIGURE 3.5 – Résistance en fonction du voltage de grille et du champ magnétique dans la région à haute densité d'électrons, on observe des fluctuations universelles de conductance variant lentement en fonction de la densité. Le graphique du centre est la dérivée en fonction du champ magnétique, et celui de droite la dérivée en fonction de la densité de porteurs.

au chapitre 1.

3.5 Fluctuations près du point de neutralité de charge

Ayant caractérisé l'échantillon à haute densité, on procède à son étude près du point de neutralité de charge, là où le mélange d'électrons et de trous induit une physique extrêmement riche. À la figure 3.8, on trace la résistance longitudinale en fonction de la densité de porteurs et du champ magnétique, ainsi que sa dérivée en fonction de ces deux quantités. Ici les fluctuations de conductance sont totalement différentes de celles de la section précédente. On voit qu'elles évoluent très rapidement en fonction de la densité, et qu'elles ont une période beaucoup plus longue en champ magnétique.

La figure 3.9 (haut) montre ces fluctuations moins un fond constant, de façon à isoler les oscillations. Ce graphique est étendu jusqu'à $\pm 1T$, et l'on y voit des lignes diagonales qui seront étudiées un peu plus tard. À partir de ces données, on trouve que ces fluctuations ont une amplitude de 6% de la conductance totale, ce qui est plus élevé que le 2% trouvé à haute densité électronique. On peut alors s'interroger sur l'origine de telles fluctuations. Puisqu'elles ne se produisent qu'autour du point de neutralité de

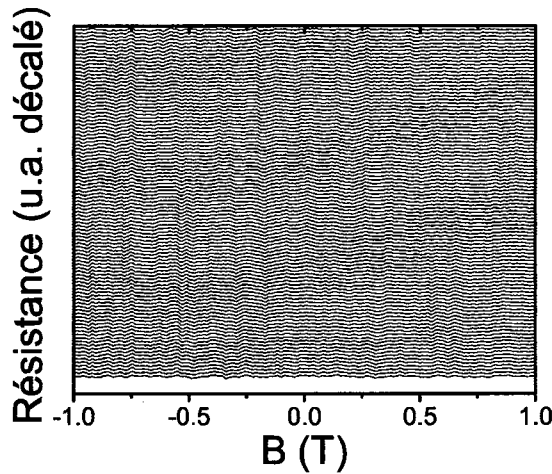


FIGURE 3.6 – Diagramme en chute d'eau des fluctuations universelles de conductance, chaque courbe correspondant à un voltage de grille différent entre 19 et 20 V.

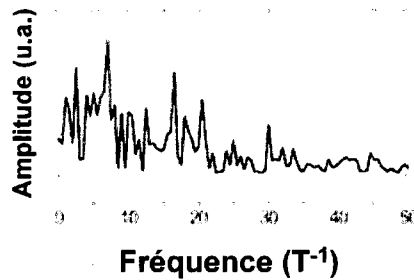


FIGURE 3.7 – Transformée de Fourier des fluctuations de conductance universelles, montrant la diversité de celles-ci.

charge, on peut croire qu'elles proviennent des flaques de trous et d'électrons. En effet, si chaque flaque d'un type de porteur agit comme centre de diffusion, on s'attendra à de telles fluctuations. On trouve, à la figure 3.9 (bas), les transformées de Fourier des différentes courbes de la figure 3.9 (haut). On a limité les transformées de Fourier aux régions comprises entre $\pm 0.5T$, de façon à ignorer les lignes diagonales dont l'origine sera élucidée à la section suivante.

On constate que les fréquences présentes sont nombreuses loin du PNC, mais ne semblent être qu'un seul pic au point de neutralité de charge (PNC). Ce résultat est en accord avec la théorie présentée, soit qu'au PNC les flaques de trous et d'électrons sont de tailles similaires, mais qu'en augmentant la densité électronique (ou de trous), les flaques d'électrons (de trous) grossissent alors que les flaques de trous (d'électrons) rapetissent,

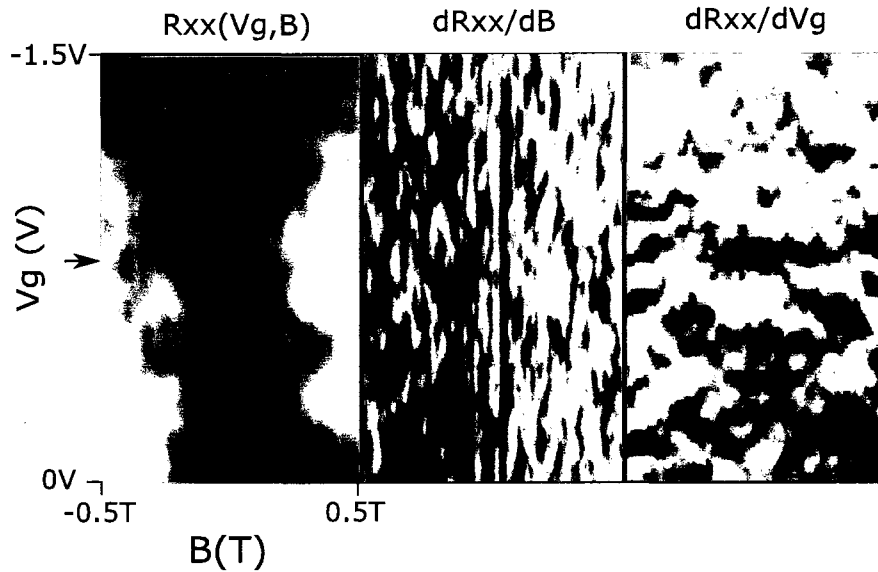


FIGURE 3.8 – Résistance en fonction du voltage de grille et du champ magnétique autour du PNC, le graphique du centre est la dérivée en fonction du champ magnétique, et celui de droite la dérivée en fonction de la densité de porteurs. La flèche indique la position du PNC.

créant ainsi plusieurs tailles différents de fluctuations, et donc plusieurs pics différents dans la transformée de Fourier. Connaissant la fréquence associée au pic dominant à tailles de flaques égales, on calcule la taille de ces flaques comme étant approximativement 125 nm en diamètre. Cela est en accord avec les mesures effectuées par sonde à balayage ayant rapporté des tailles variant de 30 à 150 nm [23, 32].

3.6 Fluctuations Hall quantiques

On s'intéresse maintenant aux lignes diagonales et parallèles trouvées à la figure 3.9 (haut). En étudiant ces données en tons de gris (figure 3.10), on observe plusieurs lignes parallèles et diagonales à des champs magnétiques plus élevés (plus bas) que 0.5 (-0.5) Tesla. Ces lignes se trouvent dans les quatre quadrants de la figure, et pointent vers le centre de celle-ci, où la densité est au point de neutralité de charge et le champ magnétique nul. De plus, au du PNC, il y a croisement entre ces différentes lignes. Les deux différentes pentes à champ magnétique égal prouvent que les deux types de porteurs, positifs et négatifs sont présents. On observe donc directement la présence de flaques d'électrons et de trous participant au transport. La partie droite de la figure 3.10 illustre avec plus de résolution ces lignes parallèles.

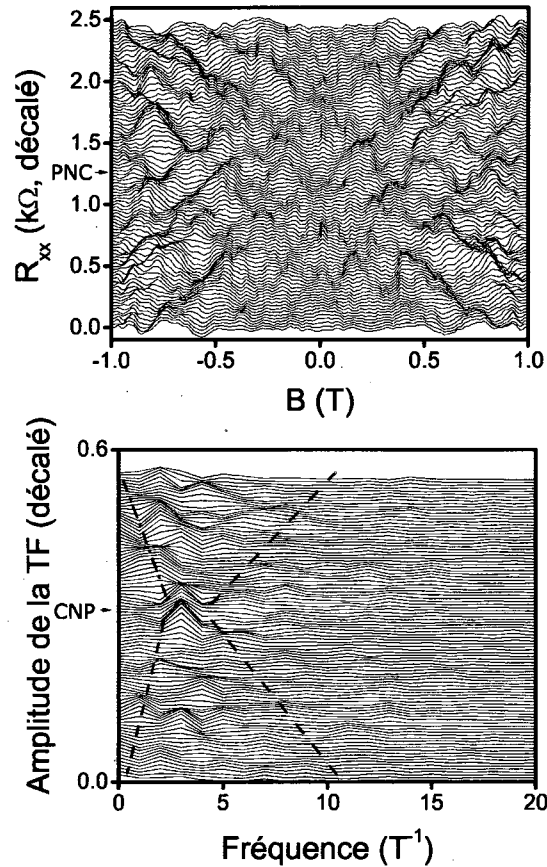


FIGURE 3.9 – Diagramme en chute d'eau des fluctuations autour du PNC, on voit une évolution rapide en fonction de la densité de porteurs, chaque ligne correspondant à une densité de porteurs différente.

Pour mieux comprendre la nature de ces fluctuations, on trace la magnétorésistance sur une plus grande plage de densité et de champ magnétique. La figure 3.11 est une expansion du quatrième quadrant de la figure 3.10. Ce graphique en ton de gris permet l'observation de deux autres séquences de lignes parallèles, à des pentes différentes et à amplitude plus faible. On montre aussi dans la partie droite des lignes calculées correspondant aux facteurs de remplissage 2, 6 et 10 de l'effet Hall quantique. Il est clair que les ensembles de lignes parallèles suivent ces facteurs de remplissage. Le nombre total de ces lignes est plus évident dans l'encadré de la figure 3.11. On conclut que ces lignes ont un lien avec l'effet Hall quantique. Cependant, nous avons montré au chapitre 2 que, dans cet échantillon particulier, aucune évidence de l'effet Hall quantique ne se manifeste

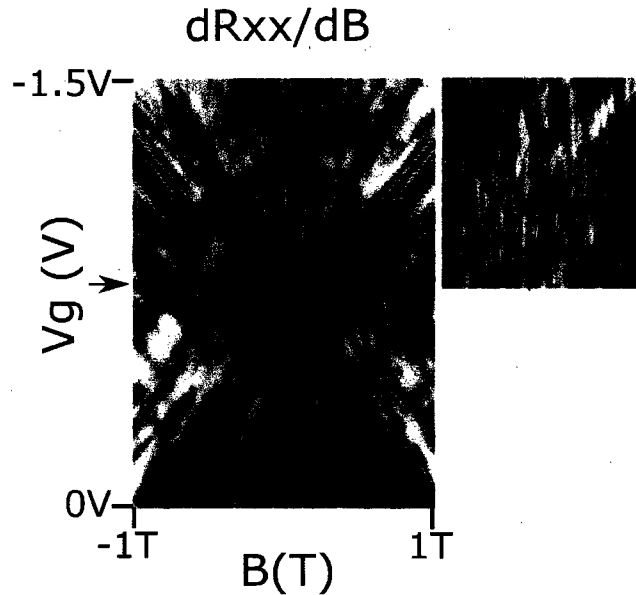


FIGURE 3.10 – Résistance longitudinale en fonction du voltage de grille et du champ magnétique, la partie de droite est une mesure à plus haute résolution du premier quadrant de la partie de gauche. La flèche indique la position du PNC.

avant 2 T, tandis qu'ici, les lignes parallèles sont présentes à partir de 0.5 T.

L'origine de ces fluctuations est donc toute autre. Pour qu'il y ait effondrement de l'effet Hall quantique, il faut que les deux côtés opposés de l'échantillon s'équilibrent par des événements de rétro-diffusion. Cela peut survenir dans des échantillons très étroits via des fluctuations dans le potentiel. Cobden *et al.* [39] ont montré dans de petits transistors métal-oxide à effet de champ (MOSFET) qu'à hauts champs magnétique, de tels événements de diffusion suivaient des lignes parallèles aux facteurs de remplissage de l'effet Hall quantique. Ils ont proposé un modèle impliquant des interactions électroniques plutôt qu'un modèle à une seule particule, plus trivial, qui aurait une forme non-linéaire en densité et champ magnétique, dépendante de la forme exacte des fluctuations, et du fait que la taille de ces fluctuations serait différente en fonction de la densité de porteurs.

La figure 3.12 illustre ce modèle, qui a été confirmé par des mesures récentes par sonde à balayage dans des échantillons de GaAs/AlGaAs et de graphène. [40, 41]. Avant tout, faisons un bref rappel des termes remplissage, états localisés et phase compressible. Lorsqu'un champ magnétique suffisamment élevé est appliqué, la densité d'état se sépare en

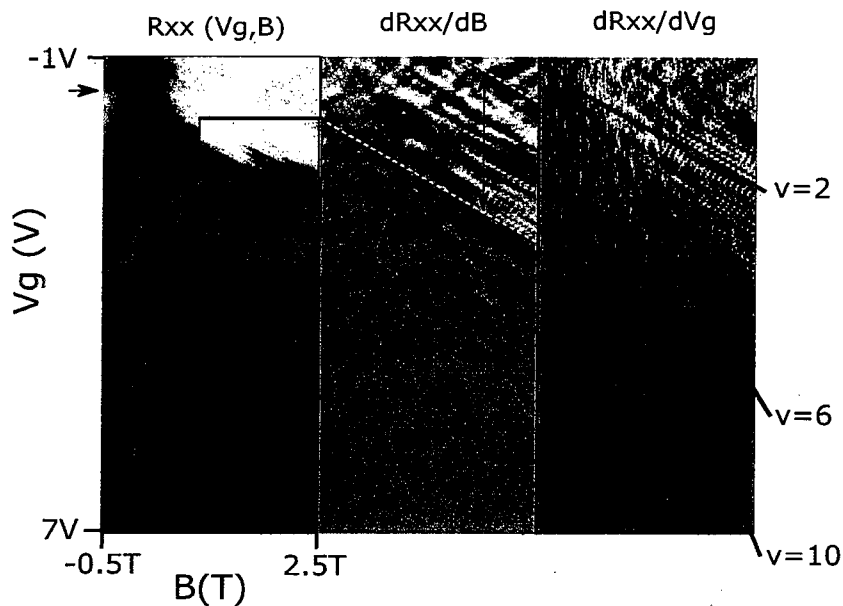


FIGURE 3.11 – Résistance en fonction du voltage de grille et du champ magnétique, le graphique du centre est la dérivée en fonction du champ magnétique, et celui de droite la dérivée en fonction de la densité de porteurs. On peut voir 3 ensembles de lignes parallèles suivant les facteurs de remplissage propres aux monocouches de graphène. La flèche de gauche indique la position du PNC, et les lignes pointillées jaunes l'étendue du désordre en densité.

niveaux discrets, des niveaux de Landau. En augmentant l'énergie de Fermi, on remplit ces niveaux de Landau, d'où le terme remplissage. Or, à cause d'une température non-nulle, les niveaux ne sont pas complètement discrets, et possèdent une queue d'états dits localisés. D'un point de vue simple, les états localisés occupent des orbites bien précises tandis les états étendus peuvent occuper toute la surface de l'échantillon. Lorsque l'énergie de Fermi se trouve dans les états localisés, l'échantillon est dans une phase incompressible, puisque les électrons sont fixés à une orbite, alors que lorsque l'énergie de Fermi se trouve dans les états étendus, l'échantillon est dans une phase compressible.

Intéressons nous aux trois positions de l'énergie de Fermi (E_F) à la figure 3.12. À la position 2, le niveau de Landau est à moitié plein, l'amplitude des fluctuations en densité est maximale, l'énergie de Fermi se trouve complètement dans une phase compressible, et l'écrantage est à son maximum, on ne mesure donc aucune fluctuation. À la position 3, le niveau de Landau est quasi-plein, l'énergie de Fermi est dans une phase incompressible, mais à cause du désordre dans le potentiel, il se forme des pochettes dans une phase compressible. L'écrantage n'est fait que par ces seules pochettes. Elles se comportent comme des boîtes quantiques, et peuvent être chargées de la même façon, ayant un pic de blocage

de Coulomb entre chaque charge ajoutée, en augmentant le champ magnétique, on ne fait que déplacer ces pochettes, qui conservent la même séparation en densité entre leurs niveaux, donnant naissance à ces lignes parallèles. La position 1 est semblable, mais il s'agit ici d'un niveau presque vide, ou les pochettes se forment dans l'autre sens de la densité de porteurs.

Les expériences avec sonde à balayage ont permis d'observer ces événements de charge des boîtes quantiques Hall quantique (*quantum Hall quantum dots*) en mesurant directement la compressibilité locale de ces fluctuations. Les lignes parallèles que nous avons observées apparaissent à des champs magnétiques trop bas pour être bien décrites par un modèle d'effondrement de l'effet Hall quantique. On suggère que ces lignes soient un précurseur à l'effet Hall quantique, ce qui est possible étant donné la grande variation de densité dans le graphène. De la largeur des ensembles parallèles de lignes, on extrait une variation de densité de l'ordre de $2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$ pour les électrons, ce qui est du même ordre que les expériences de sonde à balayage [41]. À bas champ magnétique, cela donne lieu à un réseau complexe connectant les contacts rapprochés de l'échantillon. La charge de ces boîtes quantiques ne diffuse pas le courant comme dans l'expérience de Cobden *et al.*, mais le rééquilibrage local redistribue le courant dans le réseau entre les contacts, ces événements de redistribution sont captés comme fluctuations de courant par les contacts ohmiques [14].

3.7 Taille des fluctuations

Puisque les fluctuations décrites ci-haut résultent d'événements où une boîte quantique se charge d'un électron, il est possible d'extraire la taille de la boîte quantique en fonction de son énergie de charge. À la figure 3.13, on voit à gauche un schéma de l'échantillon avec la position que peuvent avoir de telles boîtes quantiques pour que leur apport au courant total soit mesuré par les contacts déposés sur l'échantillon. À droite, on trouve un zoom d'une partie de la figure 3.10, où plusieurs lignes parallèles et équidistantes sont présentes. Le fait que ces lignes soient équidistantes suggère une énergie d'addition constante, donc des boîtes quantiques de même taille. Puisqu'il serait très surprenant d'observer plusieurs boîtes de taille strictement égales, on suppose que ces lignes ne sont dues qu'au remplissage d'une seule boîte. À partir de la séparation en densité de ces lignes, on calcule une taille de boîte quantique d'environ 150 nm de

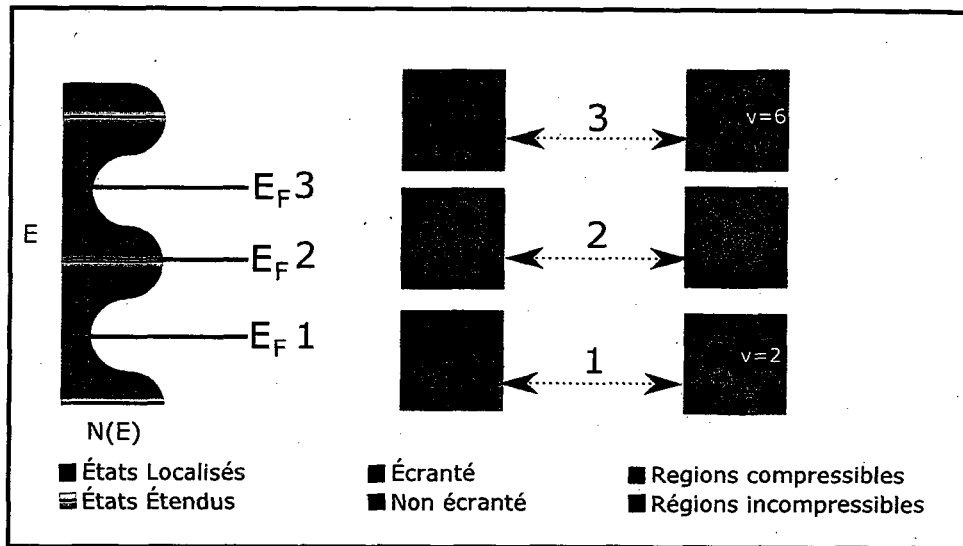


FIGURE 3.12 – Écrantage et compressibilité dans l'échantillon en fonction de la position du niveau de Fermi. Voir texte pour explications.

diamètre, ce qui est comparable aux 60nm trouvés par Martin *et al.* à l'aide d'une sonde à balayage et de 135 nm rapporté par un groupe de UC Riverside [13] qui a étudié des fluctuations semblables en transport, mais à plus haut champ magnétique, et en observant la résistance transverse.

En conclusion, on a étudié les fluctuations de conductance dans une monocouche de graphène près du point de neutralité de charge et à haute densité électronique. On trouve que les grandes fluctuations de densité dans le graphène près du PNC mènent à deux types de fluctuations de conductance bien distinctes, celles provenant de l'interférence quantique, et celles provenant de la charge d'états Hall quantiques localisés. De plus, on trouve à partir des transformées de Fourier des fluctuations près du PNC que la présence et la variation en taille des flaques d'électrons et de trous influence fortement le transport.

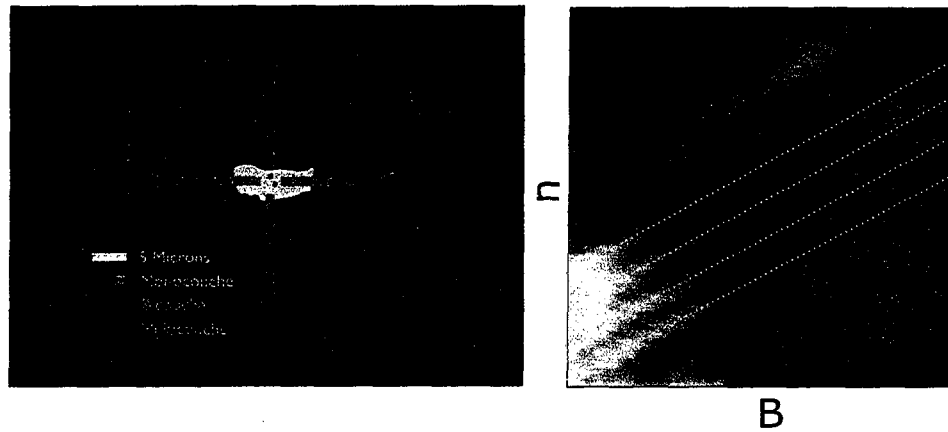


FIGURE 3.13 – Gauche : Schéma de l'échantillon de graphène montrant la position des boîtes quantiques (points rouges) mentionnées plus haut. Droite : Zoom sur les lignes de la figure 3.11, les lignes pointillées jaunes sont un guide pour l'oeil. La séparation entre ces lignes permet de calculer l'énergie de charge et la taille de la boîte quantique correspondante.

Chapitre 4

Nanostructures

4.1 Motivations

Le graphène est un matériau qui possède des propriétés très intéressantes pour les applications de qubits de spin. C'est un matériau qui possède une haute mobilité intrinsèque, même à température de la pièce, et dans lequel l'interaction spin-orbite est très faible. De plus, la décohérence due au spin nucléaire peut être évitée grâce au spin nucléaire égal à zéro dans le carbone-12. Cependant, pour former une boîte quantique, on a vu au chapitre 1 que l'on a besoin de deux barrières tunnel pour isoler la boîte, ce qui est impossible dans un échantillon de graphène, en raison de l'effet tunnel de Klein et de l'absence de gap. Les boîtes quantiques du chapitre précédent permettent de prévoir la taille nécessaire. Cependant, elles ne sont pas pratiques en transport, puisqu'elles ne sont pas couplées à des réservoirs via des barrières tunnel. On doit donc contourner ce problème en gravant des nanostructures, comme des nano-rubans et en les contrôlant grâce à des grilles latérales.

4.2 Constrictions

La structure la plus simple que l'on peut graver est une constriction dans le graphène. On voit l'échantillon utilisé pour les mesures présentées ici à la figure 4.1. La largeur et la longueur de la constriction sont d'environ 100 nm. On applique une différence de potentiel entre la source(S) et le drain (D) et les grilles T et B sont les grilles latérales de contrôle. Cet échantillon particulier n'avait aucune façon de contrôler la densité de porteurs, puisque la grille globale n'était pas connectée.

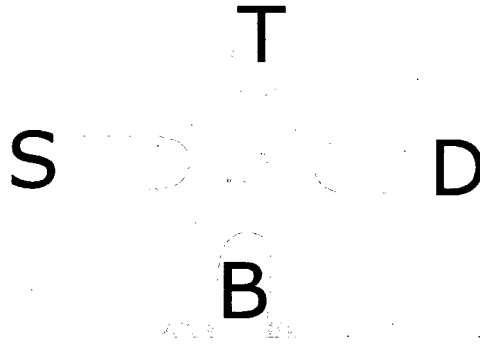


FIGURE 4.1 – Image au microscope électronique de la constriction utilisée. On y trouve les contacts ohmiques source (S) et drain (D), et les grilles latérales T et B.

4.2.1 Ouverture d'un gap dans les constrictions

Plusieurs groupes ont montré qu'il était possible d'ouvrir un gap à l'aide de nanorubans de graphène [7, 10] et ainsi former des boîtes quantiques. La figure 4.2, illustre le fonctionnement de telles boîtes quantiques. La région rose est un gap effectif provenant du potentiel de confinement. Ce potentiel de confinement dépend de la largeur de la constriction [7]. Les fluctuations de potentiel, soit les lignes noirs oscillantes, proviennent du substrat et des effets de bord du ruban. La superposition du potentiel de confinement à ce désordre crée donc îlots, qui sont des boîtes quantiques avec des états discrets. En choisissant bien la taille des rubans utilisés, on peut tenter de limiter la formation de ces îlots, de manière à n'en avoir qu'un seul.

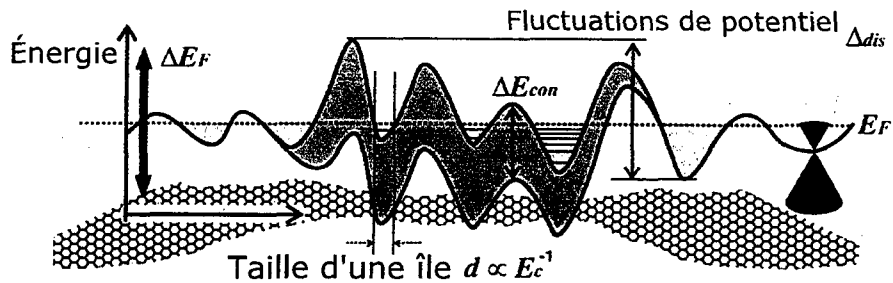


FIGURE 4.2 – Formation de boîtes quantiques dans les constrictions, voir texte pour explications. Figure adaptée de [7]

4.2.2 Transport à travers la constriction et formation de boîtes quantiques

Ayant formé des îlots dans la constriction, on étudie maintenant le transport électronique à travers cette structure. Le comportement du courant différentiel en fonction des deux grilles latérales est montré à la figure 4.3. Ce diagramme de stabilité montre plusieurs boîtes quantiques, puisque chaque ensemble de lignes parallèles appartient à une boîte quantique particulière, tel qu'expliqué au chapitre 1. On s'intéressera à la section délimitée par la ligne pointillée rouge. Ces deux lignes quasi-horizontales signifient que cette boîte quantique est fortement couplée à la grille latérale T, elle doit donc en être physiquement plus rapprochée. C'est aussi cette boîte qui semble dominer le transport dans cette région de voltage.

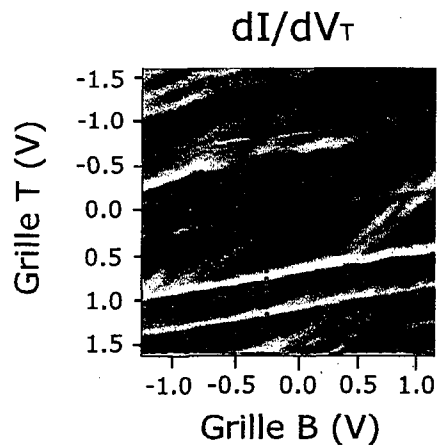


FIGURE 4.3 – Diagramme de stabilité des boîtes quantiques formées dans la constriction. La ligne pointillée rouge indique l'étendue des voltages de grille de la figure 4.4

On s'intéresse de plus près à cette boîte quantique en variant la différence de potentiel source-drain. Puisque la grille T est la plus fortement couplée à la boîte, on fixera le voltage de la grille B à -0.25 V, Le courant différentiel résultant du balayage de la grille T et du biais est présenté à la figure 4.4. On voit clairement la formation de diamants de Coulomb, chacune correspondant à l'addition d'un électron. De la largeur du diamant central, on calcule l'énergie d'addition de la boîte comme étant 7 meV, on calcule la capacitance à 22.8 aF, donnant un diamètre de boîte quantique d'environ 90 nm, ce qui est approximativement la taille de la constriction. Cela est semblable à la taille des fluctuations présentées au chapitre précédent. On calcule les paramètres α et β comme étant 0.172 et 0.425 , respectivement.

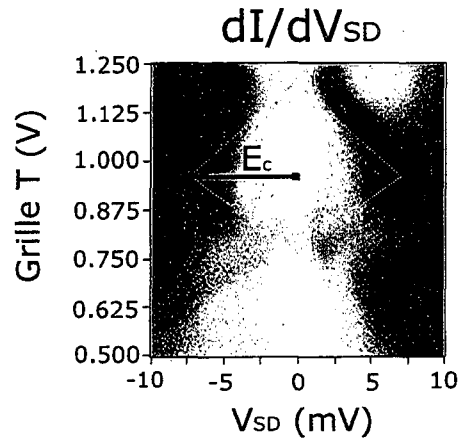


FIGURE 4.4 – Diamants de Coulomb dans la constriction, on en retire l'énergie de charge de la boîte quantique.

La figure 4.5 montre le comportement en champ magnétique tel que déjà mesuré dans des systèmes de GaAs [42]. La diminution d'amplitude d'un pic de Coulomb est accompagnée d'une augmentation d'amplitude du prochain pic. La figure 4.5 est un zoom sur une partie d'un spectre Fock-Darwin.

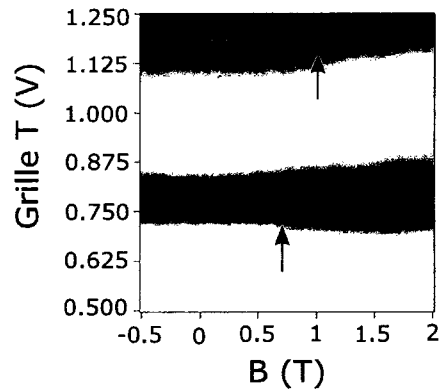


FIGURE 4.5 – Croisement de niveaux dans l'échantillon de graphène, les flèches indiquent l'endroit où il y a croisement entre les pics de Coulomb. On mesure le courant différentiel en fonction de la grille T et du champ magnétique.

4.3 Boîtes quantiques

Ayant fabriqué et caractérisé une constriction, et manipulé une boîte quantique en transport, on fabrique maintenant une structure comme à la figure 4.6. Il s'agit d'un îlot de graphène, séparé des contacts ohmiques (S et D) par deux constriction qui agiront comme barrières tunnel. Chacune d'entre elle est contrôlée par une grille latérale (L et R), et l'îlot central est contrôlé par deux grilles latérales (T et B). On varie la densité à l'aide d'une grille globale. La taille de chaque constriction est d'environ 100 nm par 100 nm, tandis que l'îlot central a un diamètre d'environ 300 nm.

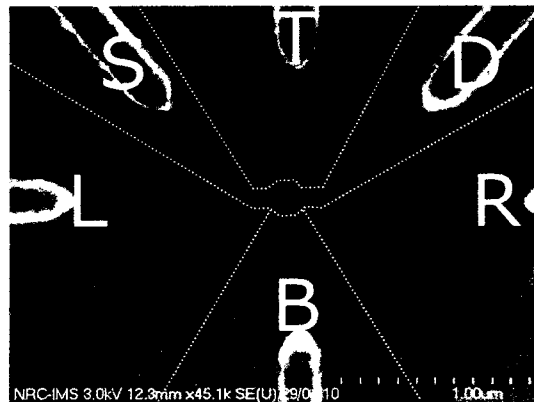


FIGURE 4.6 – Image à microscope à effet tunnel d'un échantillon de boîte quantique, les lignes pointillées sont un guide visuel des gravures dans le graphène.

4.3.1 Contrôle des boîtes quantiques

Au chapitre 1, on a expliqué que pour former une boîte quantique, il faut un îlot séparé de deux contacts ohmiques par des barrières tunnel. On a aussi vu ici que le potentiel de confinement permet d'ouvrir un gap dans une constriction, et que cela, couplé au potentiel de désordre induit par les bords et le substrat, forme des barrières tunnel dans les constriction. La boîte quantique ainsi formée est petite et possède donc des niveaux d'énergies plus espacés qu'une plus grosse boîte quantique.

La figure 4.7, tirée d'un article provenant du groupe de l'ETH [8], montre le fonctionnement d'un transistor à un électron dans le graphène. Le courant à travers la structure semblable à celle que l'on utilise forme un carrelage, dont les minimums de courant sont fortement couplés aux grilles latérales. Dans le cas présenté ici, les lignes blanches verticales sont les minimums de courant associés à la grille 2, et les lignes horizontales à la grille 1. Il s'agit du blocage de Coulomb dans les deux contractions. Les oscillations diagonales sont dues à une boîte quantique dans l'îlot central. On arrive donc à manipuler cette boîte quantique en se plaçant entre deux pics de blocage de Coulomb dans chacune des constriction, formant alors deux barrières tunnel. Les grilles latérales près de l'îlot, ou la grille globale contrôlent ensuite le courant à travers la boîte quantique principale.

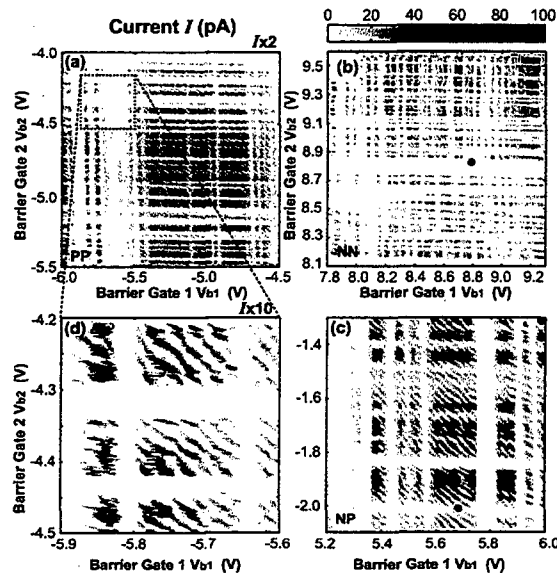


FIGURE 4.7 – Courant à travers un transistor à un électron, voir texte pour détails, figure tirée de [8]

C'est ce que l'on a fait ici, sur l'échantillon que l'on a utilisé, un problème de fabrication empêchait de contrôler les grilles latérales, on s'est donc simplement intéressés à

la variation de densité grâce à la grille globale, prenant donc l'équivalent d'une coupe diagonale dans le diagramme quadrillé de la figure 4.7.

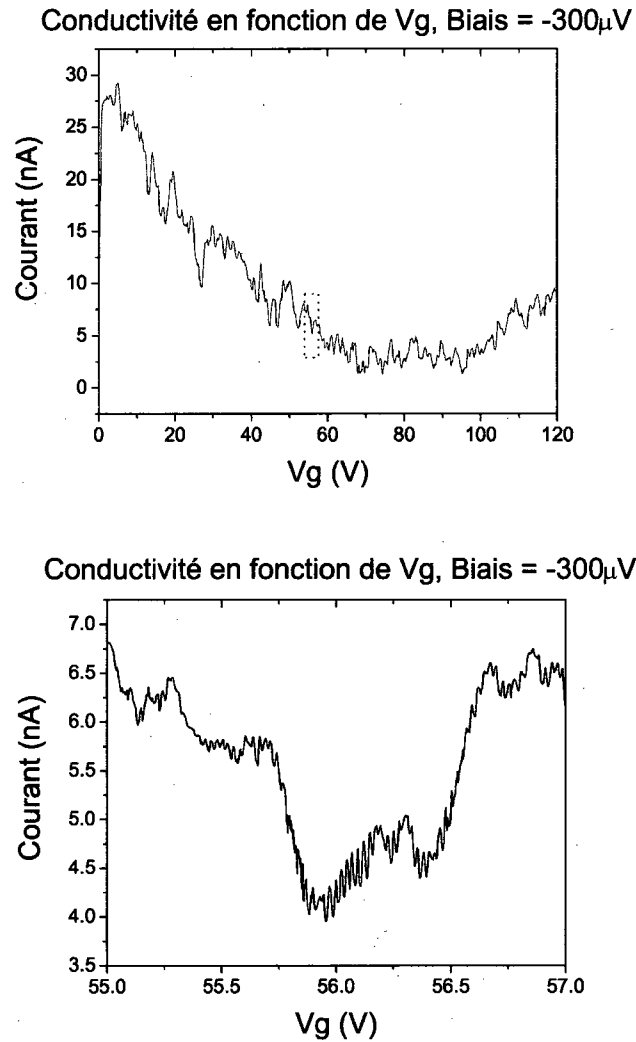


FIGURE 4.8 – Haut : Courant à travers la structure de la figure 4.6 en fonction de la grille globale, on voit un minimum de courant sur une grande échelle. Bas : Zoom sur la boîte pointillée rouge de la figure ci-haut, on voit des oscillations de Coulomb, à partir desquelles on calcule l'énergie de charge de la boîte quantique.

La figure 4.8 illustre donc le courant source-drain dans la structure en fonction du voltage de grille globale (donc de la densité). On voit qu'entre environ 55 V et 100 V, le courant est minimal, mais non zéro, entre autres parce que la mesure s'effectue à 4 Kelvin, cela provient du gap effectif ouvert par le confinement des nano-rubans. Si on

s'intéresse à une région bien particulière, comme dans la section du bas de la figure 4.8, on trouve des oscillations périodiques. Ce sont les oscillations de Coulomb dues à des évènements de charge d'une boîte quantique dans l'îlot central. La séparation en voltage de grille globale de ces oscillations est de 0.024 V, on calcule donc une taille de boîte quantique d'environ 240 nm, ce qui est en accord avec la taille de l'îlot gravé (soit 300 nm).

En conclusion, on a fabriqué deux types de nanostructures, soit une constriction contrôlée par deux grilles latérales, ainsi qu'un îlot de graphène avec deux constriction. On trouve des tailles de boîtes quantiques de 90nm pour une constriction, et 240 nm pour l'îlot. Ces mesures ouvrent la voie à la fabrication et la caractérisation de structures plus complexe, pour éventuellement permettre le contrôle de qubits de spin dans le graphène.

Conclusion

On a présenté dans ce mémoire, plusieurs types de fluctuations de conductance différents, incluant un précurseur à l'effet Hall quantique, consistant en des pochettes de régions compressibles entourées de régions incompressibles, dont l'addition de porteurs un par un influence localement la distribution du courant, et parvient à être détectée par des contacts ohmiques placés près l'un de l'autre. On s'est aussi intéressés à la dépendance en température des fluctuations, et on a observé l'effet majeur de la présence de flaques d'électrons et de trous près du point de neutralité de charge. Ces flaques donnent naissance à un minimum de résistance assez large en champ magnétique existant pour une densité de $2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$, ce qui est la même étendue que les fluctuations Hall quantiques mentionnées précédemment. On peut donc affirmer que c'est la taille en densité du désordre dans cet échantillon de graphène.

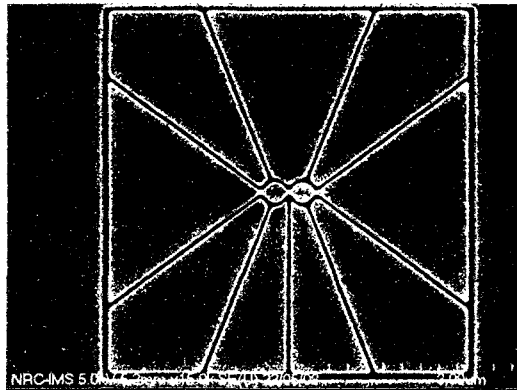


FIGURE 4.9 – Image au microscope électronique d'une double boîte quantique dans le graphène

De plus, on a mesuré le transport à travers deux différents types de nanostructures. De ces mesures, on a extrait les paramètres des boîtes quantiques formées, telles que la taille, l'énergie de charge et les paramètres α et β . Cela ouvre la voie à la fabrication et

la caractérisation de nanostructures plus complexes.

Le travail futur sur le graphène au CNRC porte donc sur l'objectif de manipuler des qubits de spin dans le graphène. Pour y parvenir, on devra étudier de nouveaux échantillons de nanostructures, comme celui présenté à la figure 4.9, et tester leurs grilles de contrôle de façon exhaustive. On prévoit aussi s'intéresser à du graphène fabriqué par épitaxie sur des substrats de carbure de silicium (SiC), en collaboration avec le groupe du Dr. W. Strupinski à l'Institute of electronic materials technology de Varsovie.

Bibliographie

- [1] A.H. Castro Neto, F. Guinea, N.M.R. Peres, K.S. Novoselov, et A.K. Geim. The electronic properties of graphene. *Rev. Mod. Phys.* **81**, 109–162 (2009).
- [2] K.S. Novoselov, E. McCann, S.V. Morozov, V.I. Fal'ko, M.I. Katsnelson, U. Zeitler, D. Jiang, F. Schedin, et A.K. Geim. Unconventional quantum hall effect and berry's phase of 2in bilayer graphene. *Nat. Phys.* **2**, 177–180 (2006).
- [3] A.K. Geim et K.S. Novoselov. The rise of graphene. *Nature Materials* **6**, 183–191 (2007).
- [4] K. S. Novoselov, Z. Jiang, Y. Zhang, S. V. Morozov, H. L. Stormer, U. Zeitler, J. C. Maan, G. S. Boebinger, P. Kim, et A. K. Geim. Room-temperature quantum hall effect in graphene. *Science* **315**(5817), 1379 (2007).
- [5] P. Blake, E.W. Hill, A.H. Castro Neto, K.S. Novoselov, D. Jiang, R. Yang, T.J. Booth, et A.K. Geim. Making graphene visible. *Applied Physics Letters* **91**(6), 063124 (2007).
- [6] A.C. Ferrari, J.C. Meyer, V. Scardaci, C. Casiraghi, M. Lazzeri, F. Mauri, S. Piscanec, D. Jiang, K.S. Novoselov, S. Roth, et A.K. Geim. Raman spectrum of graphene and graphene layers. *Phys. Rev. Lett.* **97**(187401-1-4) (2006).
- [7] C. Stampfer, J. Güttinger, S. Hellmüller, F. Molitor, K. Ensslin, et T. Ihn. Energy gaps in etched graphene nanoribbons. *Phys. Rev. Lett.* **102**(056403) (2009).
- [8] C. Stampfer, E. Schurtenberger, F. Molitor, J. Guttinger, T. Ihn, et K. Ensslin. Tunable graphene single electron transistor. *Nano Lett.* **8**, 2378–2383 (2008).
- [9] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, et A.A. Firsov. Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science* **306**, 666–669 (2004).
- [10] K. Todd, H. Chou, S. Amasha, et D. Goldhaber-Gordon. Quantum dot behavior in graphene nanoconstrictions. *Nano Lett.* **9**, 416–421 (2009).
- [11] C. Stampfer, J. Güttinger, F. Molitor, D. Graf, T. Ihn, et K. Ensslin. Tunable coulomb blockade in nanostructured graphene. *Appl. Phys. Lett.* **92**(012102-1-3) (2008).
- [12] Y. F. Chen, M. H. Bae, C. Chialvo, T. Dirks, A. Bezryadin, et N. Mason. Magnetoresistance in single-layer graphene : weak localization and universal conductance fluctuation studies. *J. Phys. : Condens. Matter* **22**, 205301 (2010).

- [13] Jairo Velasco, Gang Liu, Lei Jing, Philip Kratz, Hang Zhang, Wenzhong Bao, Marc Bockrath, et Chun Ning Lau. Probing charging and localization in the quantum hall regime by graphene $p - -n - -p$ junctions. *Phys. Rev. B* **81**(12), 121407 (2010).
- [14] S. Branchaud, A. Kam, P. Zawadzki, F. M. Peeters, et A. S. Sachrajda. Transport detection of quantum hall fluctuations in graphene. *Phys. Rev. B* **81**(12), 121406 (2010).
- [15] P.R. Wallace. The band theory of graphite. *Phys. Rev.* **71**(622) (1947).
- [16] E. H. Hwang, S. Adam, et S. Das Sarma. Carrier transport in two-dimensional graphene layers. *Phys. Rev. Lett.* **98**(18), 186806 (2007).
- [17] Vadim V. Cheianov, Vladimir I. Fal'ko, Boris L. Altshuler, et Igor L. Aleiner. Random resistor network model of minimal conductivity in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **99**(17), 176801 (2007).
- [18] M.I. Katsnelson, K.S. Novoselov, et A.K. Geim. Chiral tunnelling and the klein paradox in graphene. *Nat. Phys.* **2**, 60 (2006).
- [19] O. Klein. Die reflexion von elektronen an einem potentialsprung nach der relativistischen dynamik von dirac. *Z. Phys.* **53**, 157 (1929).
- [20] V. P. Gusynin et S. G. Sharapov. Unconventional integer quantum hall effect in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **95**(14), 146801 (2005).
- [21] C. W. J. Beenakker et H. van Houten. *Quantum Transport in Semiconductor Nanostructures*. Academic Press, (1991).
- [22] S. Datta. *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*. Cambridge University Press, (1995).
- [23] J. Berezovsky et R.M. Westervelt. Imaging universal conductance fluctuations in mesoscopic graphene. *ArXiv* (0907.0428v1) (2009).
- [24] C. Ojeda-Aristizabal, M. Monteverde, R. Weil, M. Ferrier, S. Guéron, et H. Bouchiat. Conductance fluctuations and field asymmetry of rectification in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **104**(18), 186802 (2010).
- [25] E. McCann, K. Kechedzhi, Vladimir I. Fal'ko, H. Suzuura, T. Ando, et B. L. Altshuler. Weak-localization magnetoresistance and valley symmetry in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **97**(14), 146805 (2006).
- [26] H. Suzuura et T. Ando. Crossover from symplectic to orthogonal class in a two-dimensional honeycomb lattice. *Phys. Rev. Lett.* **89**(26), 266603 (2002).
- [27] A. F. Morpurgo et F. Guinea. Intervalley scattering, long-range disorder, and effective time-reversal symmetry breaking in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **97**(19), 196804 (2006).
- [28] T. Ando, T. Nakanishi, et R. Saito. Berry's phase and absence of back scattering in carbon nanotubes. *Journal of the Physical Society of Japan* **67**(8), 2857–2862 (1998).

- [29] F.V. Tikhonenko, D.W. Horsell, R.V. Gorbachev, et A.K. Savchenko. Weak localization in graphene flakes. *Phys. Rev. Lett.* **100**(056802-1-4) (2008).
- [30] Y. Zhang, Y.W. Tan, H.L. Stormer, et P. Kim. Experimental observation of the quantum hall effect and berry's phase in graphene. *Nature* **438**, 201–204 (2005).
- [31] F. V. Tikhonenko, A. A. Kozikov, A. K. Savchenko, et R. V. Gorbachev. Transition between electron localization and antilocalization in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **103**(22), 226801 (2009).
- [32] J. Martin, N. Akerman, G. Ulbricht, T. Lohmann, J.H. Smet, K. Von Klitzing, , et A. Yacoby. Observation of electron-hole puddles in graphene using a scanning single-electron transistor. *Nat. Phys.* **4**, 144–148 (2008).
- [33] G. M. Rutter, J. N. Crain, N. P. Guisinger, T. Li, P. N. First, et J. A. Stroscio. Scattering and interference in epitaxial graphene. *Science* **317**(5835), 219–222 (2007).
- [34] Daniel Loss et David P. DiVincenzo. Quantum computation with quantum dots. *Phys. Rev. A* **57**(1), 120–126 (1998).
- [35] J. Moser, A. Barreiro, et A. Bachtold. Current-induced cleaning of graphene. *Appl. Phys. Lett.* **91**(163513-1-3) (2007).
- [36] J.-H. Chen, C. Jang, S. Adam, M.S. Fuhrer, E.D. Williams, et M. Ishigami. Charged-impurity scattering in graphene. *Nat Phys* **4**(5), 377–381 (2008).
- [37] S.V. Morozov, K.S. Novoselov, M.I. Katsnelson, F. Schedin, L.A. Ponomarenko, D. Jiang, et A.K. Geim. Strong suppression of weak localization in graphene. *Phys. Rev. Lett.* **97**(016801-1-4) (2006).
- [38] S. Cho et M.S. Fuhrer. Charge transport and inhomogeneity near the minimum conductivity point in graphene. *Phys. Rev. B* **77**(081402-1-4) (2008).
- [39] D.H. Cobden, C.H.W. Barnes, et C.J.B. Ford. Quantum hall fluctuations and evidence for charging in the quantum hall effect. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4695–4698 (1999).
- [40] S. Ilanl, J. Martin, E. Teltelbaum, J.H. Smet, D. Mahalu, V. Umansky, et A. Yacoby. The microscopic nature of localization in the quantum hall effect. *Nature* **427**, 328–332 (2004).
- [41] J. Martin, N. Akerman, G. Ulbricht, T. Lohmann, K. Von Klitzing, J.H. Smet, et A. Yacoby. The nature of localization in graphene under quantum hall conditions. *Nat. Phys.* **5**, 669–674 (2009).
- [42] M. Piore-Ladrière, M. Ciorga, J. Lapointe, P. Zawadzki, M. Korkusinski, P. Hawrylak, et A. S. Sachrajda. Spin-blockade spectroscopy of a two-level artificial molecule. *Phys. Rev. Lett.* (2), 026803 (2003).