

# UNIVERSITE DE LIMOGES

ECOLE DOCTORALE Sciences et Ingénierie pour l'Information,

Mathématiques

FACULTE DES SCIENCES ET TECHNIQUES

Année : 2013

N° 42-2013

## Thèse

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE LIMOGES**

**Discipline : Electronique des Hautes fréquences, Photonique et Systèmes**

présentée et soutenue par

**Jonathan LEROY**

le 12 novembre 2013

**Caractéristiques électriques non-linéaires de la transition isolant-métal  
du dioxyde de vanadium ( $\text{VO}_2$ ) ; application à la conception de  
métamatériaux accordables dans le domaine térahertz**

**Thèse dirigée par Aurelian CRUNTEANU et Pierre BLONDY**

### JURY :

#### **Président :**

Valérie MADRANGEAS,

Professeur, XLIM, Université de Limoges

#### **Rapporteurs :**

Christophe GAQUIERE,

Patrick QUEFFELEC,

Professeur, IEMN, Université de Lille 1

Professeur, Lab-STICC, Université de Bretagne Occidentale

#### **Examineurs :**

Gérard Pascal PIAU,

Bernd Michael FISCHER,

Pierre BLONDY,

Aurélian CRUNTEANU,

Jean-Christophe ORLIANGES,

Ingénieur, EADS Innovations Works

Chercheur, Institut Franco-Allemand de Recherche de Saint-Louis

Professeur, XLIM, Université de Limoges

Chargé de Recherche CNRS, XLIM

Maître de Conférences, SPCTS, Université de Limoges

#### **Invité :**

Georges HUMBERT,

Chargé de Recherche CNRS, XLIM



*A mes parents, à ma sœur.*



## Remerciements

Ce travail de thèse cofinancé par la **Fondation EADS** a été effectué à l'Institut de Recherche **XLIM**, au sein du département Micro et Nanotechnologies pour Composants Optoélectroniques et Micro-ondes (**MINACOM**) et a été dirigé par Monsieur **Aurelian CRUNTEANU**, Chargé de Recherche CNRS, et Monsieur **Pierre BLONDY**, Professeur à l'Université de Limoges.

Je tiens, tout d'abord, à exprimer ma profonde gratitude à la **Fondation EADS** et à Monsieur **Gérard Pascal PIAU**, Ingénieur à EADS Innovations Works, sans qui ce travail n'aurait pas été possible. Je tiens aussi à remercier Messieurs les Professeurs **Dominique CROS** et **Dominique BAILLARGEAT**, Directeurs du laboratoire XLIM, qui m'ont permis de mener mes travaux au sein du laboratoire ainsi que Madame le Professeur **Valérie MADRANGEAS**, responsable du département MINACOM, pour m'avoir accueilli au sein du département MINACOM.

Je souhaite, ensuite, remercier sincèrement Madame **Valérie MADRANGEAS**, Professeur à l'Université de Limoges, de me faire l'honneur de présider ce jury.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Monsieur **Christophe GAQUIERE**, Professeur à l'Université de Lille 1, et à Monsieur **Patrick QUEFFELEC**, Professeur à l'Université de Bretagne Occidentale, d'avoir accepté d'assurer la fonction de rapporteur.

Je remercie Monsieur **Gérard Pascal PIAU**, Ingénieur à EADS Innovations Works, Monsieur **Bernd Michael FISCHER**, Chercheur à l'Institut Franco-Allemand de Recherche de Saint-Louis, Monsieur **Pierre BLONDY**, Professeur à l'Université de Limoges, Monsieur **Aurelian CRUNTEANU**, Chargé de Recherche CNRS, Monsieur **Jean-Christophe ORLIANGES**, Maître de Conférences à l'Université de Limoges, d'avoir accepté d'examiner ce mémoire et également Monsieur **Georges HUMBERT**, Chargé de Recherche CNRS, qui a bien voulu participer à ce jury.

J'adresse, à présent, mes plus vifs remerciements à Monsieur **Pierre BLONDY**, Professeur à l'Université de Limoges, et à Monsieur **Aurélian CRUNTEANU**, Chargé de Recherche CNRS, pour la confiance et le soutien que vous m'avez témoigné en dirigeant ces

travaux de recherche. Je veux, tout particulièrement, dire un grand merci à **Aurelian CRUNTEANU**, pour le partage de sa culture scientifique, de son savoir faire technologique ainsi que pour sa disponibilité et sa gentillesse.

Mes remerciements vont également aux différents membres du laboratoire qui à travers leur implication et/ ou leur aide ont contribué, de près ou de loin, au bon déroulement de cette thèse. Dans ce cadre, je pense naturellement à **Georges HUMBERT, Annie BESSAUDOU, Françoise COSSET, Damien PASSERIEUX, Aurélien PERIGAUD** ainsi qu'à tous les autres membres de l'équipe MINT (**Cyril GUINES, Arnaud POTHIER, Claire DALMAY, Matthieu CHATRAS**) sans oublier **Marie-Laure GUILLAT** qui effectue toutes les tâches administratives en sa qualité d'assistante administrative du département MINACOM.

Un remerciement chaleureux à mes collègues et amis thésards/ post-doc : **Benoit, Romain, Emilien, Maryna, Geoffroy, Sophie, Amine, Julien, Denis, Aurélie, Jonathan, Ludovic, Ling-Yang, Mansoib, Fabien, David** et tous les autres que j'oublie.

Merci également à tous mes amis de longue date qui peut-être un jour parcourront ce manuscrit: **Emeline, Vincent, Morgane, Alexandre, Carole, Cyrille, Hélène, Sébastien, Marina, Amandine, Benoit...**

Enfin, je voudrais remercier du fond du cœur **mes parents** ainsi que **ma sœur** pour leur présence et leur affection.

## **Table des matières**

---



Introduction générale.....	1
Chapitre I : Intérêt de l'intégration du dioxyde de vanadium dans la réalisation de dispositifs accordables .....	7
I.1. Introduction.....	9
I.2. Fonctions accordables en micro-électronique.....	10
I.2.1. Des composants accordables.....	10
I.2.2. Les matériaux dits "intelligents" .....	14
I.3. Le dioxyde de vanadium et sa transition isolant-métal.....	21
I.3.1. Les effets de la transition isolant-métal du VO <sub>2</sub> .....	22
I.3.2. Le déclenchement de la transition MIT du dioxyde de vanadium.....	24
I.3.3. L'origine de la transition MIT dans le dioxyde de vanadium .....	26
I.3.4. Le processus de percolation isolant-métal lors de la transition MIT du dioxyde de vanadium .....	29
I.3.5. Les différentes applications du dioxyde de vanadium .....	31
I.4. Le dépôt de couches minces de dioxyde de vanadium .....	37
I.4.1. L'ablation laser réactive ou PLD.....	38
I.4.2. La méthode d'évaporation par canon à électrons .....	40
I.5. Caractéristiques électromagnétiques large bande de films de VO <sub>2</sub> obtenus.....	46
I.6. Conclusion .....	50
Références Chapitre I.....	52
Chapitre II : Etude des propriétés non-linéaires du VO <sub>2</sub> intégré dans des dispositifs à deux terminaux (2T).....	63
II.1. Introduction .....	65
II.2. Activation électrique des dispositifs de type deux-terminaux à base de VO <sub>2</sub> .....	66
II.2.1. Commutateurs à deux terminaux à base de VO <sub>2</sub> .....	67
II.2.2. Les caractéristiques courant-tension (I-V) des dispositifs 2T à base de VO <sub>2</sub> .....	69
II.3. Etude de la transition MIT déclenchée en mode tension.....	72
II.3.1 Une transition sous la forme de sauts de courant, d'origine thermique .....	72
II.3.2. Influence de différents paramètres sur les caractéristiques I-V en mode tension des dispositifs 2T à base de VO <sub>2</sub> .....	78
II.4. Etude de la transition MIT lors de l'actionnement des dispositifs 2T à VO <sub>2</sub> en mode courant.....	84

---

---

II.4.1. Une transition initiée par percolation isolant-métal .....	85
II.4.2. Influence de différents paramètres sur les caractéristiques I-V en mode courant des dispositifs 2T à VO <sub>2</sub> .....	89
II.5. Phénomènes de conduction électrique dans la zone semi-conductrice (isolante), en mode tension et courant.....	94
II.6. Etude du phénomène d'auto-oscillations dans les dispositifs VO <sub>2</sub> de type 2T.....	100
II.6.1. Des oscillations liées à la résistance différentielle négative dans les caractéristiques I-V .....	100
II.6.2. Influence de divers paramètres sur le phénomène d'oscillations.....	106
II.7. Performances et perspectives d'intégration pour les dispositifs à base de VO <sub>2</sub> .....	112
II.7.1. Fiabilité des dispositifs 2T à base de VO <sub>2</sub> .....	113
II.7.2. Dispositifs 2T à base de VO <sub>2</sub> présentant des gaps nanométriques .....	116
II.7.3. Dispositifs de type MIM (Métal-Isolant-Métal) à base de VO <sub>2</sub> .....	118
II.8. Conclusion .....	119
Références Chapitre II.....	122
Chapitre III : Réalisation de métamatériaux térahertz accordables à base de VO <sub>2</sub> .....	125
III.1. Introduction .....	127
III.2. Le domaine des fréquences térahertz (THz) .....	128
III.2.1. Définition et intérêt des ondes térahertz.....	128
III.2.2. Les technologies THz aujourd'hui.....	131
III.3. Les métamatériaux pour le domaine THz .....	133
III.3.1. L'intérêt des métamatériaux électromagnétiques .....	133
III.3.2. Les métamatériaux à inclusions métalliques .....	135
III.3.3. Le champ d'application des métamatériaux .....	141
III.3.4. Les métamatériaux THz planaires.....	144
III.4. Caractérisation de films minces de VO <sub>2</sub> aux fréquences THz .....	149
III.4.1. La spectroscopie térahertz dans le domaine temporel.....	149
III.4.2. Etude des films minces de VO <sub>2</sub> aux fréquences THz.....	155
III.5. Etude de métamatériaux THz planaires intégrant du VO <sub>2</sub> .....	166
III.5.1. Métamatériaux THz de type "Cut-Wire-Grid" .....	167
III.5.2. Structure d'un métamatériau hybride à base de VO <sub>2</sub> .....	183
III.6. Conclusion.....	190
Références Chapitre III .....	192

---

Chapitre IV : Perspectives pour les métamatériaux THz accordables à base de VO <sub>2</sub> .....	197
IV.1. Introduction .....	199
IV.2. Perspectives pour les métamatériaux THz accordables électriquement .....	199
IV.2.1. Amélioration de l'accordabilité en tension des métamatériaux "Cut-Wire-Grid" .....	200
IV.2.2. Des métamatériaux SRR accordables électriquement .....	203
IV.3. Métamatériaux THz accordables avec des structures entièrement en VO <sub>2</sub> .....	210
IV.3.1. Réponse non optimisée d'un métamatériau THz avec une structure à base de VO <sub>2</sub> .....	211
IV.3.2. Améliorations des métamatériaux avec des structures en VO <sub>2</sub> .....	213
IV.4. Conclusion .....	219
Références Chapitre IV .....	221
Conclusion générale .....	223
Annexes .....	231
Annexe 1 : Mesure de résistivité par la méthode "4 pointes" .....	233
1. Principe de la méthode "4 pointes" .....	233
2. Détermination de la résistivité.....	234
Annexe 2 : La fabrication de circuits micro-électroniques .....	235
1. Le dépôt et la gravure du VO <sub>2</sub> .....	235
2. La réalisation des éléments métalliques .....	235
Annexe 3 : Modélisation des structures de type métamatériaux .....	237
1. Principe de modélisation d'une structure périodique.....	237
2. Méthodes de simulation sur HFSS .....	237
Annexe 4 : Détermination des constantes de matériaux aux fréquences THz .....	239
1. Constantes des matériaux optiquement épais fortement transparents .....	239
2. Constantes d'un matériau métallique optiquement mince .....	241
3. Validité des calculs pour les films minces de VO <sub>2</sub> à l'état métallique .....	243
Production scientifique.....	245

---



# Introduction générale



En l'espace d'environ deux siècles, le monde a connu de véritables révolutions technologiques qui ont considérablement changé notre vie de tous les jours. De ce point de vue, le domaine des technologies pour l'information et la communication n'échappe pas à la règle et représente même un parfait exemple de ces révolutions et de leur déroulement.

Au début, les technologies étaient relativement limitées que ce soit par leur nombre, par leurs fonctions, par leurs performances (consommation énergétique, vitesse et volume du flux d'informations), par leur accessibilité (prix, usage militaire) ou encore par leur encombrement. Après la mise au point des premiers systèmes, de nouvelles recherches furent entreprises pour les améliorer ce qui engendra, sur des rythmes assez lents puis de plus en plus soutenus, de nouveaux progrès permettant de contourner toutes ces limites. De plus, d'autres travaux étaient généralement effectués en parallèle pour développer des systèmes complémentaires ou mêmes concurrents. C'est sur ce modèle que se sont développés les systèmes permettant de communiquer. Après les nuages de fumée utilisés par les indiens, le premier système de communication fut le télégraphe aérien (ou télégraphe optique), créé à la fin du 18<sup>ème</sup> siècle, qui était optique, manuel, réservé à l'usage militaire et ne permettait de transmettre que des messages rudimentaires sur quelques dizaines de kilomètres en utilisant des relais. Aujourd'hui, il existe une grande diversité de moyens de communication que ce soit au niveau des terminaux (télévisions, micro-ordinateurs, Smartphones...) ou des supports permettant de véhiculer des informations sur de longues distances (espace libre, ADSL, fibre optique). Contrairement à leurs prédécesseurs, ces nouveaux systèmes de communication sont accessibles au grand public, échangent des informations à des vitesses beaucoup plus élevées et permettent de réaliser beaucoup d'autres fonctions tout en ayant une consommation et un encombrement réduits.

Dans une perspective historique, si l'on regarde d'un peu plus près l'origine de ces révolutions technologiques, on constate qu'elles ont, notamment, été rendues possible par l'essor des communications numériques (le transistor) et la miniaturisation des composants via le développement de la micro-électronique. Ces deux éléments ont permis de réaliser des composants toujours plus complexes et plus petits augmentant ainsi, leur vitesse, leur fiabilité et le nombre de leurs fonctions tout en diminuant leur encombrement, leur consommation et leur prix. Néanmoins, depuis une dizaine d'années, à cause de limites physiques liées à la dissipation efficace des effets thermiques, la miniaturisation des composants en micro-électronique semble arriver à son maximum. La loi de Moore, qui prédisait que le nombre de

transistors sur une surface donnée doublait tous les 18 mois à coût constant, est elle-même remise en cause par des problèmes d'efficacité énergétique.

Aujourd'hui, de nombreuses recherches sont effectuées pour trouver des alternatives à la miniaturisation des composants. L'objectif est d'éviter une coupure dans le développement des technologies de communication et ainsi, augmenter la quantité de données échangées mais également la vitesse des échanges, le nombre de standards... L'une des solutions proposées par la communauté scientifique est d'utiliser des dispositifs micro-électroniques reconfigurables c'est-à-dire des systèmes dont le comportement et le type de fonction peuvent être modifiés sous l'effet d'une commande. Dans le domaine des fréquences micro-ondes, qui sont très utilisées pour les télécommunications, il existe, par exemple, différents dispositifs accordables tels que des antennes, des déphaseurs ou des filtres. Au début, ces fonctions d'agilité reposaient sur l'ajout de jonctions semi-conductrices dans les dispositifs mais à présent, il existe d'autres solutions comme les matériaux dits intelligents pouvant réaliser directement des fonctions accordables. Parmi les matériaux intelligents faisant, actuellement, l'objet de nombreuses recherches, le dioxyde de vanadium ( $\text{VO}_2$ ) semble être un matériau particulièrement intéressant car il possède une transition de phase réversible isolant-métal à  $68^\circ\text{C}$ . En plus d'une température de transition proche de l'ambiante, cette transition peut être déclenchée par de nombreux stimuli et avoir différentes conséquences sur les propriétés du matériau (fortes variations de ses propriétés électriques, diélectriques et optiques lors de cette transition). Des études ont montré l'intérêt d'utiliser les propriétés du dioxyde de vanadium pour réaliser des micro-commutateurs, des filtres ou des limiteurs de signal/ de puissance, utilisables dans le domaine des micro-ondes.

Outre le problème lié à la miniaturisation des composants, le domaine des micro-ondes est également soumis à une autre limite qui est la saturation de l'exploitation de cette gamme de fréquences. Dans le cas des télécommunications, on assiste, par exemple, à une explosion des besoins avec d'un côté, un nombre d'utilisateurs toujours plus grand et de l'autre côté, des exigences de plus en plus importantes de la part de chaque utilisateur, qui veut échanger de plus en plus d'informations à des vitesses toujours plus élevées. De ce fait, on se dirige inexorablement vers une saturation du domaine des micro-ondes ce qui pourrait, au même titre que les problèmes liés à la miniaturisation des composants, devenir un frein au développement de ces technologies. Pour contourner ce deuxième problème, nous assistons actuellement au développement de composants et de systèmes travaillant aux fréquences térahertz ( $\sim 100 \text{ GHz} - \sim 30 \text{ THz}$ ). La localisation de ce domaine fréquentiel, entre celui des

micro-ondes et de l'optique, fait de lui un très bon candidat pour des applications de télécommunication à courte portée mais également dans le domaine du médical et de la sécurité.

Dans ce contexte, mes travaux de thèse, soutenus par la Fondation EADS à travers la bourse qu'elle m'a octroyée, ont pour objectif de mettre à profit la transition réversible du dioxyde de vanadium, pour réaliser des dispositifs travaillant dans la gamme des fréquences térahertz avec des caractéristiques reconfigurables, à l'image des composants reconfigurables dans le domaine des micro-ondes.

Ce manuscrit est structuré en quatre parties. Dans **un premier chapitre**, nous commencerons par faire un bref état de l'art (non-exhaustif) sur les solutions pour réaliser des systèmes reconfigurables dans le domaine des fréquences micro-ondes. Dans ce contexte, nous introduirons l'intérêt d'utiliser les propriétés du dioxyde de vanadium pour concevoir de tels dispositifs. Ensuite, à travers **le second chapitre**, nous nous intéresserons plus particulièrement aux propriétés électriques du dioxyde de vanadium, intégré dans des dispositifs électriques simples, à deux-terminaux. Cela nous permettra de mieux comprendre le mécanisme de sa transition isolant-métal et de mieux utiliser les caractéristiques du matériau lors de sa future intégration dans des composants ou des systèmes. Ensuite, dans **le troisième chapitre**, nous étudierons les propriétés de la transition isolant-métal du  $\text{VO}_2$  aux fréquences térahertz afin de réaliser des dispositifs THz accordables, en utilisant l'actionnement thermique et électrique du matériau. Pour cela, nous intégrerons le dioxyde de vanadium dans des structures périodiques de type métamatériaux, qui sont des matériaux artificiels très étudiés actuellement avec un grand potentiel dans le domaine térahertz. Enfin, dans **un quatrième chapitre**, nous introduirons des perspectives à nos travaux en présentant des pistes sur la réalisation de nouveaux dispositifs térahertz accordables avec des performances améliorées.



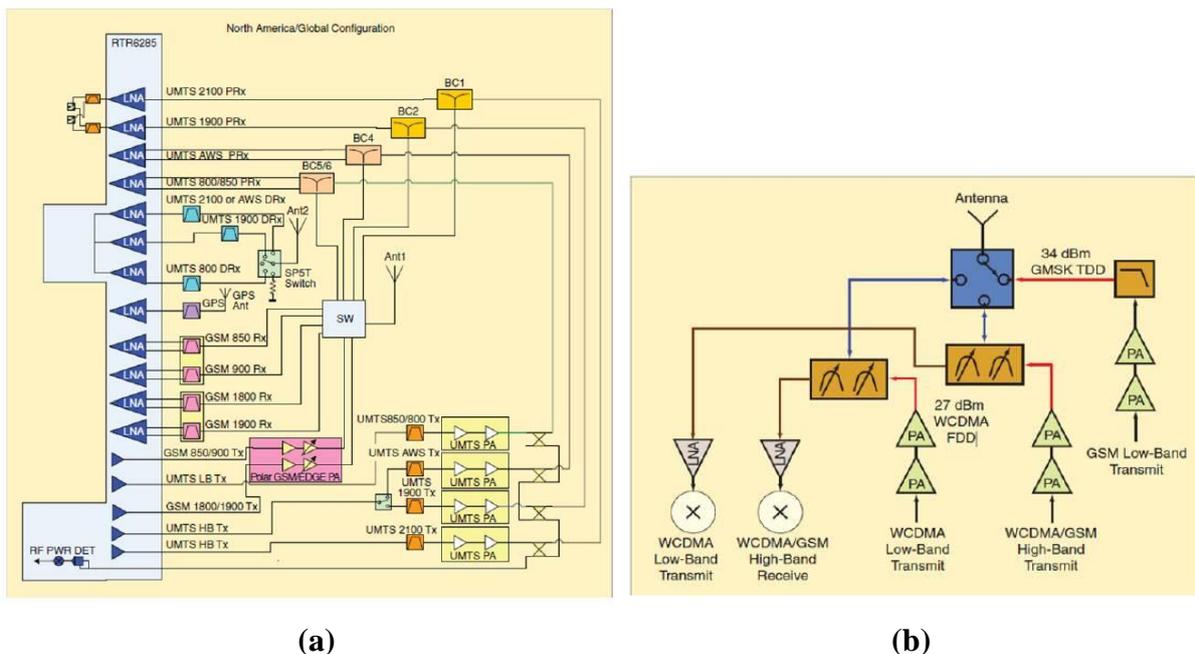
**Chapitre I : Intérêt de l'intégration du dioxyde de vanadium dans la réalisation de dispositifs accordables**



## I.1. Introduction

Dans le domaine de la micro-électronique, la volonté de disposer de systèmes toujours plus compacts et plus performants (vitesse, faible consommation) ont poussé la communauté scientifique à réaliser des composants toujours plus petits. Toutefois, nous arrivons, aujourd'hui, aux limites offertes par les micro- et nanotechnologies et il nous faut nous tourner vers des solutions alternatives pour continuer à satisfaire les demandes toujours croissantes de densité et de vitesse dans l'échange de différents types de données (données, voix, images, etc.).

C'est dans ce contexte que l'on assiste à un développement très important des composants reconfigurables et, notamment, ceux fonctionnant aux fréquences micro-ondes, gamme de fréquences largement utilisée dans les applications de télécommunication. L'objectif de l'utilisation de ces composants, dont les caractéristiques et/ ou les fonctions peuvent être ajustées suivant les besoins sous l'effet d'une commande, est de remplacer des composants individuels similaires réalisant une même fonction mais avec des plages de fonctionnement différentes (ex. domaine de fréquences de fonctionnement). En utilisant ce principe, on peut, par exemple, substituer les différents filtres d'une chaîne d'émission/ réception de téléphonie mobile par un nombre de filtres accordables réduit, dont les propriétés (fréquence centrale, bande utile) peuvent assurer celles des filtres remplacés (**Figure I.1**). La place prise par le système globale de filtrage est ainsi, réduite ce qui permet d'obtenir un système plus compact et potentiellement plus performant.



**Figure I.1 : Illustration du fonctionnement du système d'émission/ réception d'un téléphone mobile actuel (a) et le principe d'une solution disponible dans un futur très proche, utilisant des filtres accordables (b) [Reb09].**

Dans cette première partie, nous réalisons, tout d'abord, une présentation des deux grands types de solutions pour concevoir des dispositifs reconfigurables en les illustrant par des applications dans divers domaines, notamment, celui des micro-ondes. Puis, nous concentrons notre attention sur l'étude du matériau dioxyde de vanadium ( $\text{VO}_2$ ) qui est un matériau dit intelligent, présentant une transition de phase réversible isolant-métal à  $68^\circ\text{C}$ . Nous nous intéressons, entre autres, aux propriétés de cette transition et aux applications dans lesquelles elles peuvent être utilisées, en particulier, comme élément accordable dans le domaine des micro-ondes. Cette première partie est, ensuite, l'occasion de s'intéresser aux méthodes de fabrication du dioxyde de vanadium sous forme de couche mince qui est la forme sous laquelle il sera utilisé dans la suite de ces travaux de recherche. Enfin, nous terminons cette partie en mettant en évidence le caractère très large bande des effets de la transition isolant-métal des films minces de  $\text{VO}_2$ .

## **I.2. Fonctions accordables en micro-électronique**

Dans le domaine de la micro-électronique, les solutions permettant de réaliser des systèmes accordables peuvent se diviser en deux catégories avec d'un côté, les composants accordables et d'un autre côté, l'intégration directe de matériaux intelligents. Avec ces deux grands types de solutions, on peut réaliser de très nombreux systèmes reconfigurables, plus ou moins complexes, dans de nombreux domaines, y compris celui des micro-ondes.

Dans cette gamme de fréquences, les dispositifs accordables tels que des filtres, des déphaseurs, des limiteurs de puissance ou encore des antennes patch peuvent aussi bien reposer sur l'utilisation de composants accordables que sur celle de matériaux intelligents. Le choix de la solution est, en pratique, guidé par les caractéristiques recherchées comme, par exemple, le coût, la simplicité d'intégration ou encore la durée de vie du système.

### **I.2.1. Des composants accordables**

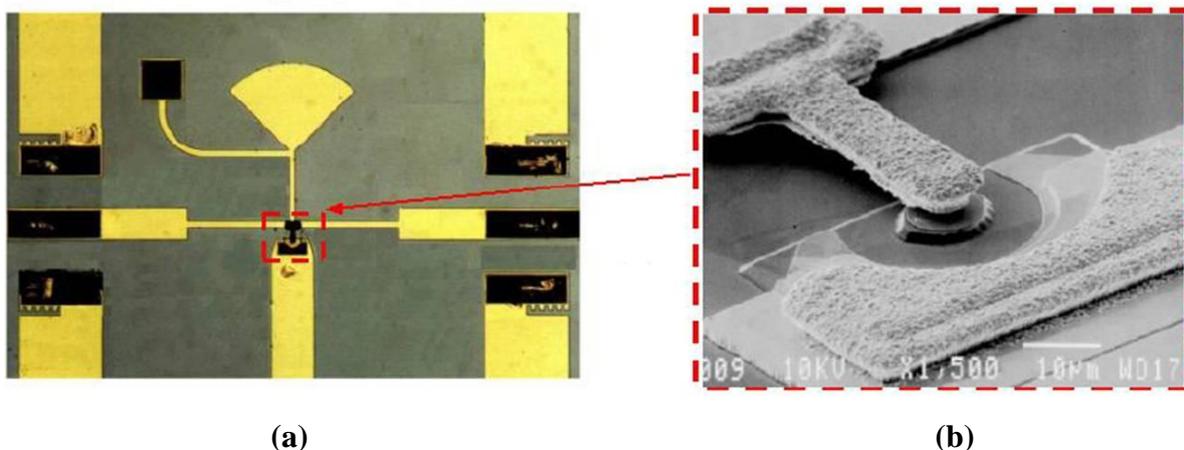
La première catégorie de solutions regroupe les fonctions accordables réalisées par des composants discrets. Parmi ces composants, on trouve, tout d'abord, les jonctions semi-conductrices qui ont été les premières à être utilisées et, plus récemment, les dispositifs

MEMS (Micro-electro-mechanical systems) qui ont permis de développer considérablement les systèmes reconfigurables.

### I.2.1.1. Les jonctions semi-conductrices

Dans le cas des jonctions semi-conductrices, on peut distinguer deux types de composants accordables : les diodes PN, Schottky ou encore les transistors bipolaires qui présentent des fonctions accordables à caractère continu, mais aussi les diodes PIN où l'agilité présente un caractère discret.

Lorsque l'on polarise en sens inverse des jonctions de type Schottky, leur capacité évolue en fonction de la tension appliquée [Uhe91]. Ainsi, en ajoutant ces jonctions dans des circuits résonants de type RLC, on peut faire varier la capacité totale du dispositif de façon continue modifiant alors la fréquence centrale du résonateur. En revanche, les diodes PIN sont utilisées comme des interrupteurs (**Figure I.2**) qui, insérés localement entre plusieurs résonateurs à fréquences de fonctionnement différentes, permettent de faire fonctionner ces résonateurs soit de façon individuelle, soit de façon globale, en fonction de l'état passant ou bloqué de la diode PIN [Ale96].



**Figure I.2 : Commutateur SPST (Single Pole Single Throw) à base de diode PIN (a), image MEB de la diode PIN du commutateur développé par E. Alekseev et al (b) [Ale96].**

Dans le domaine des micro-ondes, les recherches sur les dispositifs accordables ont montré l'intérêt d'utiliser des jonctions présentant une agilité continue (de type diodes Schottky) dans de nombreuses applications : filtres [Uhe91], déphaseurs [Coa93], antennes patch [Has91], adaptateurs d'impédance [Per04], limiteurs de puissance [Ber10]. Les diodes PIN peuvent également être utilisées dans ces différentes applications mais dans le cas où l'on

recherche une accordabilité discrète, sur le modèle d'un commutateur [Lug05, Yan11, Yan02, Jeo05, Smi99].

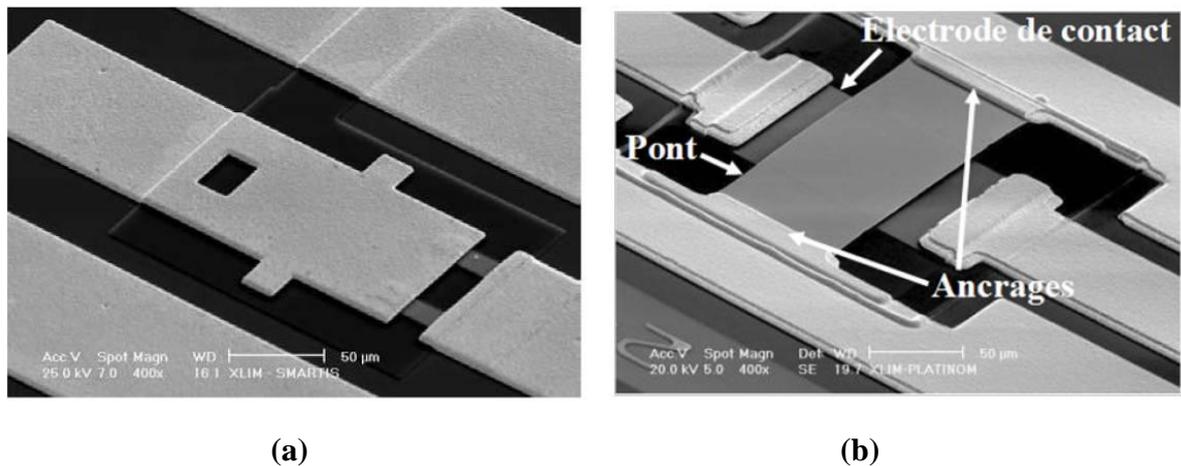
Mise à part leur facilité d'intégration, ces technologies ont l'avantage de présenter une forte variation de capacité (6 à 8) [Pis06], une tension d'activation assez faible ( $< 10$  V) [Pis06] et des temps de commutation relativement rapides pouvant atteindre la nanoseconde [Gau12]. Mais ces technologies ne peuvent pas être utilisées pour des applications au-dessus de 10 GHz, à cause de pertes élevées à ces fréquences [Med09], ou encore pour des dispositifs de puissance, en raison des effets non-linéaires qu'ils développent pour des signaux incidents de forte puissance [Rod91].

Mises à part les jonctions de type Schottky ou PIN, il est aussi possible d'utiliser des transistors à effets de champs ou FET (Field effect transistor) pour la conception de dispositifs micro-ondes reconfigurables [Giv10]. Largement employés dans les applications numériques, les transistors à effets de champs fonctionnent sur le même principe que les diodes PIN avec un état passant caractérisé par une impédance faible et un état bloqué présentant une forte impédance. Dans le domaine des micro-ondes, les principaux transistors à effets de champs utilisés sont les JFET (Jonction FET), les MESFET (Metal semiconductor field FET) et les MOSFET (Metal oxide semiconductor FET). Comparée à l'utilisation des autres jonctions semi-conductrices, l'utilisation des transistors présente à la fois des avantages mais aussi des inconvénients. D'un côté, les FET se caractérisent par un meilleur temps de réponse, une plus faible distorsion du signal ou encore une consommation beaucoup moins importante que les diodes PIN. A l'inverse, les diodes présentent des pertes d'insertion moins élevées et supportent des signaux de puissance plus importants que les transistors.

### **I.2.1.2. Les MEMS : microsystèmes électromécaniques**

Les microsystèmes électromécaniques [Nat67], plus connus sous l'acronyme anglais de MEMS (Micro-electro-mechanical systems) représentent une autre solution dans la catégorie des composants accordables. Ils sont constitués d'un élément mobile pouvant, par exemple, se présenter sous la forme d'un pont à un ou plusieurs ancrages (**Figure I.3**) qui a été suspendu lors de la phase de fabrication par le biais d'une couche sacrificielle. Cet élément suspendu peut se déplacer/ se déformer sous l'effet de certaines commandes (thermiques, électrostatiques, piézoélectriques, magnétiques...) et réaliser des fonctions de capacité variable ou de commutateur. Par exemple, en utilisant une électrode d'actionnement située en dessous de cette structure mobile, il est possible d'obliger cette dernière à se plier en

appliquant une tension entre l'électrode d'actionnement et l'électrode mobile. Selon l'implémentation de l'électrode supérieure, on peut alors distinguer deux comportements distincts. D'un côté, pour la configuration mono-encastrée (**Figure I.3a**), lorsque la poutre s'abaisse de sa position haute à sa position basse, le commutateur passe de l'état bloqué à l'état passant. A l'inverse, dans la configuration bi-encastrée (**Figure I.3b**), c'est lorsque l'élément mobile est en position haute que le signal est passant.



**Figure I.3 : Composant MEMS de type cantilever réalisé à XLIM (a) [Pot03] et de type poutre bi-encastrée réalisé à XLIM (b) [Mar08].**

Depuis leur introduction en 1967 par Nathanson [Nat67], le champ d'application de ces composants s'est considérablement développé en utilisant différents types de couplages électromécaniques.

Les MEMS ont, tout d'abord, été utilisés pour réaliser des applications basses fréquences à travers des micro-capteurs de pression qui ont été intégrés dans des accéléromètres [Tie02]. Ces dispositifs à base de MEMS sont, aujourd'hui, utilisés dans les airbags d'automobiles, dans les manettes de la console de jeu vidéo Wii de Nintendo ou encore dans l'iPhone d'Apple.

La deuxième catégorie de MEMS à laquelle on peut s'intéresser est celle des MEMS optiques ou MOEMS (Micro-opto-electro-mechanical systems) [Fab09]. Dans ces dispositifs, la combinaison des propriétés optiques et du caractère mécanique de ces structures permet de réaliser des micro-miroirs. Ces composants peuvent, par exemple, être utilisés pour générer des impulsions laser de grandes puissances [Fab09] ou encore des systèmes de vidéoprojection [Bou07].

Les technologies MEMS présentent également un intérêt pour le domaine biomédical, notamment, pour le développement des systèmes microfluidiques ou de microanalyse de

systèmes biologiques. Dans ce cadre, les bio-MEMS peuvent être utilisés comme outils de détection (cellules, protéines, virus) [Dal08] ou de manipulation à travers la réalisation de micro-seringues ou de micro-pinces [Pri07].

Enfin, dans le domaine des micro-ondes, on dispose des MEMS-RF qui sont généralement actionnés par une commande électrostatique et qui peuvent se diviser en deux types de structures, en fonction du contact réalisé entre l'élément mobile et l'électrode d'actionnement. Premièrement, nous distinguons les composants MEMS à contacts ohmiques [Ste11], fonctionnant comme des interrupteurs micromécaniques, qui sont généralement utilisés pour des applications basses fréquences ( $< 1$  GHz). Une deuxième classe de composants est constituée par les MEMS à contacts capacitifs [Lac08] : l'ajout d'une couche diélectrique entre la partie mobile et l'électrode d'actionnement permet la réalisation d'éléments à capacité variable. Les MEMS à contacts ohmiques sont plutôt utilisés pour des applications basses fréquences car ils présentent une bonne isolation à l'état bloqué et de faibles pertes d'insertion à l'état passant. Les MEMS capacitifs présentent également de faibles pertes d'insertion à l'état passant mais à des fréquences plus élevées et dans ce cas, c'est le rapport  $C_{\max}/C_{\min}$  qui est utilisé comme indicateur de performance. Pour une architecture optimisée, ce ratio peut être supérieur à 40 au-dessus de 10 GHz [Gau12] tout en ayant une meilleure linéarité que les jonctions semi-conductrices [Pat12]. En revanche, en termes de temps de réponse ( $> 40$  ns) [Gau12] et de durée de vie, les MEMS sont généralement moins performants à cause des effets mécaniques. Ces dispositifs montrent un intérêt croissant dans la réalisation de différents composants accordables : filtres [Ste10], déphaseurs [Che12] ou encore adaptateurs d'impédance [Mal09].

### **I.2.2. Les matériaux dits "intelligents"**

Les matériaux dits intelligents sont des matériaux qui ont la capacité de recevoir des informations de leur environnement et d'interagir avec cet environnement en changeant leurs propriétés (électriques, optiques, mécaniques, etc.) suite à des stimuli externes [Ros00]. Par exemple, les matériaux dits thermochromiques changent de couleur en fonction de la température [Kir10] ; dans ce cas le matériau reçoit une information d'ordre thermique de son environnement et produit une réponse optique dans ce même environnement.

Les propriétés de ces matériaux peuvent être utilisées pour réaliser des fonctions accordables similaires à celles réalisées par les jonctions semi-conductrices ou les dispositifs MEMS. Toutefois, à la différence de ces derniers, la fonction souhaitée est réalisée au niveau

même du matériau et son intégration est rendue beaucoup plus facile, ce qui en résultent des systèmes avec une compacité accrue.

Du fait de leur diversité, il est difficile de réaliser une classification précise et immuable de ces matériaux intelligents. Néanmoins, afin de mieux comprendre leur potentiel du point de vue de leurs applications dans la micro-électronique, nous avons choisi de les classer en fonction de la propriété accordable pertinente lors d'une utilisation pratique. On peut donc distinguer les matériaux à perméabilité accordable, à permittivité accordable ou encore à résistivité accordable [Gev08].

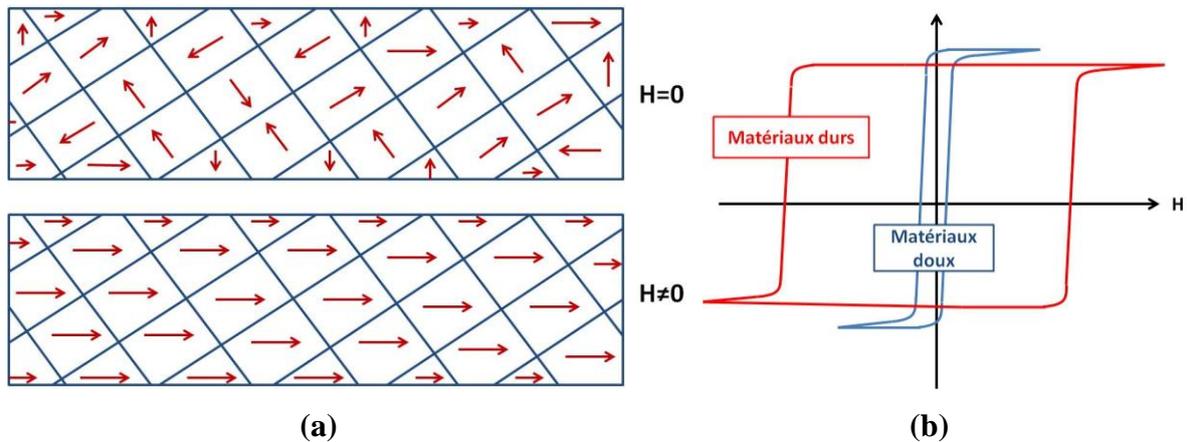
### **I.2.2.1. Les matériaux à perméabilité accordable**

Un exemple de matériaux où l'accordabilité repose sur des variations de perméabilité est donné par les matériaux ferromagnétiques, qui ont la capacité de pouvoir s'aimanter sous l'effet d'un champ magnétique extérieur ce qui se traduit par des variations de perméabilité au niveau macroscopique [Ada02].

La structure de ces matériaux est organisée sous la forme de blocs, appelés domaines de Weiss, dans lesquels le moment magnétique de chaque atome est orienté dans le même sens (**Figure I.4a**). En l'absence de champ magnétique, l'orientation entre les différents blocs n'étant pas la même (orientation aléatoire), l'aimantation macroscopique est quasi nulle. Sous l'effet d'un champ magnétique extérieur, ces différents moments magnétiques s'alignent et une aimantation macroscopique apparaît. Mais lorsque le champ magnétique ambiant diminue, certains blocs conservent l'orientation imposée par les champs magnétiques plus importants. Il est alors possible d'observer dans le matériau une aimantation macroscopique résiduelle qui se traduit par la présence d'un cycle d'hystérésis. En fonction du matériau, l'aimantation résiduelle est plus ou moins forte et c'est sur cet élément que l'on distingue les matériaux magnétiques doux, présentant un cycle d'hystérésis étroit, et les matériaux magnétiques durs, avec une aimantation résiduelle beaucoup plus importante (**Figure I.4b**). Cette aimantation varie également en fonction de la température puisqu'au-dessus d'une certaine température, appelée température de Curie, l'agitation thermique provoque une diminution des interactions et annule l'aimantation spontanée, le matériau est paramagnétique.

L'utilisation de ces matériaux dans des composants micro-ondes repose sur leurs variations de perméabilité qui permet la réalisation de déphaseurs [Lem11], de filtres [Pop12] ou encore d'antennes patch [Kum04]. Cette solution est toutefois limitée car elle nécessite

l'utilisation d'électro-aimants encombrants et très consommateurs d'énergie, pour générer des champs magnétiques suffisamment intenses.



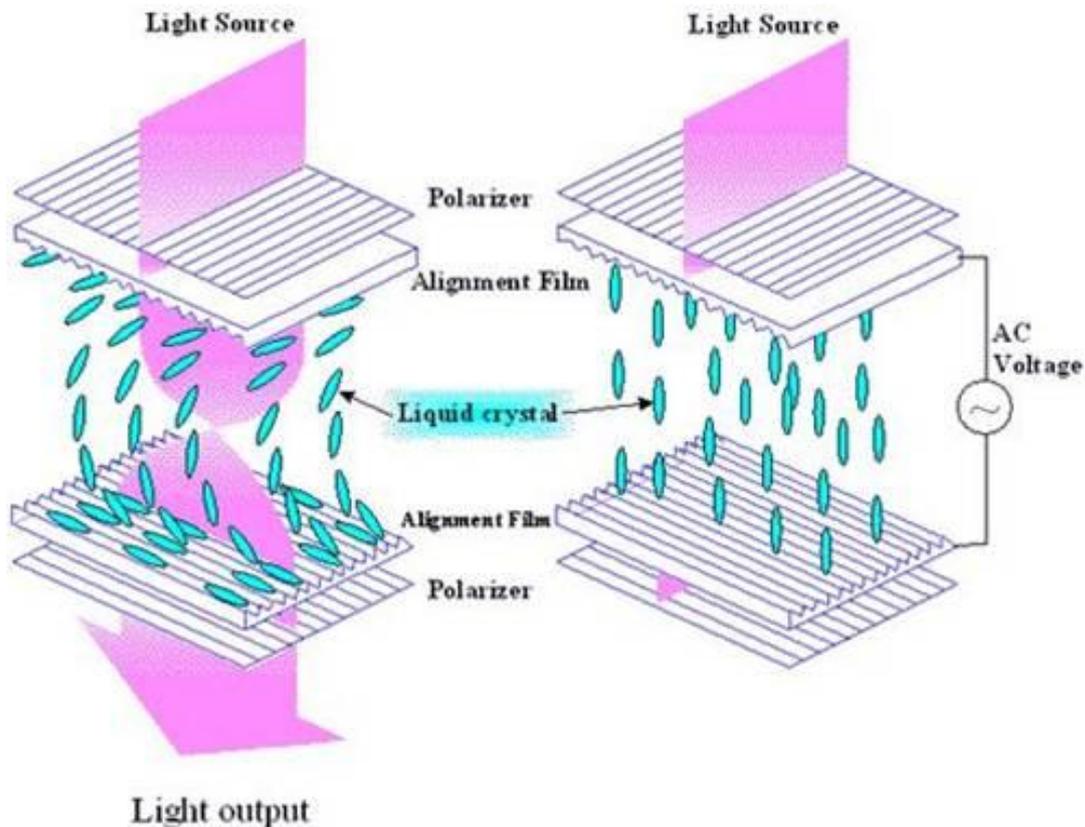
**Figure I.4 : Orientations des blocs de Weiss dans un matériau ferromagnétique sans et avec champ magnétique extérieur (a), allures des cycles d'hystérésis des matériaux magnétiques durs et doux (b).**

### I.2.2.2. Les matériaux à permittivité accordable

Parmi les matériaux à permittivité accordable, on peut, tout d'abord, citer le cas des cristaux liquides, des structures à l'état intermédiaire entre l'état liquide et l'état solide [Bar60]. Ces états ont la particularité de présenter à la fois un caractère ordonné dans certaines directions et désordonné dans d'autres qui les font ressembler, respectivement, à un état solide et liquide. Suivant l'importance du désordre, les propriétés de ces états se rapprochent alors plus ou moins de celles d'un liquide ou d'un solide. Il est possible de faire transiter un état cristaux liquide vers un autre sous l'effet de certains facteurs externes (comme le champ électrique ou encore la température pour les cristaux liquides thermotropes).

Dans le cas des afficheurs de type LCD (Liquid crystals display) [Pap09], c'est justement ces cristaux liquides thermotropes que l'on utilise et, plus particulièrement, ceux constitués de molécules en bâtonnet. Leur forme allongée leur donne une permittivité anisotrope qui provoque un effet polariseur dans le sens de leur longueur. En l'absence de champ électrique, dans l'état nématique qui est l'état le plus proche des liquides, ces molécules ne sont pas alignées et bloquent alors des polarisations différentes de l'onde incidente. De ce fait, les transmissions de chacune des polarisations ne se retrouvent que très peu affectées. Mais lorsque l'on applique un champ électrique à travers une cellule contenant ces cristaux liquides, ces molécules s'alignent et bloquent une unique polarisation de l'onde incidente dont la transmission est alors fortement atténuée. C'est sur ce principe que reposent les afficheurs

LCD (**Figure I.5**) dans lesquels on effectue généralement un traitement par frottement permettant d'aligner les molécules dans la direction perpendiculaire au champ électrique appliqué par la suite.



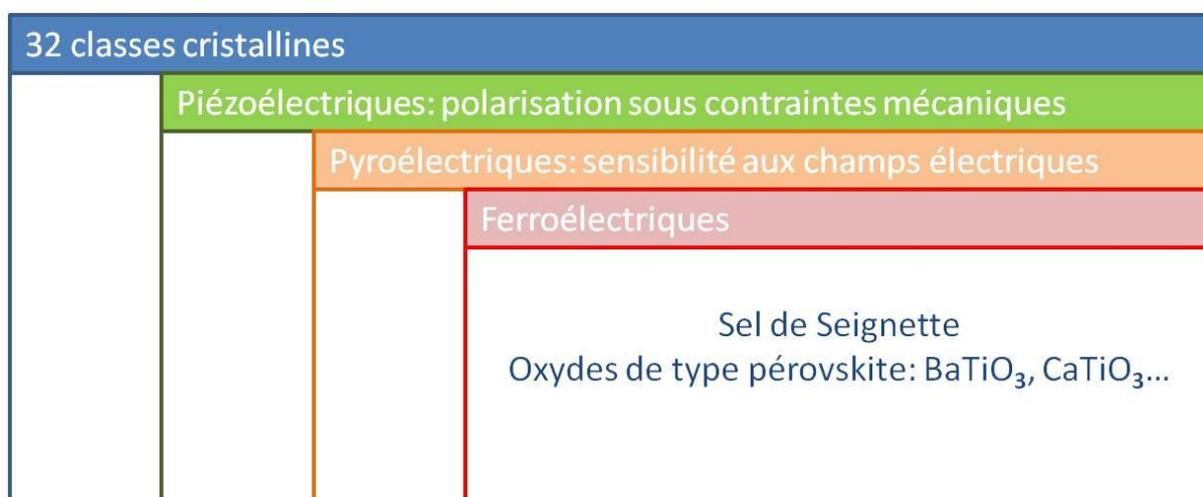
**Figure I.5 : Principe de fonctionnement d'un afficheur de type LCD montrant l'alignement des cristaux liquides sous l'effet d'un champ électrique [Pap09].**

C'est à travers ces afficheurs, largement utilisés, que l'on connaît le mieux les cristaux liquides mais ces derniers peuvent également être utilisés pour réaliser des dispositifs micro-ondes accordables. Les applications rapportées dans cette gamme de fréquences incluent la réalisation de déphaseurs [Dol93] ou d'antennes agiles [Hou97] avec des tensions d'activation assez faibles ( $< 15$  V) [Ten03]. Cependant l'utilisation des cristaux liquides, dans ces applications, est associée à un temps de commutation lent, de l'ordre de la milliseconde.

Dans la catégorie des matériaux à permittivité accordable, on trouve également les matériaux ferroélectriques qui constituent en quelque sorte un équivalent des matériaux ferromagnétiques mais pour lesquels c'est la polarisation électrique et donc la permittivité qui varient en fonction d'un champ électrique appliqué [Fie02].

Comme le montre la **Figure I.6**, les matériaux ferroélectriques correspondent à une sous catégorie des matériaux pyroélectriques qui est elle-même une sous partie des matériaux piézoélectriques. Les piézoélectriques (et à fortiori les pyroélectriques) sont aussi des matériaux intelligents qui possèdent une polarisation variable. Mais à la différence des piézoélectriques et des pyroélectriques, les matériaux ferroélectriques possèdent, comme les matériaux ferromagnétiques, deux particularités :

- une polarisation macroscopique résiduelle lorsque l'on supprime le champ électrique, formant un cycle d'hystérésis ;
- une température de Curie au-dessus de laquelle la polarisation macroscopique disparaît lorsque le matériau transite vers un état paraélectrique.



**Figure I.6 : Place des matériaux ferroélectriques parmi les différentes structures cristallines.**

Les variations de permittivité des matériaux ferroélectriques sont largement étudiées et utilisées dans le domaine des fréquences micro-ondes. Dans ce cas, afin de diminuer les pertes et les tensions d'activation, ces matériaux sont utilisés sous forme de couche mince et dans leur état paraélectrique même si dans cet état, la sensibilité au champ électrique tend à diminuer. Il a été montré que l'on pouvait utiliser des matériaux ferroélectriques dans la réalisation de déphaseurs [Kim05], d'adaptateurs d'impédance [Che04] ou de filtres accordables [Kei98]. Généralement, les composants intégrant des matériaux ferroélectriques en couche mince présentent des rapports de capacité  $C_{\max}/C_{\min}$  supérieurs à 3, des tensions de polarisation inférieures à 10 V et des temps de réponse de l'ordre de 0.1  $\mu\text{s}$  [Pis06, Gau12].

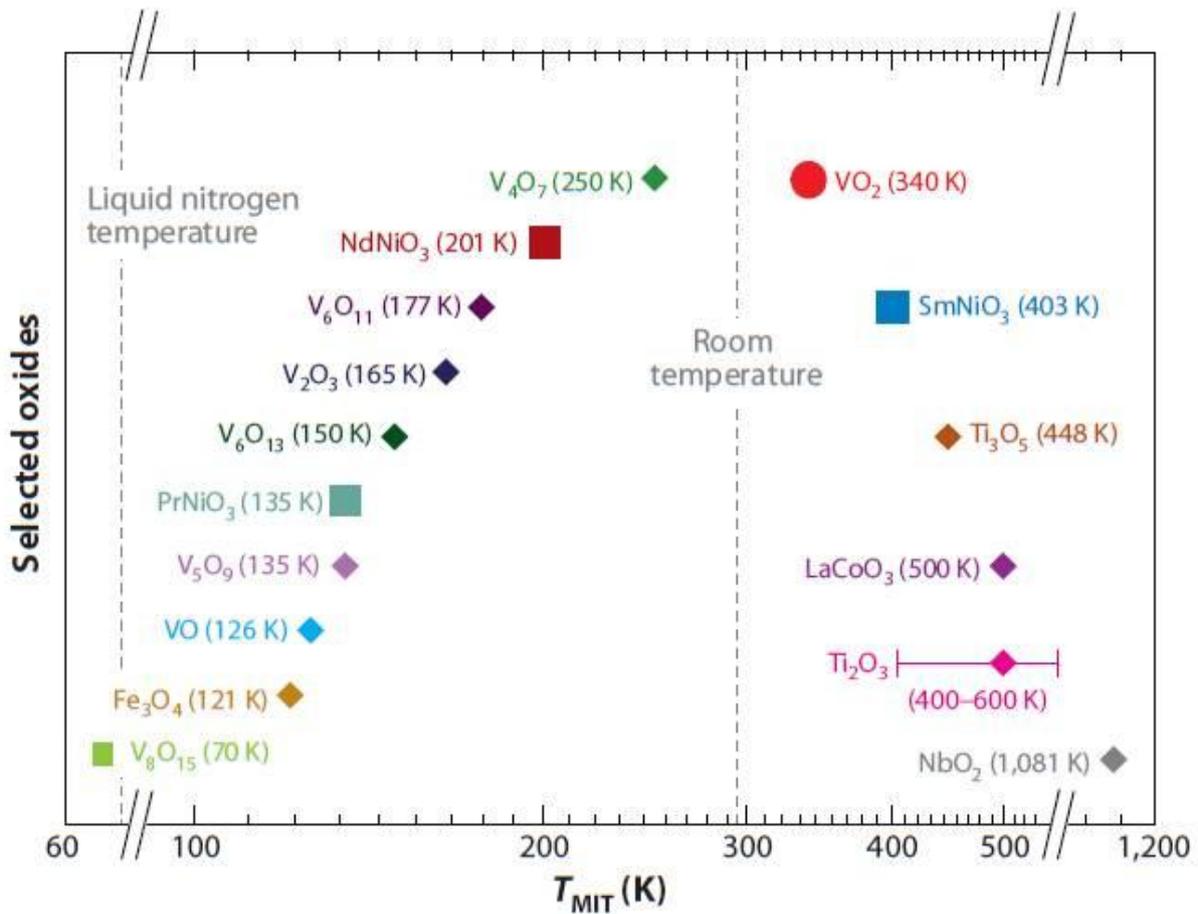
### I.2.2.3. Les matériaux à résistivité accordable

En parcourant la littérature, on s'aperçoit qu'il existe deux grands types d'éléments permettant de réaliser des composants accordables basés sur un changement de résistivité [Gev08]. Il est, par exemple, possible d'utiliser les plasmas présents dans les semi-conducteurs (Si, GaAs, SrTiO<sub>3</sub>) ou dans les gaz. Mais en l'occurrence, nous avons choisi de nous intéresser au cas des oxydes métalliques à transition de phase.

Les matériaux fortement corrélés c'est-à-dire les matériaux présentant de fortes interactions électroniques représentent une piste sérieuse pour la réalisation de dispositifs où l'accordabilité est basée sur des variations de résistivité. Dans ces matériaux, la présence de certaines orbitales atomiques, notamment celles de type d, engendre la formation de bandes d'énergie plus étroites, partiellement remplies et proche du niveau de Fermi créant alors de fortes interactions électroniques. Ainsi, le modèle des électrons libres, que l'on applique au cas des métaux simples, ne peut être utilisé car il implique l'hypothèse que les électrons soient indépendants les uns des autres. Pour expliquer le comportement de ces matériaux corrélés, il faut alors faire appel à des théories beaucoup plus complexes comme le modèle d'Hubbard [Hub63], dans lequel on suppose que les électrons se déplacent d'un atome d'un métal de transition à un autre sans se préoccuper de son environnement (ex. atomes d'oxygène). Dans ces conditions, ce modèle considère qu'il est possible de déterminer les propriétés de transport en tenant compte seulement de la compétition entre la propagation des électrons et l'interaction entre ces derniers. Malgré cette complexité, les matériaux fortement corrélés sont très intéressants car les interactions entre électrons corrélés qui sont présentes dans ces matériaux leur confèrent des propriétés remarquables. Une classe particulière des matériaux à électrons corrélés est constituée par les oxydes métalliques de transition qui, selon la définition de l'UICPA (Union Internationale de Chimie Pure et Appliquée), correspondent aux éléments présentant une sous couche d incomplète ou pouvant donner un cation avec une sous couche d incomplète. Certains de ces oxydes (dont des membres de la famille des oxydes de vanadium) présentent une transition de phase réversible isolant-métal ou MIT (acronyme anglais de "Metal-insulator transition") qui est accompagnée par un changement abrupt de leurs propriétés (électriques, diélectriques ou optiques), suite à l'application de stimuli externes tels que la température, l'application de champs électriques ou de signaux optiques...

Pour les matériaux intelligents cités précédemment, l'accordabilité était basée sur les variations dans un état particulier, par exemple, la variation de permittivité de l'état nématique des cristaux liquides. Mais dans le cas des oxydes à transition isolant-métal, on recherche à

utiliser les variations de résistivité qui sont observées lors de la transition isolant-métal du matériau car elles peuvent être à la fois rapides et très importantes. Les matériaux présentant des transitions MIT sont caractérisés par leur température de transition (**Figure I.7**). À travers le tableau ci-dessous, on constate qu'il existe une grande diversité d'oxydes métalliques à transitions MIT avec des températures de transition variables [Yan11] allant de 70 K pour le  $V_8O_{15}$ , à 1081 K qui est la température caractéristique de la transition du  $NbO_2$ .

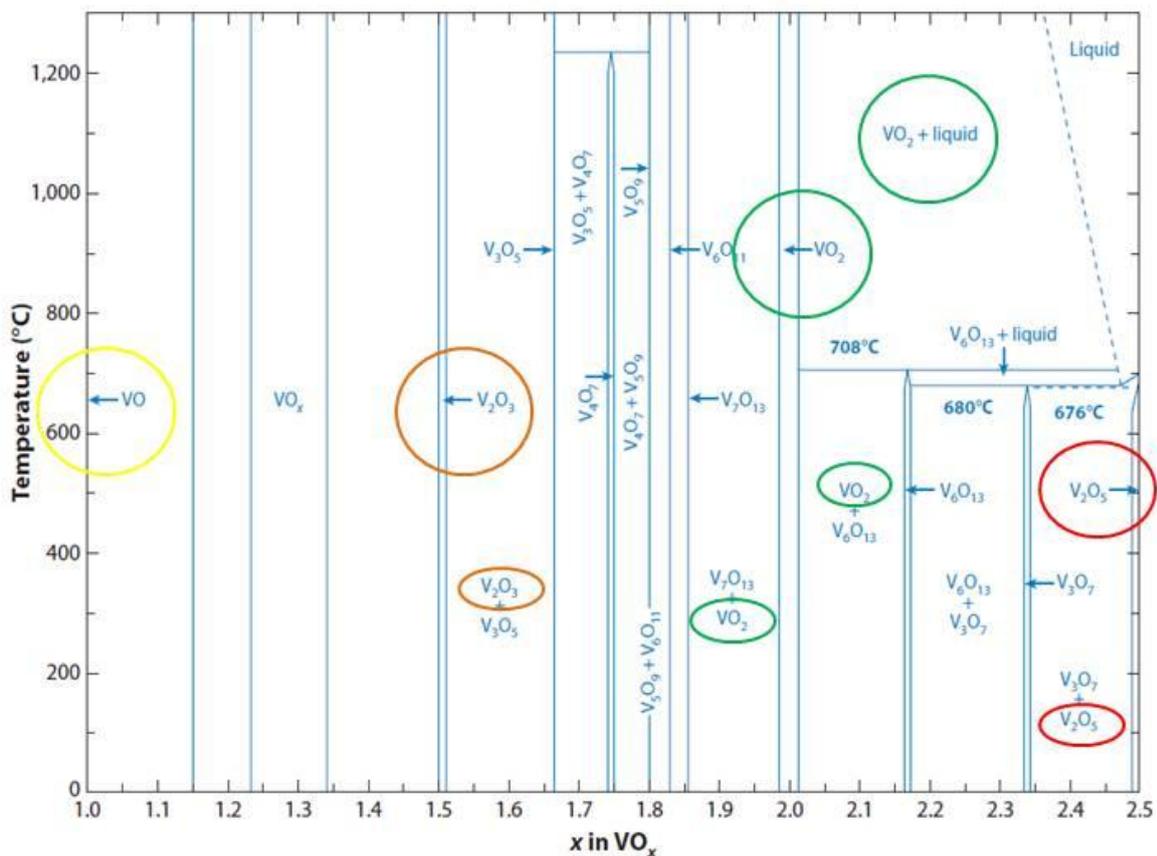


**Figure I.7 : Les différents oxydes métalliques présentant une transition isolant-métal classés en fonction de leur température de transition [Yan11].**

Tout comme les autres solutions d'accordabilité, les matériaux à résistivité accordable peuvent être utilisés pour réaliser de nombreux systèmes reconfigurables et, notamment, dans le domaine des micro-ondes (filtres accordables, limiteurs de puissance...). Mais afin d'étudier plus en détails ces applications, nous allons nous intéresser au cas du dioxyde de vanadium qui fait partie de ces matériaux à résistivité accordable présentant une transition MIT.

### I.3. Le dioxyde de vanadium et sa transition isolant-métal

Parmi les oxydes métalliques à transition MIT, la famille des vanadates (**Figure I.8**) fait actuellement l'objet d'une grande attention de la part de la communauté scientifique. Les différentes recherches sur ces composés ont mis en évidence des transitions MIT dans bon nombre d'entre eux comme l'oxyde de vanadium (VO), le sesquioxyde de vanadium ( $V_2O_3$ ) [Ric70], le dioxyde de vanadium ( $VO_2$ ) [Mor59] ou encore le pentoxyde de vanadium ( $V_2O_5$ ) [Atu08]. Si certains présentent des températures de transition très faibles, de 150 K (soit environ  $-120^\circ\text{C}$ ) pour le  $V_2O_3$ , d'autres présentent des températures de transition très élevées comme, par exemple, celle du  $V_2O_5$  qui est de 523 K (soit  $150^\circ\text{C}$ ).



**Figure I.8 : Les différents oxydes de vanadium dont ceux montrant une transition isolant-métal sont entourés [Yan11].**

Dans ce contexte, Morin a mis en évidence, en 1957, que le dioxyde de vanadium présente une transition de phase réversible isolant-métal à  $68^\circ\text{C}$  (341 K) [Mor59]. Ainsi, contrairement aux autres oxydes métalliques de la même famille, cette transition se produit à une température proche de la température ambiante ce qui permet de l'étudier et de l'utiliser de

façon beaucoup plus simple, sans avoir besoin d'un environnement expérimental complexe (ex. moyens cryogéniques). Mais comme nous allons le montrer par la suite, l'intérêt de la transition MIT du VO<sub>2</sub> réside également dans les différentes variations de propriétés du matériau qu'elle provoque et dans la diversité des stimuli externes qui la déclenchent, permettant son utilisation dans une vaste gamme d'applications.

### **I.3.1. Les effets de la transition isolant-métal du VO<sub>2</sub>**

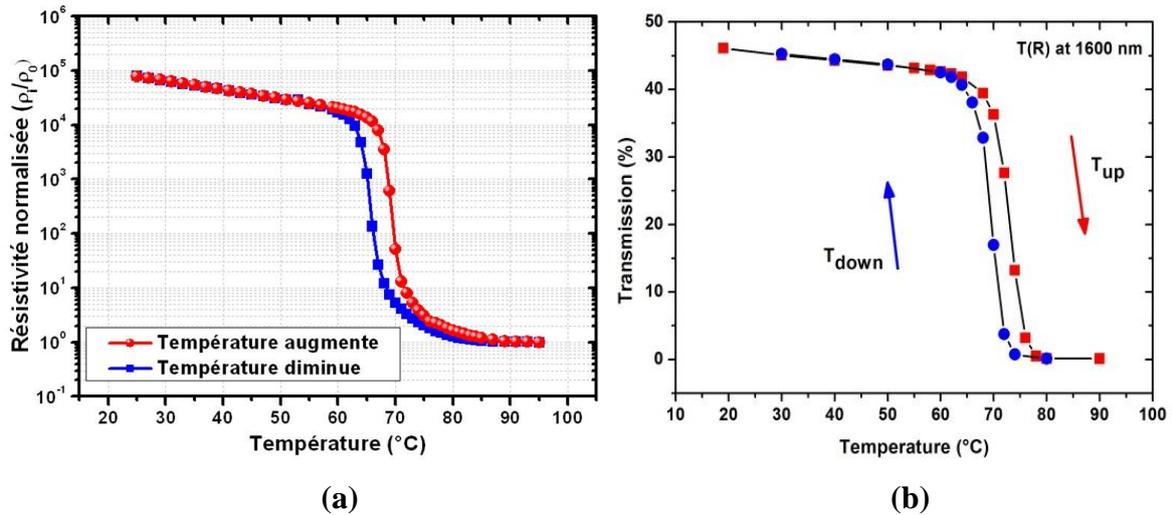
La transition MIT qui se produit dans le dioxyde de vanadium engendre d'importantes variations dans les propriétés du VO<sub>2</sub> et, notamment, lorsque celui-ci se présente sous la forme de films minces. On observe, par exemple, des variations au niveau des propriétés électriques, électromagnétiques, optiques et mécaniques du matériau.

#### **I.3.1.1. Caractéristiques électriques et optiques de la transition MIT du VO<sub>2</sub>**

La transition réversible MIT des couches minces de VO<sub>2</sub> est une **transition ultra-rapide** (< ps) qui est accompagnée par une **modification abrupte et drastique de ses propriétés électriques et optiques**. Elle peut être déclenchée thermiquement [Mor59, Per03], électriquement [Ste00, Kim04, Kim08], optiquement [Cav01, Cav04] ou même sous l'effet de pressions ou de contraintes externes [Sak08]. A température ambiante, le VO<sub>2</sub> se comporte comme un isolant avec une structure cristalline monoclinique mais au-dessus de 68°C (température de transition), le matériau se transforme brutalement et acquière le comportement d'un métal avec une structure tétragonale rutile.

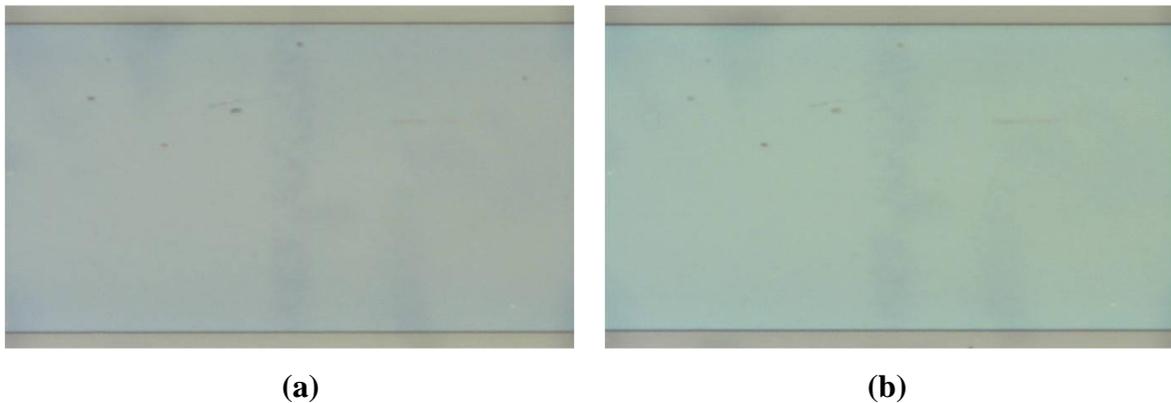
Comme on le constate sur la **Figure I.9a**, les effets de la transition s'observent, tout d'abord, au niveau de la résistivité DC des films minces de dioxyde de vanadium. En dessous de 68°C, le matériau étant à l'état isolant, il présente une résistivité très importante alors qu'à l'état métallique au-dessus de 68°C, il se caractérise par une résistivité faible. Ainsi, lors de la transition MIT, on observe une importante variation de la résistivité DC du VO<sub>2</sub> avec un rapport de résistivité entre les deux états pouvant atteindre 5 ordres de grandeur.

Mise à part une variation de la résistivité du film de VO<sub>2</sub>, la transition isolant-métal engendre, ensuite, des changements de propriétés dans le proche infrarouge (**Figure I.9b**). Dans ce cadre, on observe une importante variation de la transmission du film de VO<sub>2</sub> entre l'état isolant caractérisé par une transmission élevée (45 % à 20°C) et l'état métallique, où la transmission est pratiquement nulle.



**Figure I.9 :** Effet de la transition MIT sur la résistivité normalisée (résistivité à  $T$ /résistivité à  $T_{max}$ ) d'un film de  $VO_2$  de 100 nm d'épaisseur, en (a), et sur la transmission dans le proche infrarouge d'un film de  $VO_2$  de 200 nm d'épaisseur, en (b).

Enfin, on note que les effets de la transition MIT du  $VO_2$  se matérialisent également par des variations dans la couleur du matériau. Autrement-dit, les longueurs d'onde qui sont transmises, réfléchies et/ou absorbées par le matériau varient en fonction de l'état du  $VO_2$  (**Figure I.10**). À ce titre, le dioxyde de vanadium est considéré comme un matériau thermochromique.

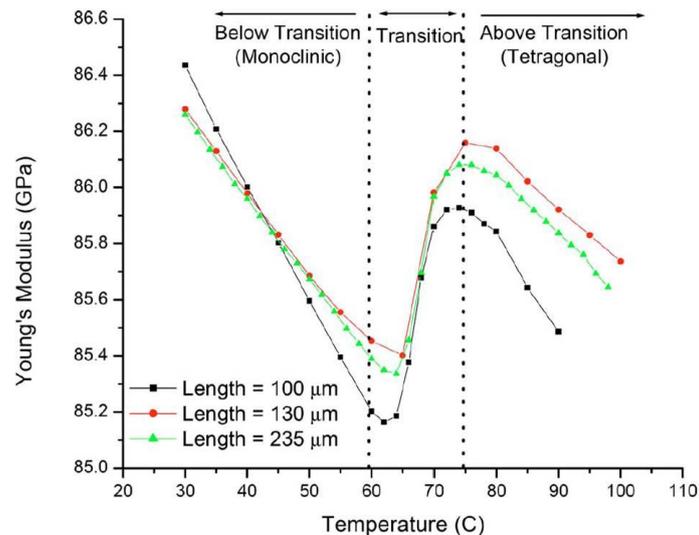


**Figure I.10 :** Variation de couleur observée par microscopie optique en réflexion entre l'état isolant à 25°C (a) et l'état métallique à 95°C (b) d'un film de  $VO_2$  de 100 nm d'épaisseur déposé sur un substrat de saphir c de 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur.

### I.3.1.2. Des variations d'ordre mécanique

Mis à part son impact sur le comportement électrique et optique du matériau, la transition MIT du  $VO_2$  provoque également des variations au niveau des propriétés mécaniques [Sep08]. Ces effets s'observent, notamment, sur le module de Young du  $VO_2$

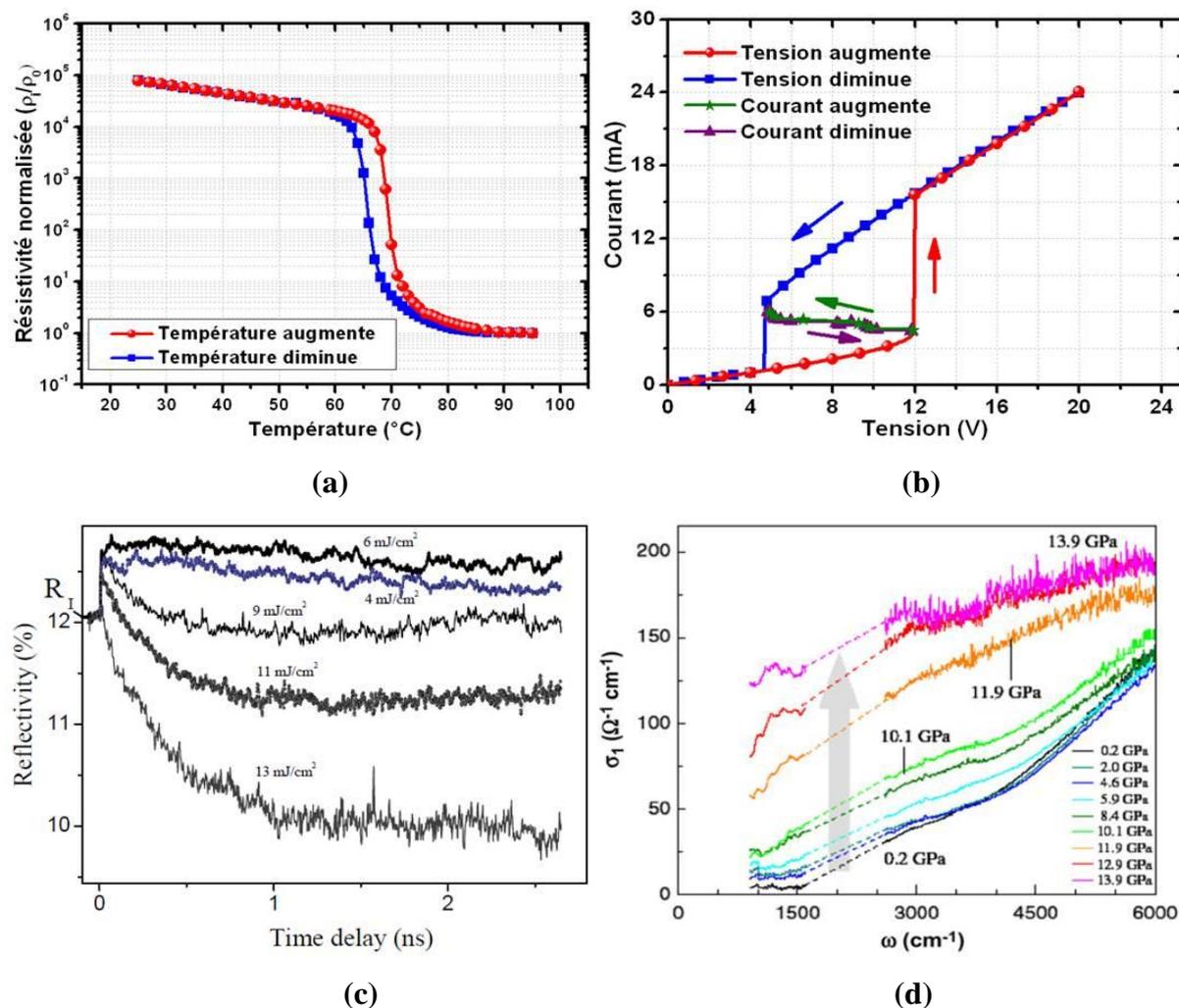
(**Figure I.11**) qui présente une forte non-linéarité à la température de la transition MIT. Dans la phase isolante, entre 30 et 65°C, lorsque la température augmente, le module de Young du film diminue comme dans un matériau classique qui s'allonge si la pression reste constante. Mais lorsque la température atteint 65°C et que le matériau passe à l'état métallique, on observe une forte augmentation de la valeur du module qui met en évidence un matériau qui se rétracte. Puis lorsque la température augmente à nouveau, on retrouve l'évolution d'un matériau classique avec un module de Young qui diminue.



**Figure I.11 : Module de Young en fonction de la température de films de VO<sub>2</sub> déposés sur des cantilevers de 3 longueurs différentes [Sep08].**

### I.3.2. Le déclenchement de la transition MIT du dioxyde de vanadium

L'intérêt de la transition MIT des films de dioxyde de vanadium réside également dans la diversité des stimuli permettant de la déclencher (**Figure I.12**). Comme mentionné auparavant, mise à part la température, la transition du VO<sub>2</sub> peut être déclenchée de façon électrique (tension, courant) [Kim10], optique (absorption de photons) [Rin05, Vin05] et même mécanique, sous l'effet d'une pression ou d'un stress [Per08] ce qui peut avoir différents avantages, par exemple, dans des applications de capteur (température, pression).



**Figure I.12 : Illustration des différents modes de déclenchement de la transition MIT du VO<sub>2</sub> : activation thermique (a), activation électrique (injection de porteurs sur un dispositif à deux électrodes) (b), optique (variations ultra-rapides de la réflectivité d'un film de VO<sub>2</sub> lors de l'injection de photons) (c) [Vin05] et mécanique (variations de la conductivité optique d'une couche de VO<sub>2</sub> soumise à différents niveaux de pression) (d) [Per08].**

En fonction de l'application souhaitée et des moyens disponibles, il peut être plus intéressant d'utiliser un stimulus plutôt qu'un autre pour déclencher la transition MIT dans le VO<sub>2</sub>. Pour de simples tests, pour la caractérisation des couches minces, on peut opter pour l'activation thermique qui nécessite juste un élément chauffant (de type Peltier) et un contrôleur de température alors que pour l'intégration des films dans le composant final, il est plus facile d'utiliser un stimulus électrique (injection de porteurs) pour lequel il suffit de relier un motif de dioxyde de vanadium à une alimentation électrique via des électrodes de contrôle et d'actionnement. Ensuite, l'activation peut être choisie en fonction de la vitesse à laquelle se

produit la transition MIT. Généralement, elle est assez lente dans le cas d'un déclenchement en température mais elle peut, au contraire, être beaucoup plus rapide lors d'une activation optique, avec des temps de commutation pouvant atteindre la centaine de femtosecondes [Cav01]. Enfin, l'utilisation de certains stimuli permet de mettre en évidence des effets particuliers de la transition comme certaines non-linéarités que l'on observe dans les caractéristiques courant-tension (I-V) du VO<sub>2</sub>, lors d'une activation électrique, qui seront décrites dans le chapitre II du manuscrit.

On peut également rajouter que, pour chacun de ces stimuli, y compris la température, les conditions dans lesquelles se déclenche la transition (vitesse, valeur seuil) dépendent de nombreux paramètres à prendre en compte aussi bien dans la phase de conception du dispositif intégrant le matériau que dans la phase d'utilisation. Par exemple, lors de la phase de conception, le choix du substrat, l'utilisation de dopants métalliques (Au, W..) a un impact net sur la température réelle de transition du matériau.

### **I.3.3. L'origine de la transition MIT dans le dioxyde de vanadium**

Il existe différentes théories permettant d'expliquer les transitions MIT qui se produisent dans différents matériaux, dont certaines mettent en jeu des mécanismes purement électroniques alors que d'autres reposent sur des effets plus complexes. Si pour certains matériaux, le mécanisme à l'origine de cette transition est, aujourd'hui, clairement identifié y compris pour certains oxydes de vanadium, en revanche, dans le cas du dioxyde de vanadium, ce mécanisme est encore l'objet de nombreuses recherches plus ou moins concordantes.

#### **I.3.3.1. Les mécanismes des transitions MIT**

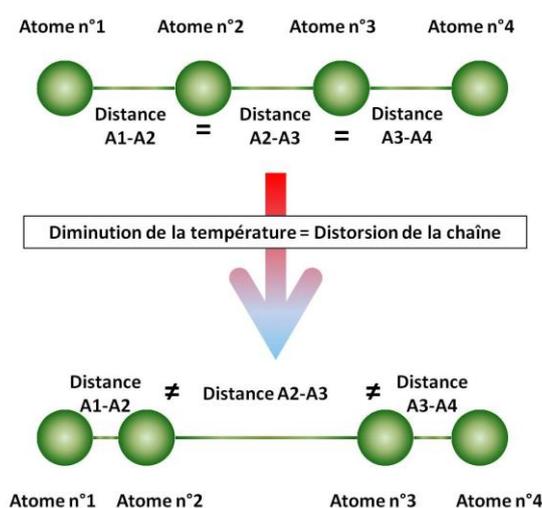
La première théorie visant la transition MIT est celle des transitions de Mott, ou plus précisément de Mott-Hubbard, qui reposent sur des interactions purement électroniques [Mot68]. Ces transitions se produisent, dans certains matériaux appelés isolants de Mott, au moment où la densité de charge devient supérieure à une valeur critique. Dans ce cas, les interactions entre les électrons dues à la répulsion coulombienne deviennent plus importantes que les interactions formant les paires trou-électron ce qui provoque une délocalisation des électrons et un phénomène de "métallisation" (comportement semblable à un métal). La densité de charge au-dessus de laquelle le matériau se "métallise" est appelée densité de charge critique  $n_c$  et se définit à l'aide du critère de Mott :

$$n_c^{1/3} a_h = 0.2 \quad (\text{I.1})$$

avec  $a_h$  : le rayon de l'atome métallique, plus connu sous le nom de rayon de Bohr.

Au niveau macroscopique, cette transition de Mott se traduit par une variation significative de la résistivité du matériau. Des transitions MIT de type Mott-Hubbard ont, par exemple, été montrées dans le cas d'un autre oxyde de vanadium : le  $V_2O_3$  [Gry08].

Le deuxième mécanisme pouvant expliquer les transitions MIT est le mécanisme de Peierls [Pei65] qui met en jeu des interactions entre électrons et phonons (Figure I.13). Dans ce cas, la transition MIT, liée à la variation de résistivité du matériau, est la conséquence d'un autre mécanisme. À température élevée, les matériaux répondant à ce mécanisme sont vus comme des structures dans lesquelles les atomes sont équidistants et où l'énergie thermique apportée permet aux électrons de passer d'atome en atome : le matériau possède les caractéristiques d'un métal. Lorsque la température décroît, la structure commence à se déformer (changement de structure cristalline ou de phase) et la distance entre les atomes varie. Ainsi, suivant l'endroit où il se trouve, un électron a besoin d'une énergie plus ou moins importante pour passer d'un atome à un autre. À ce stade, l'énergie thermique étant encore suffisante pour franchir n'importe quel gap d'énergie, le matériau reste métallique. Mais si la température diminue en dessous d'une valeur critique, l'énergie devient trop faible ce qui engendre une localisation des électrons et la formation d'un état isolant que l'on qualifie d'isolant de Peierls.



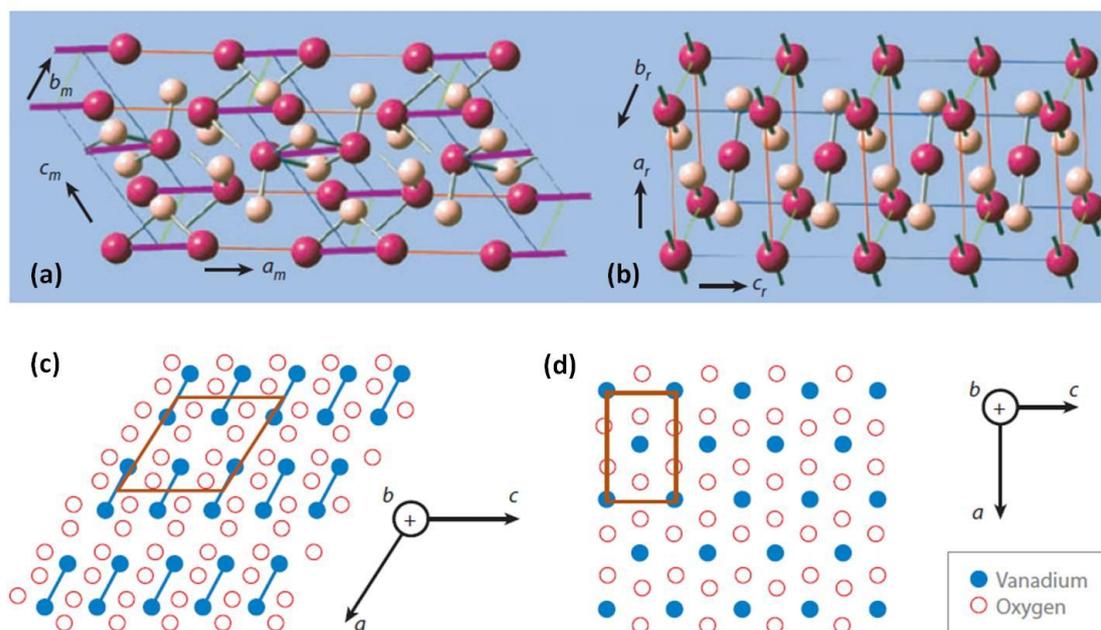
**Figure I.13 : Illustration de la transition MIT de type Peierls dans le cas d'une chaîne atomique linéaire simple.**

Les matériaux fonctionnant sur ce type de mécanisme se reconnaissent assez facilement car en plus de la transition MIT, ils présentent une transition de phase cristalline. Parmi les oxydes métalliques présentant ces caractéristiques, on peut citer le cas du bronze bleu de formule  $K_{0,3}MoO_3$  [Gru88].

Enfin, on peut trouver dans la littérature deux autres mécanismes permettant d'expliquer les transitions MIT : le mécanisme d'Anderson [And58] et celui des isolants de Bloch-Wilson [Wil31]. La transition d'Anderson s'applique aux matériaux qui présentent un fort dopage provoquant un désordre important dans la structure et par conséquent, une localisation des porteurs de charge. Au contraire, le mécanisme des isolants de Bloch-Wilson s'applique aux matériaux non dopés comme le diamant dans lequel la métallisation apparaît à la suite d'une contraction du volume qui provoque un chevauchement des bandes d'énergie.

### I.3.4.2. La transition MIT du dioxyde de vanadium

Dans le dioxyde de vanadium, comme montré sur la **Figure I.14**, la transition MIT s'accompagne également par un changement au niveau de la maille cristalline du matériau. En dessous de  $68^\circ\text{C}$ , dans son état isolant, le  $VO_2$  présente une structure de type monoclinique mais lorsque la température augmente et devient supérieure à  $68^\circ\text{C}$ , le matériau transite vers son état métallique et acquière également une structure de type tétragonal rutile [Bau07].



**Figure I.14 : Transition de phase lors de la MIT du VO<sub>2</sub>, d'une structure de type monoclinique en dessous de 68°C vers une structure de type tétragonale rutile au-dessus de 68°C, respectivement, en vue en 3D (a et b) et en coupe (c et d) [Bau07].**

Ainsi, les premières explications du mécanisme à l'origine de la transition MIT du dioxyde de vanadium se sont orientées vers un mécanisme de type Peierls. Cependant, la rapidité de la transition MIT induite de manière optique (à l'échelle de quelques centaines de femtosecondes) [Cav01, Cav04] est incompatible avec un mécanisme structurel de type Peierls, se déroulant à priori sur une échelle de temps beaucoup plus lente.

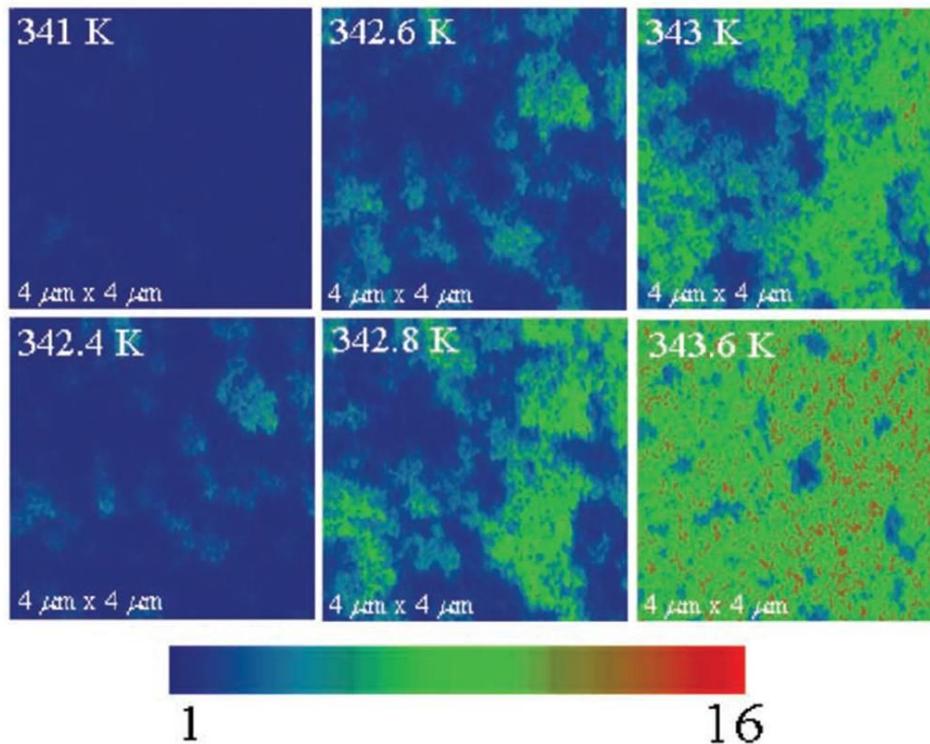
Bien qu'un grand nombre d'études théoriques et expérimentales ont été consacrées à la compréhension de la transition MIT dans le VO<sub>2</sub>, il n'y a toujours pas de consensus concernant les mécanismes physiques entraînant cette transition de phase. Les premières recherches sur le sujet sont celles de Zylbersztein & Mott [Zyl75] qui ont émis l'hypothèse que la transition MIT de VO<sub>2</sub> ne pouvait pas uniquement s'expliquer par une transition de type Mott-Hubbard. Sur cette base, de nouvelles recherches ont été effectuées et ont mis en évidence la présence de la transition de phase cristalline. Dans ce contexte, ces recherches ont conclu que la transition MIT est une conséquence de la transition de phase structurelle et que le dioxyde de vanadium est un isolant de Peierls. On retrouve ces mêmes conclusions jusqu'aux années 2000 avec, par exemple, les publications de Cavalleri et al [Cav04]. Mais plus récemment, de nouveaux travaux réalisés par Kim et al [Kim06] sur l'actionnement électrique du VO<sub>2</sub> (injection de porteurs) ont montré un découplage entre une transition de Mott, purement électronique et rapide, et une transition structurelle de phase, plus lente. Dans ces recherches, Kim et al. constatent que ces deux transitions ne se produisent pas de façon simultanée et que l'on observe entre les deux la présence d'une phase métallique de type monoclinique.

#### **I.3.4. Le processus de percolation isolant-métal lors de la transition MIT du dioxyde de vanadium**

Mis à part le mécanisme à son origine, on peut également s'interroger sur la l'évolution physique des phases structurelles lors de la transition MIT du dioxyde de vanadium.

Une étude particulièrement intéressante de Qazilbash et al [Qaz07] permet de distiller des informations importantes concernant l'évolution à l'échelle nanométrique du matériau

lors de l'actionnement en température de la transition MIT. Les auteurs de cette étude ont utilisé l'imagerie par microscopie optique dans le proche infrarouge pour observer l'évolution des phases structurales présentes dans un film mince de VO<sub>2</sub> lors de sa transition MIT. Sur la **Figure I.15**, nous avons repris les images du film de VO<sub>2</sub>, présentées dans cette publication, pour une augmentation progressive de la température, autour de la température de transition MIT du matériau.



**Figure I.15 : Images obtenues par microscopie dans le proche infrarouge d'un film de VO<sub>2</sub> à différentes températures autour de la température de transition MIT [Qaz07].**

A 341 K, le film de VO<sub>2</sub> présente une surface homogène (faible amplitude) correspondante à une phase isolante (couleur bleue sur la **Figure I.15**). Progressivement, avec la montée en température du film, à partir de 342.6 K, des zones de plus fortes amplitudes (couleurs vertes) apparaissent, qui matérialisent la formation d'une phase métallique dans la matrice isolante initiale. Lorsque la température augmente, ces zones métalliques se multiplient et s'agrandissent (couleurs vertes et rouges). Enfin, lorsqu'on atteint 343.6 K, le film de VO<sub>2</sub> est majoritairement composé d'une phase métallique avec quelques inclusions de phase isolante. A travers ces résultats, Qazilbash et al. concluent à l'apparition d'un mécanisme de percolation isolant-métal lors de la transition thermique MIT du film de VO<sub>2</sub>. Ce phénomène de percolation de domaines nanométriques isolant-métal s'accompagne par la

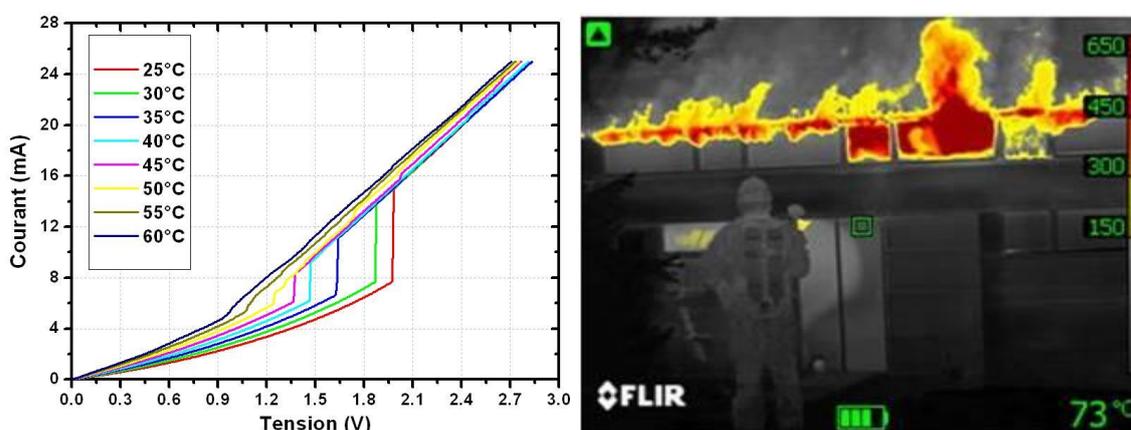
variation (avec la température) de la résistivité du film lors de sa transition MIT et il pourra expliquer certains des phénomènes électriques non-linéaires des caractéristiques courant-tension des films de VO<sub>2</sub> (chapitre II).

### I.3.5. Les différentes applications du dioxyde de vanadium

Les effets de la transition MIT dans le VO<sub>2</sub> peuvent être utilisés dans la conception de divers composants pouvant fonctionner dans une très large gamme de fréquences, allant du domaine DC aux longueurs d'onde optiques, en passant par le domaine des fréquences micro-ondes et térahertz. Le dioxyde de vanadium présente notamment, un intérêt dans la réalisation de capteurs, de commutateurs ou de composants plus spécifiques.

#### I.3.5.1. L'intérêt du VO<sub>2</sub> pour la réalisation de capteurs

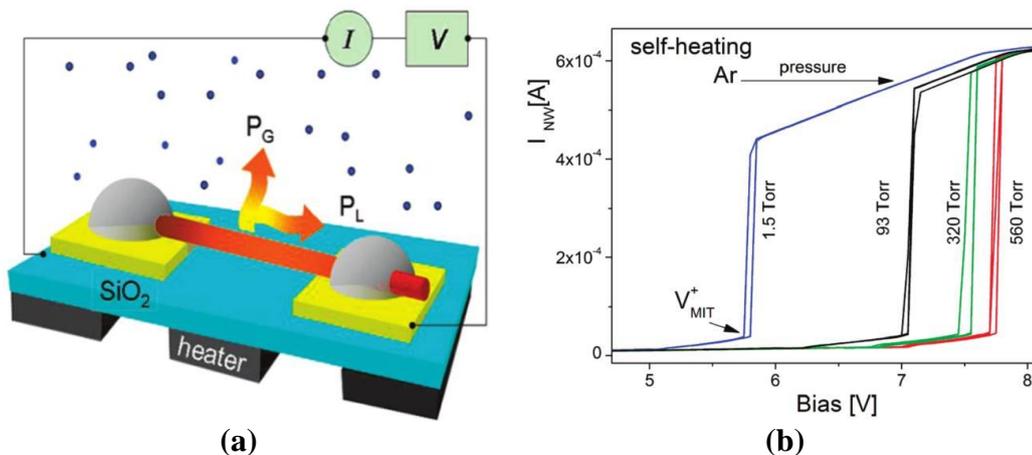
C'est dans le domaine des capteurs de température que l'utilisation du dioxyde de vanadium et de sa transition MIT est, aujourd'hui, la plus développée. Dans ce domaine, le dioxyde de vanadium fut, tout d'abord, utilisé comme simple indicateur visuel de température qui change de couleur en fonction de son état et indique ainsi, si la température est supérieure ou inférieure à une certaine valeur. Depuis, des capteurs de température à base de VO<sub>2</sub> plus performants ont été développés. Ces nouveaux capteurs, beaucoup plus sensibles aux variations thermiques (sous la forme de matrices de micro-capteurs individuels à VO<sub>2</sub> (pixels à dimensions micrométriques)), peuvent servir comme éléments extrêmement sensibles aux champs électromagnétiques, détectant les faibles changements thermiques provoqués par ces champs. Dans ce contexte, on utilise plus particulièrement la sensibilité du changement de résistivité du matériau devant une radiation incidente (**Figure I.16a**) pour réaliser des micro-bolomètres [**Che00**], actuellement, très employés dans les systèmes d'imagerie infrarouges (**Figure I.16b**).



(a) (b)

**Figure I.16 : Caractéristiques I-V en mode tension d'un dispositif à base de VO<sub>2</sub> pour différentes températures (a) et image infrarouge obtenue à l'aide d'un système infrarouge commercialisé par la société FLIR et utilisant un micro-bolomètre à base de couches minces de type VO<sub>x</sub> (b).**

Le dioxyde de vanadium présente aussi un intérêt dans la réalisation de capteurs de pression et de détecteurs de gaz [Str09]. Comme nous l'avons montré précédemment, la transition MIT du dioxyde de vanadium peut également être déclenchée sous l'effet de la pression. De ce fait, en observant les variations de propriétés du matériau (notamment, son changement de résistivité), il devient très facile de déterminer les variations de pression dans l'environnement du matériau. En utilisant le dioxyde de vanadium sous la forme de nanofils (Figure I.17a) plutôt que sous la forme de couches minces, le dispositif devient alors extrêmement sensible et il est possible de l'utiliser comme détecteur de gaz car la pression d'un gaz sera directement proportionnelle à la quantité de molécules adsorbée sur les nanotubes de VO<sub>2</sub> qui, en retour, présenteront des caractéristiques I-V proportionnelles à la quantité de molécules adsorbée. (Figure I.17b).

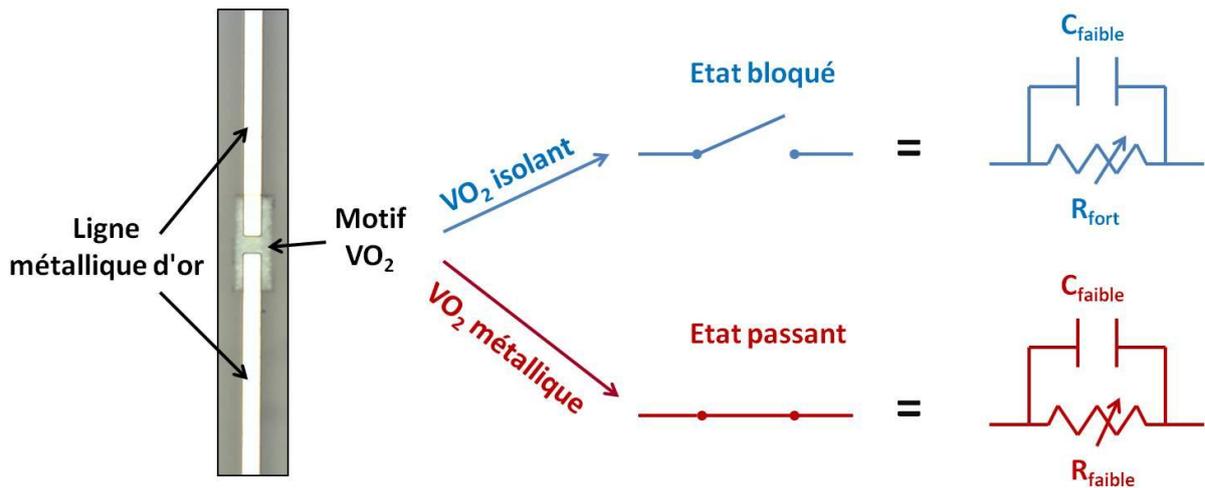


**Figure I.17 : Dispositif de type capteur de gaz intégrant un nanofil de VO<sub>2</sub> (a) et caractéristiques I-V de ce dispositif en mode tension pour différentes pressions d'argon (b) [Str09].**

### I.3.5.2. Des commutateurs pour le domaine des micro-ondes

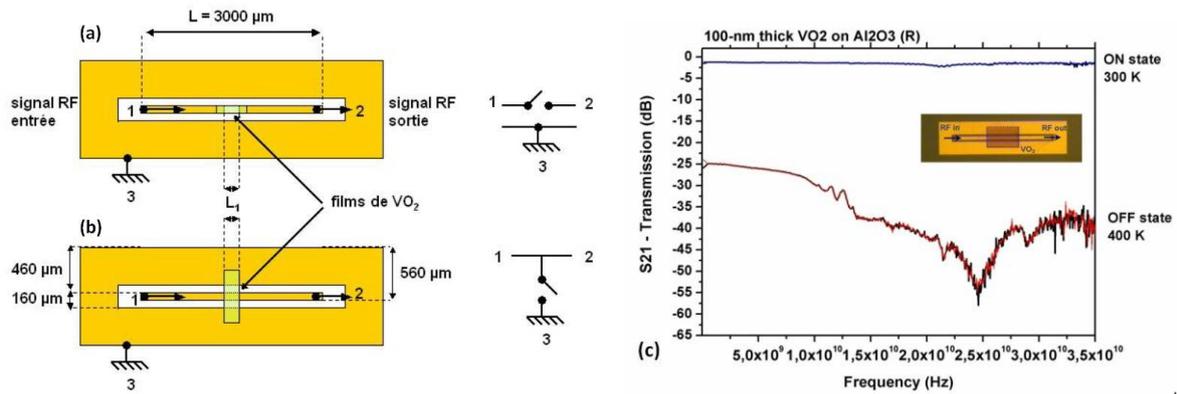
Le dioxyde de vanadium présente également un intérêt marquant dans la réalisation de commutateurs électriques. En comparaison des jonctions semi-conductrices et des MEMS, l'intérêt des commutateurs à base de VO<sub>2</sub> réside dans leur facilité de conception. Comme le

montre la **Figure I.18**, ces commutateurs peuvent se présenter sous la forme de simples dispositifs de type 2-terminaux (2T) dans lesquels un motif de  $\text{VO}_2$  est inséré entre deux électrodes métalliques. Lorsque le motif est isolant, il est équivalent à une forte résistance en parallèle avec une faible capacité, le commutateur est à l'état bloqué (OFF). Au contraire, lorsque le motif est métallique, il peut être schématisé par une faible résistance en parallèle avec une faible capacité, le commutateur est à l'état passant (ON).



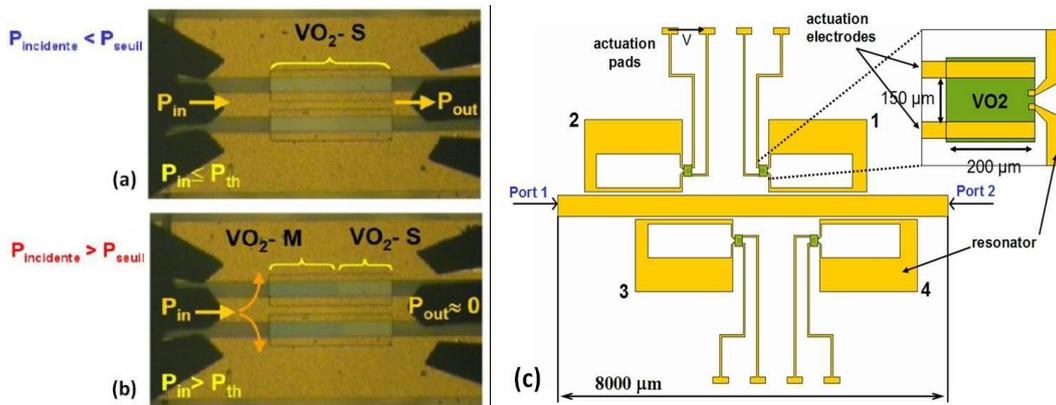
**Figure I.18 : Image d'un commutateur à base de  $\text{VO}_2$  de type 2-terminaux et son schéma électrique équivalent dans l'état isolant et métallique.**

Dans le domaine des micro-ondes, les travaux antérieurs réalisés au laboratoire XLIM ont montré que ces commutateurs simples peuvent être utilisés comme commutateurs micro-ondes, en les insérant dans des guides d'ondes coplanaires, suivant deux types de configurations (**Figure I.19a**). En configuration série (le motif de  $\text{VO}_2$  relie deux parties discontinues de la ligne de signal d'un guide coplanaire), lorsque le  $\text{VO}_2$  est isolant, le signal incident RF est bloqué mais lorsque le motif de  $\text{VO}_2$  devient métallique (en utilisant un actionnement thermique ou électrique), le signal RF est transmis. En configuration parallèle (le motif de  $\text{VO}_2$  reliant la ligne de signal et la masse d'un guide coplanaire) (**Figure I.19b**), on a un phénomène inverse, avec un signal incident RF qui est court-circuité à la masse (réfléchi) lorsque le motif de  $\text{VO}_2$  est métallique et passant lorsque le  $\text{VO}_2$  est à l'état isolant. Suivant la configuration utilisée, ces commutateurs présentent de faibles pertes d'insertion ( $< 1$  dB) à l'état passant et une forte isolation ( $> 25$  dB) à l'état bloqué pour une bande de fréquences allant de 500 MHz à 35 GHz. Ils se caractérisent également par un temps de commutation de l'ordre de 300 ns et une bonne fiabilité ( $> 1$  million de cycles d'activation/désactivation) lors d'un déclenchement électrique de la transition [**Cru10**].



**Figure I.19 : Schémas de commutateurs micro-ondes à base de VO<sub>2</sub> et leur fonction équivalente en configuration série (a), en configuration parallèle (b) et variation de la transmission du signal RF entre l'état isolant et métallique d'un motif de VO<sub>2</sub> en configuration parallèle (c) [Cru07].**

Des travaux réalisés au laboratoire XLIM ont également mis en évidence la possibilité d'utiliser ces commutateurs à base de VO<sub>2</sub> comme briques de base pour fabriquer des structures plus complexes, comme des limiteurs de puissance RF très large bande [Giv10] ou des filtres micro-ondes accordables [Bou09] (Figure I.20).



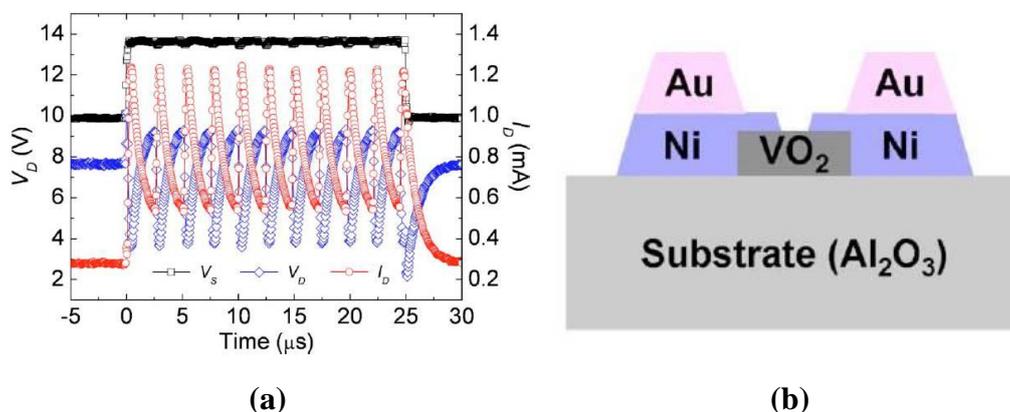
**Figure I.20 : Principe de fonctionnement d'un limiteur de puissance de type disjoncteur à base de VO<sub>2</sub> (a et b) [Giv10] et conception d'un filtre accordable intégrant des motifs de VO<sub>2</sub> (c) [Bou09].**

Enfin, on peut mentionner qu'il est également possible d'utiliser des dispositifs à base de VO<sub>2</sub> pour réaliser des fonctions de commutation dans le domaine de l'optique pour des applications de type filtres accordables, modulateurs ou encore atténuateurs dans ce domaine de fréquences [Crun10].

### I.3.5.3. Dispositifs avancés à base de VO<sub>2</sub> exploitant les caractéristiques électriques non-linéaires de la transition MIT

Mises à part les utilisations dans le domaine des capteurs ou de la commutation, les films minces de dioxyde de vanadium trouvent également un intérêt dans la réalisation de fonctions plus avancées dans le domaine de la micro- et nanoélectronique.

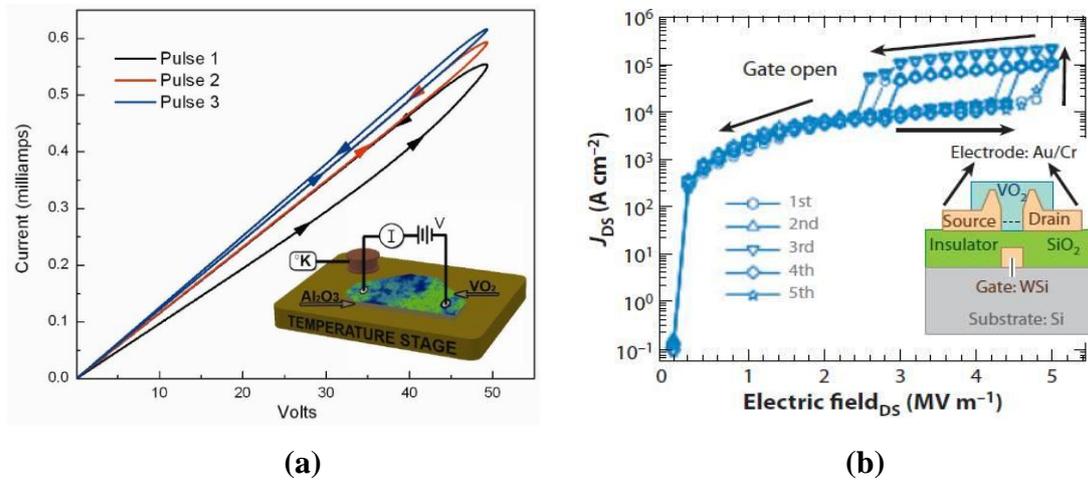
Dans une première démonstration des propriétés électriques non-linéaires de la transition MIT dans des couches minces de VO<sub>2</sub>, Kim et al [Kim10] ont mis en évidence la possibilité d'utiliser des dispositifs de type 2T à base de VO<sub>2</sub> comme générateurs d'oscillations périodiques (Figure I.21). Il a été montré que le dispositif à base de VO<sub>2</sub>, inséré dans un circuit série simple contenant une résistance et une source de tension, génère un phénomène d'oscillations (variations périodiques de la tension aux bornes du VO<sub>2</sub> et du courant dans le circuit) pour certaines valeurs de tension appliquée dans le circuit. Ce phénomène est lié à la présence d'une zone à résistance différentielle négative (NDR), lors de la transition MIT, dans le matériau dont le fonctionnement ressemble à un oscillateur à relaxation de type van der Pol [Van26].



**Figure I.21 : (a) Oscillations en tension ( $V_D$ - courbe bleue) et courant ( $I_D$ - courbe rouge) observées dans un circuit électrique simple lors de l'application d'une impulsion en tension ( $V_S$  courbe noire) d'environ 14 V dans le dispositif à base de VO<sub>2</sub> présenté en (b) [Kim10].**

Toujours en utilisant ces dispositifs de type 2-terminaux, des recherches récentes ont montré la présence d'effets mémoires dans les dispositifs à VO<sub>2</sub>, pouvant être utilisés dans la réalisation de mémoires flash et de circuits neuromorphiques [Dri09]. Ces effets se matérialisent par la valeur de la résistance du dispositif à VO<sub>2</sub> qui évolue en fonction de l'historique de l'actionnement du composant. Ainsi, lorsque l'on applique au dispositif des

impulsions de tension successives avec des caractéristiques identiques, on constate que le courant mesuré dans le dispositif ne présente pas la même valeur (courbes I-V d'allures différentes) (**Figure I.22a**).



**Figure I.22** : Effets de type mémoire résistive observés dans un dispositif à base de  $\text{VO}_2$  de type 2T montré dans l'insert lors de l'application d'impulsions de tension (a), caractéristiques électriques d'un transistor à effet de champ réalisé à partir du dispositif à base de  $\text{VO}_2$  de type 3-terminaux (présenté dans l'insert) (b).

Enfin, comme le montre la **Figure I.22b**, il est possible d'utiliser des films de dioxyde de vanadium dans des circuits plus complexes. En l'occurrence, l'ajout d'une électrode supplémentaire permet de concevoir un dispositif de type trois-terminaux fonctionnant sur le même principe qu'un transistor à effet de champ (**Figure I.22b**). Comme on peut le constater, le motif de  $\text{VO}_2$  est ici inséré entre l'électrode de drain et de source afin de faire varier, en fonction du champ appliqué, les caractéristiques du transistor et, en particulier, la densité de courant drain-source [Kim04]. Cette première démonstration de transistor basé sur l'effet MIT dans le  $\text{VO}_2$  ouvre un champ de recherche important dans la réalisation de dispositifs innovants exploitant l'effet de la transition isolant-métal dans la micro- et la nanoélectronique. D'ailleurs, dans la dernière feuille de route de l'ITRS [ITRS], les transistors mais également les dispositifs de type mémoire utilisant les effets MIT dans des matériaux avancés sont perçus comme des concepts très intéressants, en rupture avec les paradigmes actuels, exploitant des changements de phase purement électronique et censés améliorer les coûts énergétiques de leur fonctionnement (opération basse tension, fiabilité, mise à l'échelle nanométrique, etc.).

#### I.4. Le dépôt de couches minces de dioxyde de vanadium

Le dioxyde de vanadium peut être synthétisé sous différentes formes : volumiques [Lad69], films minces épitaxiés [Sam97] ou polycristallins [Ruz07], nanofils [Str09], nanoparticules [Suh04] ainsi que d'autres nanostructures [Cao09, Liu04]. Sous toutes ces formes, le dioxyde de vanadium présente des transitions MIT avec des caractéristiques (ampleur de la variation de résistivité) plus ou moins variables. Comme nous l'avons mentionné précédemment, nous nous intéressons plus particulièrement aux couches minces de dioxyde de vanadium qui sont déposées sur un substrat. Dans ce contexte, la littérature recense différentes méthodes de fabrication comme l'ablation laser réactive (PLD) [Dum09], le dépôt chimique en phase vapeur (CVD) [Sah02], la pulvérisation magnétron [Ruz07], la technique sol-gel [Cha06], l'évaporation à canon à électrons [Man07, Ler11] ou encore le dépôt à canon à ions [Wes08]. Plusieurs publications mettent en évidence que les films de VO<sub>2</sub> peuvent être déposés sur différents substrats : verre [Sah08], silicium (Si) [Ruz09], silicium recouvert d'oxyde de silicium amorphe (Si+SiO<sub>2</sub>) [Ruz07], oxyde de titane (TiO<sub>2</sub>) [Sam97], saphir [Dum09].

Au laboratoire XLIM, nous avons étudié la possibilité de réaliser des échantillons de VO<sub>2</sub> sur différents substrats comme la silice fondue ou encore l'oxyde de silicium mais dans ces travaux de thèse, nous utiliserons essentiellement des dépôts épitaxiés sur saphir c réalisés par PLD (en collaboration avec le laboratoire SPCTS) ou par évaporation à canon à électrons (réalisés au sein de la plateforme Platinom d'XLIM).

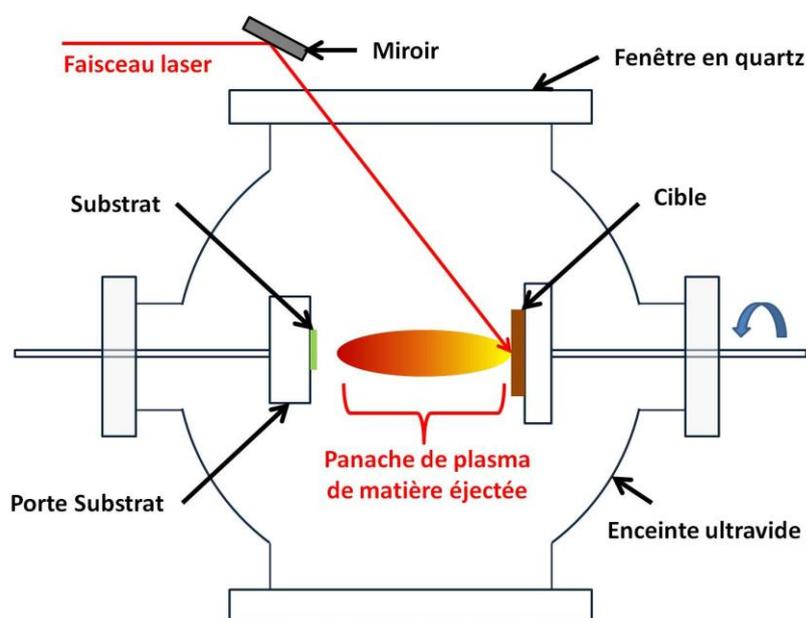
La multivalence de l'ion de vanadium et sa structure complexe en phase oxyde implique l'existence de nombreuses phases avec des stœchiométries plus ou moins proche du VO<sub>2</sub> faisant de la synthèse de phase pure de VO<sub>2</sub> et, notamment, sous forme de films minces, un défi important. L'optimisation minutieuse des paramètres expérimentaux de dépôts est alors absolument nécessaire pour obtenir des films minces stœchiométriques et stabilisés de VO<sub>2</sub>, sans post-traitement. Dans ce contexte, l'intérêt des substrats de saphir est de présenter des paramètres de maille cristalline qui sont parmi les plus proches de ceux du VO<sub>2</sub>, permettant la réalisation de films avec les meilleures propriétés par rapport à d'autres types de substrats (en termes de cristallinité ou d'ampleur du changement de résistivité lors de la transition MIT). De plus, les substrats de saphir ont à la fois une bonne conduction thermique et une forte transparence permettant, respectivement, de mieux évacuer la chaleur et de caractériser plus facilement les propriétés optiques des couches de VO<sub>2</sub>.

Nous tenons à préciser que dans cette thèse, nous n'avons pas mis l'accent sur la réalisation, l'optimisation et la caractérisation structurale des dépôts de dioxyde de vanadium. Nous avons simplement utilisé et/ou caractérisé les échantillons de  $\text{VO}_2$  mis à notre disposition, en les intégrant par la suite dans des dispositifs fonctionnels. Les protocoles de fabrication et/ou la réalisation des dépôts ont essentiellement été réalisés dans le cadre de deux autres thèses : la thèse de Julien Givernaud pour la PLD (en collaboration avec le laboratoire SPCTS) [Giv10] et celle d'Amine Mennaï pour l'évaporation à faisceau d'électrons (en cours et réalisée au sein de la plateforme Platinom d'XLIM). Dans la suite, nous donnons quelques brèves explications concernant les deux méthodes de dépôts utilisées pour la réalisation des couches minces de  $\text{VO}_2$  que nous avons utilisées pour nos recherches.

#### I.4.1. L'ablation laser réactive ou PLD

Les dépôts de films minces de  $\text{VO}_2$  par ablation laser réactive que nous utilisons sont réalisés dans le cadre de plusieurs projets communs avec le laboratoire SPCTS (équipe animée par le Professeur Corinne Champeaux) qui travaille sur des procédés innovants et la mise au point de matériaux en utilisant cette technique de dépôt.

L'ablation laser réactive (**Figure I.23**) consiste à envoyer un faisceau laser (typiquement des lasers excimere, dans notre cas de type KrF\*, à une longueur d'onde de 248 nm et une durée d'impulsion de 25 ns, opérant à une fréquence de répétition de 10 Hz) sur une cible de vanadium pure qui se trouve en face d'un substrat chauffé, dans une enceinte fermée sous atmosphère d'oxygène.



**Figure I.23 : Schéma de l'enceinte de l'ablation laser réactive (PLD) montrant la formation du panache de plasma.**

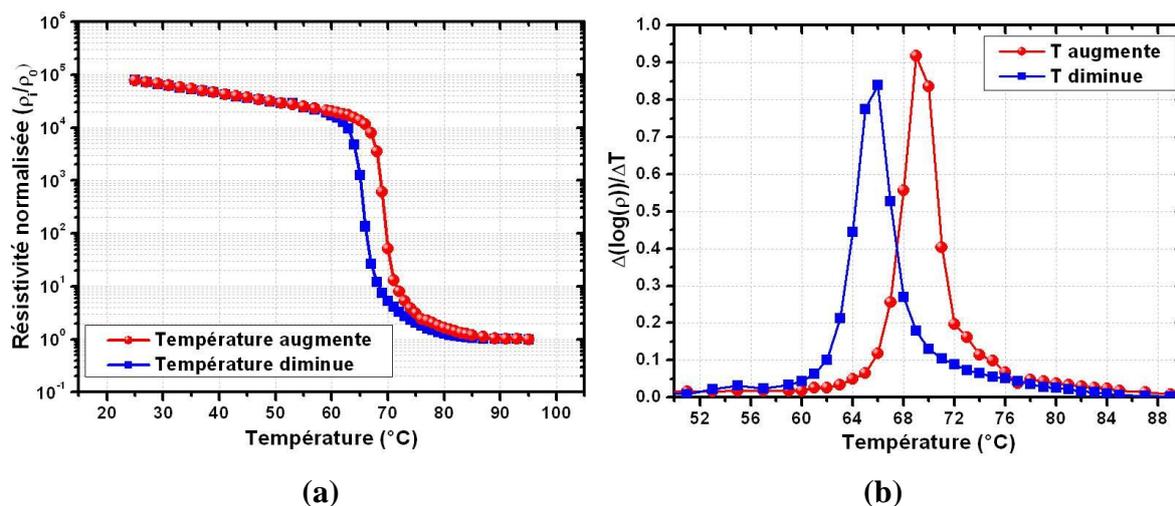
Le faisceau de forte énergie provoque l'évaporation du métal de la cible sous la forme d'un panache de plasma qui réagit avec l'oxygène introduit en quantité contrôlée dans l'enceinte. Le composé issu de cette réaction se dépose alors sur le substrat en vis-à-vis par simple effet cinétique. Cette technique est utilisée dans la réalisation de matériaux complexes (supraconducteurs, ferroélectriques, composites, etc.) car elle permet d'obtenir des dépôts d'excellente qualité, présentant une très bonne stœchiométrie.

Mise à part la nature du substrat, lorsque l'on utilise l'ablation laser réactive pour réaliser des films de VO<sub>2</sub>, différents paramètres sont à prendre compte pour obtenir un film de bonne qualité. Parmi ces paramètres, on peut citer : l'énergie du faisceau laser et la fluence de ce laser sur la cible (énergie incidente divisée par la surface irradiée), la pureté du matériau composant la cible, la pression du gaz environnant et la température du substrat. Le tableau présenté dans la **Figure I.24** résume les différents paramètres qui ont été fixés pour réaliser des films minces de VO<sub>2</sub> sur des substrats de saphir c, présentant des caractéristiques optimisées (phase cristalline de VO<sub>2</sub>, ampleur maximum du changement de résistivité entre les deux états).

Fluence du laser	7.5 J/cm <sup>2</sup>
Répétition du laser	10 Hz
Pression partielle d'oxygène	2x10 <sup>7</sup> mbar
Température du substrat	500 °C
Distance cible-substrat	50 mm
Diamètre de la cible de vanadium	25 mm
Épaisseur de la cible de vanadium	2 mm
Pureté de la cible de vanadium	99.95 %

**Figure I.24 : Principaux paramètres de dépôts fixés pour obtenir des films de VO<sub>2</sub> à partir d'une cible de vanadium dans le cas des dépôts obtenus par l'ablation laser.**

En utilisant cette technique et dans les conditions expérimentales mentionnées ci-dessus, on réalise des couches de VO<sub>2</sub> avec des épaisseurs pouvant monter jusqu'à environ 400 nm. La **Figure I.25a** présente la variation typique de la résistivité d'un film de VO<sub>2</sub> de 100 nm d'épaisseur lors d'un cycle de température entre 25 et 95°C. Cette mesure de résistivité est réalisée à l'aide de la technique de mesure 4 points (**Annexe 1**).



**Figure I.25 : Dynamique de résistivité d'un film de VO<sub>2</sub> obtenu par PLD de 100 nm d'épaisseur déposé sur un substrat de saphir c, en (a), et la dérivée de la résistivité en fonction de la température permettant le calcul précis des températures de transition, en (b).**

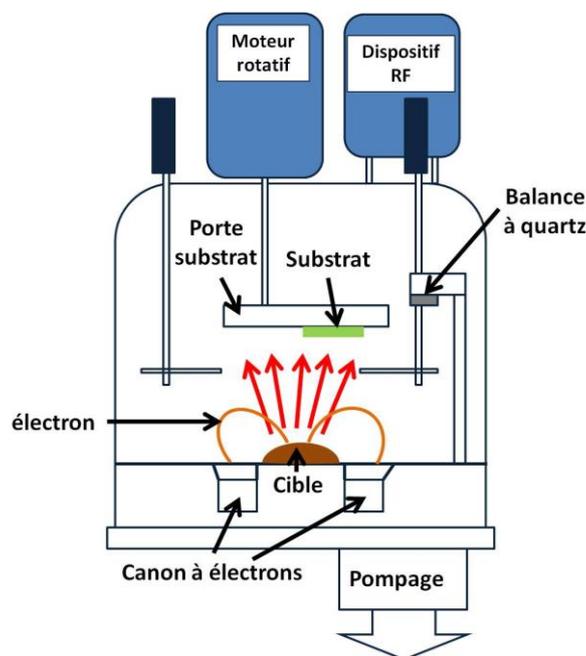
On constate que ce film de VO<sub>2</sub> présente une variation de résistivité très importante, de l'ordre de  $10^5$ , ce qui constitue une excellente dynamique puisque dans la littérature, on trouve généralement des variations de résistivité comprises entre 3 et 4 ordres de grandeur. Les courbes sur la **Figure I.25b** qui représentent les variations de la résistivité autour de chaque température, nous permet de repérer la température de transition MIT qui correspond à la température où l'on observe la déviation maximale. Sur ce graphique, on constate que la transition de l'état isolant vers l'état métallique se produit à une température légèrement supérieure à la température théorique de la transition MIT du VO<sub>2</sub> qui est de 68°C. En revanche, si on s'intéresse à la transition inverse qui se produit lorsque la température diminue, on constate que cette dernière a lieu à une température inférieure à la température de la transition initiale. Ce phénomène provoque un effet d'hystérésis dans le matériau, associé à un effet de latence du au changement inverse de sa structure cristalline.

#### **I.4.2. La méthode d'évaporation par canon à électrons**

L'utilisation de l'ablation laser réactive présente beaucoup d'avantages mais elle ne permet pas de réaliser des échantillons de VO<sub>2</sub> avec des couches uniformes en épaisseur sur de grandes dimensions. Pour cette raison, nous avons décidé d'utiliser une deuxième technique de dépôt (disponible au sein de la plateforme Platinom du laboratoire XLIM) pour

pouvoir réaliser des films de  $\text{VO}_2$  sur de plus grandes surfaces, à savoir l'évaporation par canon d'électrons d'une cible de vanadium dans une atmosphère d'oxygène.

Contrairement à l'évaporation thermique où le matériau à réaliser est tout simplement évaporé par effet joule, l'évaporation à canon d'électrons (**Figure I.26**) utilise un faisceau incident d'électrons focalisés sur le matériau cible.



**Figure I.26 : Schéma illustrant le principe de l'évaporation en utilisant un canon à électrons.**

Ce faisceau est formé d'électrons issus d'un filament chauffé qui sont focalisés dans une direction donnée, sous l'action commune d'un potentiel électrique et d'un champ magnétique. Le faisceau peut alors facilement être orienté sur le matériau cible pour provoquer son évaporation. Comme dans le cas de l'ablation laser, l'évaporation étant réalisée dans une enceinte où l'on a effectué un vide poussé puis introduit du dioxygène sous forme gazeuse, le matériau réagit avec ce gaz avant de se déposer sur le substrat chauffé.

Dans un premier temps, afin d'obtenir le bon degré d'oxydation du vanadium, on peut utiliser une décharge plasma radiofréquence (RF) dans l'atmosphère de l'enceinte qui permettra à la fois de dissocier les molécules d'oxygène et d'améliorer l'adhérence sur le substrat des films réalisés. En utilisant cette méthode, nous avons réalisé des films de  $\text{VO}_2$  déposés sur des substrats de saphir c ( $20 \times 20 \text{ mm}^2$ , épaisseur :  $500 \mu\text{m}$ ) pour différentes conditions de dépôts et, notamment, celles reportées dans le tableau ci-dessous (**Figure I.27**) tout en conservant une décharge RF de 50 W.

Echantillon	Pression d'oxygène (Pa)	Flux d'oxygène (SCCM*)	Température du substrat (°C)
V1	$8.2 \times 10^{-2}$	5.8	510
V2	$7.2 \times 10^{-2}$	5.8	494
V3	$8.9 \times 10^{-2}$	6.8	514
V4	$8.2 \times 10^{-2}$	5.9	495

**Figure I.27 : Conditions utilisées pour réaliser différents dépôts de films de VO<sub>2</sub> sur des substrats de saphir c (20 × 20 mm<sup>2</sup>, épaisseur 500 μm) par évaporation à canon d'électrons avec une décharge RF de 50 W.**

Alternativement, dans le cas où la décharge plasma RF n'est pas utilisée, après la réalisation des dépôts, une étape de recuit est nécessaire pour améliorer les caractéristiques des dépôts (stœchiométrie, cristallinité, variation de résistivité). Dans ce contexte, sur certains échantillons que nous avons réalisés et que nous précisons par la suite, nous avons également effectué un post-recuit sous atmosphère d'oxygène dans les conditions prescrites dans le tableau de la **Figure I.28**.

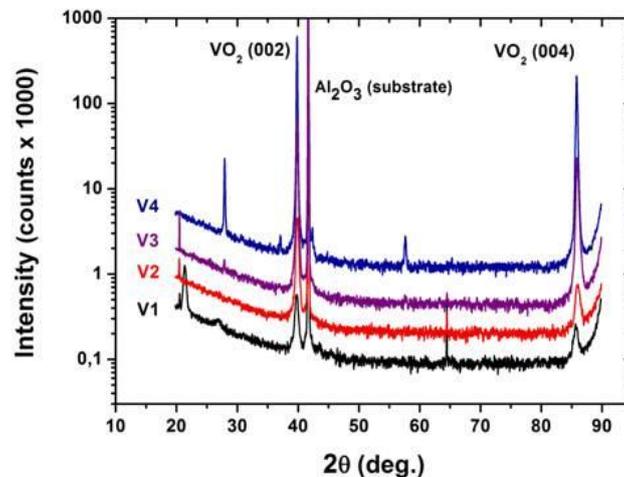
Pression de dépôt	$5 \times 10^{-3}$ mbar
Flux d'oxygène	15 SCCM*
Température du recuit	550 °C
Durée	10 min

\*SCCM: Standard cubic centimeter per minute

**Figure I.28 : Conditions du post-recuit effectué sur des films de VO<sub>2</sub> obtenus par évaporation à canon d'électrons sans utilisation de la décharge plasma RF.**

Afin d'être rigoureux, pour chaque film de dioxyde de vanadium, nous avons réalisé de façon systématique une étude de diffraction aux rayons X (DRX) pour déterminer si le matériau réalisé correspond bien à la phase de dioxyde de vanadium et si on détecte la présence d'autres degrés d'oxydation. La **Figure I.29** présente les résultats de cette étude réalisée sur les échantillons obtenus dans les conditions présentées auparavant (**Figure I.27**) avec une décharge RF et sans post-recuit. Nous constatons que tous ces échantillons

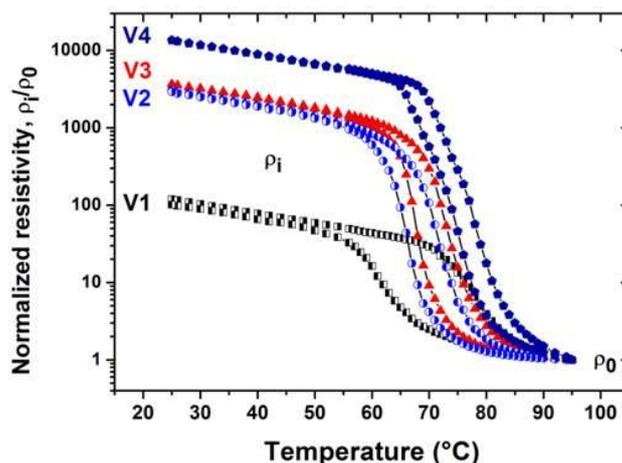
présentent des pics situés à environ  $2\theta = 40^\circ$  et  $2\theta = 86^\circ$  qui sont attribués à la phase monoclinique du  $\text{VO}_2$  correspondant, respectivement, aux orientations (002) et (004). En plus de ces deux pics, l'échantillon V1 présente également un pic situé à  $2\theta = 22^\circ$  correspondant probablement à la phase  $\text{V}_2\text{O}_5$ , qui met en évidence des phases d'impuretés présentes dans cet échantillon, au détriment de la phase  $\text{VO}_2$  dont les pics sont relativement faibles. Au contraire, l'échantillon V4 qui montre les pics de diffraction les plus intenses permet de conclure que les conditions utilisées pour réaliser cet échantillon sont celles qui permettent d'avoir les films de  $\text{VO}_2$  de meilleures qualités par rapport aux autres échantillons (V1, V2 et V3).



**Figure I.29 : Mesures DRX réalisées sur 4 échantillons de  $\text{VO}_2$  obtenus dans des conditions expérimentales différentes [Ler11].**

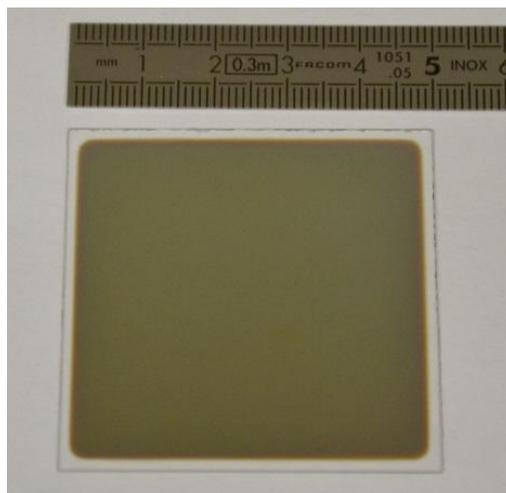
Mise à part l'intensité des pics relatifs aux résultats de DRX, un autre paramètre permet de déterminer, de façon plus simple et plus rapide, la qualité d'un dépôt de  $\text{VO}_2$ . Ce paramètre est la dynamique de résistivité que l'on définit comme le rapport de résistivité entre l'état isolant et l'état métallique du dioxyde de vanadium (résistivité mesurée, respectivement, à 25 et 95°C). On considère que plus la phase pure de  $\text{VO}_2$  est présente en quantité dans le dépôt, plus l'effet de la transition MIT est important et plus la variation de résistivité entre les deux états est grande. Ainsi, la dynamique de résistivité est directement proportionnelle à la quantité de  $\text{VO}_2$  présente dans le dépôt et, par conséquent, à la qualité du film. De plus, dans la suite de ce manuscrit, les performances électriques des dispositifs que nous réaliserons reposent directement ou indirectement sur l'ampleur de cette dynamique. Dans ce contexte, on considère qu'un film de dioxyde de vanadium est de bonne qualité s'il présente une dynamique supérieure à trois ordres de grandeur dans sa variation de résistivité entre les deux

états. La **Figure I.30** montre les résistivités normalisées mesurées lors de cycles en température des échantillons V1, V2, V3 et V4. On observe que les cycles d'hystérésis associés aux échantillons V1 et V4 présentent, respectivement, la plus faible et la plus forte dynamique de résistivité. Ces résultats sont ainsi, en accord avec ceux obtenus en utilisant la DRX.



**Figure I.30** : Variations avec la température des résistivités électriques normalisées des films de VO<sub>2</sub> réalisés par évaporation à canon d'électrons (échantillons V1–V4) [Ler11].

Alternativement, nous avons réalisé des couches minces de VO<sub>2</sub> par évaporation à canon d'électrons sans l'utilisation de la décharge plasma RF. Cependant, les films réalisés sans la décharge RF étaient de qualité nettement inférieure avec, notamment, des variations de résistivité inférieures à 100 lors de cycles thermiques entre 25°C et 100°C. Pour améliorer leurs caractéristiques, les films ainsi obtenus ont été soumis à un traitement de recuit post-déposition en atmosphère d'oxygène dans les conditions mentionnées auparavant (**Figure I.28**). En utilisant le post-recuit, nous avons alors obtenus des films de VO<sub>2</sub> présentant des rapports de résistivité supérieurs à 10<sup>4</sup>, autrement-dit des valeurs similaires aux films de VO<sub>2</sub> obtenus avec la décharge RF. Mais à la différence de ces derniers, les échantillons obtenus en utilisant le post-recuit présentent une meilleure rugosité de surface. Néanmoins, dans les deux types de conditions de dépôt, les films de VO<sub>2</sub> obtenus par évaporation à canon d'électrons présentent une épaisseur homogène sur une surface beaucoup plus grande que les échantillons obtenus par PLD. On peut, notamment, le remarquer sur la **Figure I.31** qui montre l'image d'un film de VO<sub>2</sub>, d'une épaisseur de 100 nm, parfaitement homogène sur une surface aussi grande que 50 x 50 mm<sup>2</sup>.



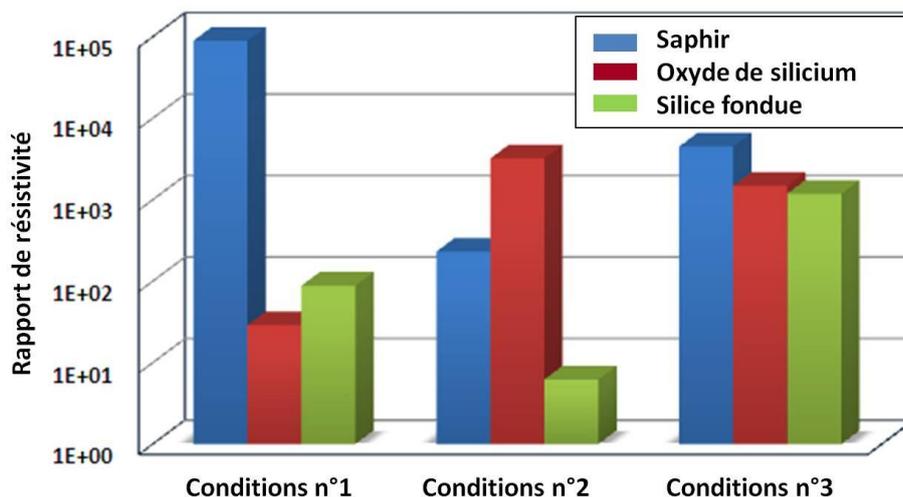
**Figure I.31 : Image par microscopie optique d'un film de VO<sub>2</sub> de 100 nm sur un substrat saphir c de 50 x 50 mm<sup>2</sup>.**

A travers les dépôts obtenus par évaporation mais aussi par PLD, nous avons pu comprendre la difficulté de réaliser des dépôts par épitaxie dont font partie ces deux techniques. Dans ce type de dépôt qui consiste à faire croître une couche de matériau dans une direction donnée par empilements successifs, il est nécessaire de pouvoir contrôler les paramètres de dépôts afin d'obtenir la bonne stœchiométrie et donc le bon degré d'oxydation du vanadium. Si les conditions de fabrication adéquates ne sont pas réunies ou si le substrat utilisé ne possède pas un accord de maille suffisant avec le matériau déposé, cela engendre des défauts dans la couche qui conduisent à la formation d'un degré d'oxydation différent ou à plusieurs degrés d'oxydation dans un même échantillon. Dans le cas du dioxyde de vanadium qui présente une structure de maille différente en fonction de la température, le contrôle de ses paramètres et en particulier, le choix du substrat sont encore plus importants. Dans ce contexte, nous avons étudié les effets du type de substrat sur la qualité des films de VO<sub>2</sub>, pour différentes conditions expérimentales. En utilisant l'évaporation à canon à électrons avec une décharge RF, nous avons réalisé des films de VO<sub>2</sub> sur trois types de substrats pour différents paramètres de dépôts présentés sur la **Figure I.32**.

Echantillon	Pression d'oxygène (mbar)	Puissance RF (W)	Température du substrat (°C)	Vitesse de dépôt (nm/s)
Conditions n°1	9x10 <sup>-3</sup>	47	500	0.05
Conditions n°2	5x10 <sup>-3</sup>	30	500	0.05
Conditions n°3	6x10 <sup>-3</sup>	47	500	0.05

**Figure I.32 : Conditions utilisées pour réaliser (en utilisant l'évaporation à canon à électrons avec décharge RF) des films de VO<sub>2</sub> sur différents types de substrats.**

La **Figure I.33** présente les rapports de résistivité entre l'état isolant et l'état métallique de films déposés sur trois types de substrats (saphir c, oxyde de silicium, silice fondue) pour chacune des trois conditions de dépôts.



**Figure I.33 : Rapports de résistivité relevés pour des films de VO<sub>2</sub> déposés sur saphir c, oxyde de silicium et silice fondue dans trois conditions de dépôts différentes.**

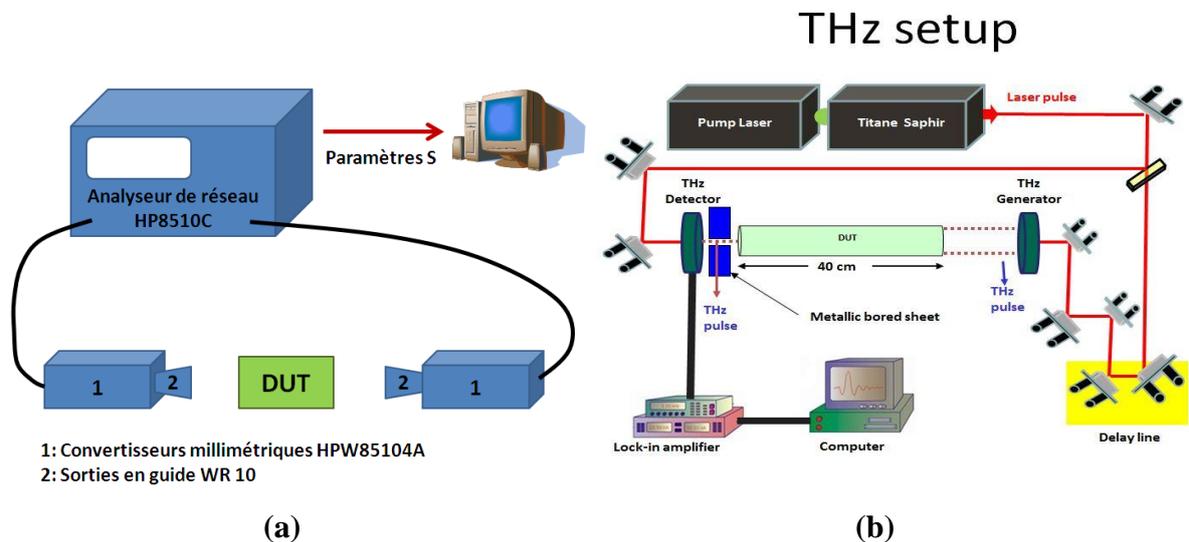
Ces résultats mettent en évidence l'existence de conditions de dépôts optimales qui varient sensiblement avec le substrat sur lequel est déposé le film de VO<sub>2</sub>. Mais ce graphique montre surtout que le rapport de résistivité maximum est obtenu pour le film réalisé sur substrat de saphir c. Ainsi, cela nous permet de conforter le choix que nous avons fait d'utiliser préférentiellement ce substrat qui présente une maille cristalline adaptée à celle du VO<sub>2</sub>.

### I.5. Caractéristiques électromagnétiques large bande de films de VO<sub>2</sub> obtenus

Pour conclure ce premier chapitre, nous voulons montrer que les effets de la transition MIT des films minces de VO<sub>2</sub> ne se limitent pas seulement à quelques domaines de fréquences mais, au contraire, s'observent sur l'ensemble du spectre électromagnétique, du domaine DC aux longueurs d'onde optiques.

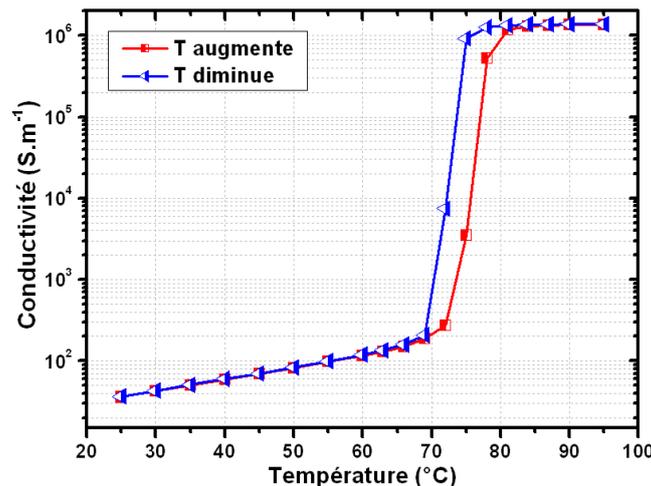
Ainsi, mise à part la conductivité DC, déterminée à l'aide de la technique 4 pointes, et les propriétés optiques, dans le domaine visible-IR, des films de VO<sub>2</sub>, nous avons évalué l'ampleur de leur transition MIT dans deux autres gammes de fréquences : la bande de

fréquences 75 – 110 GHz et le domaine térahertz (THz), plus particulièrement, entre 0.2 et 1.4 THz. Les mesures dans la plage 75 – 110 GHz ont été effectuées en utilisant le banc hyperfréquence décrit sur la **Figure I.34a**. Ce banc est composé d'une paire de convertisseurs millimétriques HPW85104A équipés d'une sortie en guide WR 10 et reliés à un analyseur de réseau vectoriel de type HP8510C. Les mesures, réalisées en espace libre, nous donnent accès aux paramètres S et, notamment, aux paramètres  $S_{21}$  et  $S_{11}$  que nous considérons équivalents, respectivement, à la transmission et à la réflexion du dispositif sous test (DUT). Concernant les mesures dans le domaine THz, elles sont réalisées en utilisant la spectroscopie térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS) dont le schéma du banc utilisé est présenté sur la **Figure I.34b**. Cette technique, qui sera détaillée dans le chapitre III, permet d'obtenir un spectre de transmission dans le domaine temporel sous la forme d'impulsions auquel il suffit d'appliquer une simple transformée de Fourier (Fast Fourier Transform - FFT) pour remonter à la transmission fréquentielle de l'échantillon sous test. Que ce soit pour les mesures réalisées dans la gamme 75 – 110 GHz ou dans celle de 0.2 à 1.4 THz, nous nous intéressons plus particulièrement à la transmission normalisée des films de VO<sub>2</sub>. Cette donnée est obtenue en faisant le rapport de la transmission mesurée avec l'échantillon complet (film + substrat) sur la transmission mesurée avec le substrat seul. De plus, nous précisons que le contrôle en température du film de VO<sub>2</sub> est effectué en utilisant un élément Peltier percé en son centre pour laisser passer les ondes incidentes.



**Figure I.34 : Schéma du banc de mesure hyperfréquence utilisé dans la gamme de fréquences 75-110 GHz, en (a), et schéma de principe du banc de mesure de spectroscopie THz dans le domaine temporel (THz-TDS), en (b).**

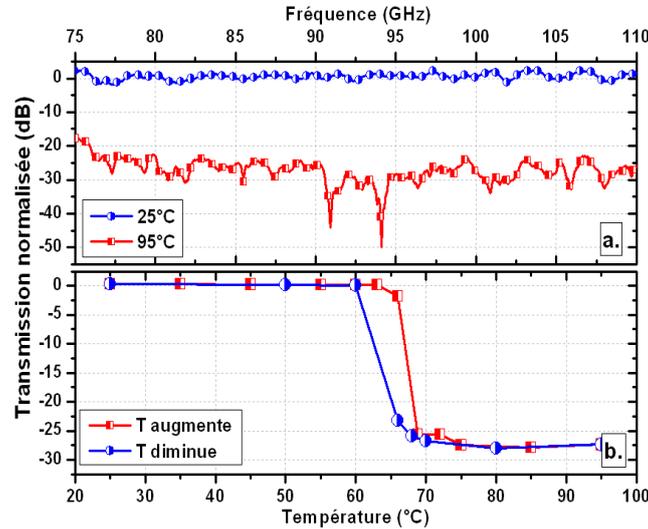
Tout d'abord, nous nous sommes concentrés sur les résultats de conductivité DC, mesurées lors d'un cycle de température, d'un film de VO<sub>2</sub> de 120 nm d'épaisseur, déposé par PLD sur un substrat de saphir c d'une épaisseur de 500 μm (**Figure I.35**). A température ambiante (25°C), la conductivité est faible (inférieure à 100 S.m<sup>-1</sup>), caractéristique d'un état isolant ou, plus exactement, semi-conducteur. Lorsque la température augmente, la conductivité augmente graduellement jusqu'à environ 72°C. A cette température, le VO<sub>2</sub> subit la transition MIT (induite par la température) et passe d'un état isolant à un état métallique provoquant une augmentation brutale et importante de sa conductivité. Ainsi, à 95°C, la conductivité est beaucoup plus importante de l'ordre de 10<sup>6</sup> S.m<sup>-1</sup>. Entre 25 et 95°C, la conductivité a augmenté d'un facteur proche de 10<sup>4</sup>. Quand la température diminue, on observe le phénomène inverse avec une diminution forte et brutale de la conductivité, montrant que la transition est réversible. Mais dans cette deuxième partie du cycle, on observe un effet d'hystérésis car la température où l'on retrouve un comportement isolant a légèrement diminué en passant à 70°C.



**Figure I.35 : Evolution de la conductivité DC en fonction de la température du film de VO<sub>2</sub> de 120 nm d'épaisseur déposé sur un substrat de saphir c de 500 μm d'épaisseur.**

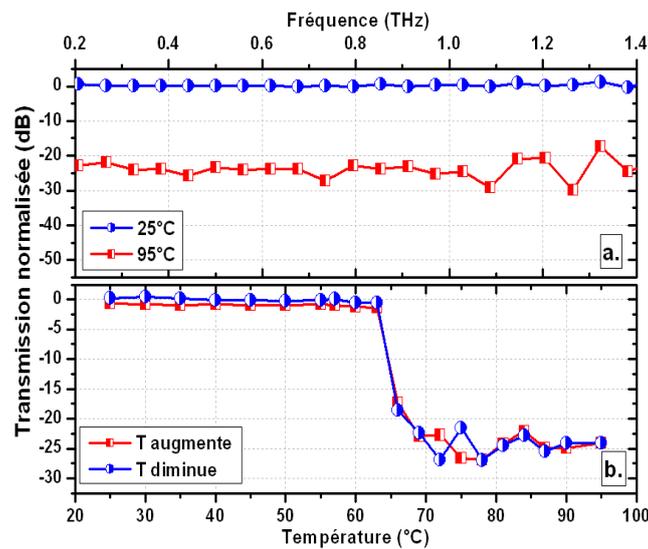
Ensuite, la transmission normalisée du film de VO<sub>2</sub> à 25 et 95°C sur la bande de fréquences 75 – 110 GHz et le cycle d'hystérésis associé à 100 GHz sont représentés sur la **Figure I.36**. A température ambiante, la transmission se situe autour de 0 dB signifiant que le matériau est fortement transparent ce qui est synonyme de l'état isolant du VO<sub>2</sub>. A certaines fréquences, la transmission présente même des valeurs positives mais celles-ci sont seulement causées par les erreurs de mesures. A 95°C, la transmission a diminué de plus de 25 dB ce qui

confirme le passage vers le comportement d'un métal. Le cycle d'hystérésis à 100 GHz (**Figure I.36b**) permet, quant à lui, d'observer une diminution de la température de transition par rapport aux mesures DC avec une température de transition qui passe de 72 à 70°C lorsque la température augmente.



**Figure I.36 : Mesure de la transmission du film de VO<sub>2</sub> à 25 et 95°C dans la plage de fréquences 75 – 110 GHz et b. cycle d’hystérésis associé à 100 GHz.**

Enfin, nous nous intéressons à la transmission normalisée du film de VO<sub>2</sub> à 25 et 95°C sur la bande de fréquences 0.2 – 1.4 THz et au cycle d’hystérésis associé à 1 THz qui sont représentés sur la **Figure I.37**.



**Figure I.37 : Mesure de la transmission du film de VO<sub>2</sub> à 25°C et à 95°C dans la plage de fréquences 0.2 – 1.4 THz et b. cycle d’hystérésis associé à 1 THz.**

Sur ces deux graphiques, on retrouve certaines des observations faites dans la précédente plage de fréquences étudiée. On observe, notamment, la diminution de l'ordre de 25 dB entre 25° et 95°C qui correspond au passage de l'état isolant à l'état métallique de la couche de VO<sub>2</sub>. Plus intéressant encore, la température de transition MIT a encore diminué en passant à environ 65°C. Néanmoins, contrairement aux mesures à 100 GHz, le cycle d'hystérésis à 1 THz, présenté sur la **Figure I.37b**, s'est totalement refermé. Ainsi, il semblerait que les effets d'hystérésis dans le VO<sub>2</sub> soient moins importants lorsque l'on travaille à des fréquences plus élevées. Enfin, comme pour la plage de fréquences 75 – 110 GHz, nous remarquons que la transmission présente, à certaines fréquences, des valeurs légèrement positives lorsque le VO<sub>2</sub> est à l'état isolant mais qui sont à nouveau causées par les erreurs de mesures.

A travers ces derniers résultats, on peut naturellement en conclure qu'il est possible d'observer les effets de la transition MIT des films de VO<sub>2</sub> du domaine DC aux fréquences optiques. Parmi ces domaines, on peut, notamment, citer celui du domaine des fréquences THz qui fait, aujourd'hui, l'objet d'une attention accrue de la part de la communauté scientifique. L'utilisation de la transition du VO<sub>2</sub> dans cette gamme de fréquences pourrait donc être intéressante pour des applications de commutation, de modulation ou de limitation des ondes électromagnétiques incidentes.

## **I.6.Conclusion**

A la lumière de ce premier chapitre, nous avons recensé plusieurs types de solutions permettant de réaliser des dispositifs accordables avec d'un côté l'utilisation de composants accordables tels que les jonctions semi-conductrices ou les MEMS et de l'autre côté les matériaux intelligents à perméabilité, permittivité ou résistivité accordable. À travers ces différentes solutions, il est ainsi possible de réaliser de nombreux dispositifs pour différents domaines d'application, notamment, les systèmes avancés de communication pour des applications civiles, militaires ou spatiales (systèmes de communication à multiples fréquences, antennes reconfigurables/ commutables, etc.).

Parmi ces solutions, nous avons mis en évidence l'intérêt du dioxyde de vanadium qui fait partie des matériaux intelligents à résistivité accordable car il présente une transition de phase réversible isolant-métal à 68°C. Mise à part cette température proche de l'ambiante, cette transition a pour intérêt de pouvoir être déclenchée sous l'action de diverses stimuli (électriques, optiques et même mécaniques) et de provoquer d'importantes variations dans les

propriétés du matériau, notamment, d'ordre électromagnétique et mécanique. Même si l'origine de cette transition est encore l'objet de nombreuses discussions, l'intérêt du dioxyde de vanadium a déjà été montré pour la réalisation de dispositifs micro-ondes accordables mais également dans le domaine des capteurs ou pour concevoir des fonctions plus avancées dans la micro- et la nanoélectronique.

En s'intéressant aux dépôts des films de VO<sub>2</sub>, nous avons vu qu'il est possible de déposer des films de VO<sub>2</sub> sur différents substrats en utilisant différentes méthodes. Parmi ces méthodes, au laboratoire XLIM, nous avons fait le choix d'utiliser la PLD (en collaboration avec le laboratoire des SPCTS) et l'évaporation par canon à électrons. La première méthode permet d'obtenir des films de qualité plus élevée (10<sup>5</sup>) que d'autres méthodes, sans l'utilisation d'un post-traitement thermique. En revanche, l'avantage de l'évaporation à canon d'électrons est d'obtenir des films homogènes sur de plus grandes surfaces. Les dépôts réalisés sur différents types de substrats nous ont quant à eux conforté dans le choix d'utiliser le saphir c qui présente un meilleur accord de maille avec la structure cristalline du VO<sub>2</sub>.

Enfin, nous avons également mis évidence le caractère très large bande de la transition isolant-métal MIT du VO<sub>2</sub>, dans plusieurs domaines de fréquences, du DC au THz qui s'ajoutent aux observations précédentes dans le domaine optique. L'utilisation de la transition MIT du VO<sub>2</sub> dans toutes ces gammes de fréquences sera donc très intéressante pour des applications de commutation, de modulation ou de limitation des ondes électromagnétiques incidentes.

## Références Chapitre I

- [Ada02] J.D. Adam, L.E. Davis, G.F. Dionne, E.F. Schloemann, S.N. Stitzer ; "Ferrite devices and materials" ; IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 50 (3), 721–737, (2002).
- [Ale96] E. Alekseev, D. Pavlidis, M. Dickmann, T. Hackbarth ; "W-band InGaAs/InP PIN diode monolithic integrated switches" ; 18th Annual IEEE Gallium Arsenide Integrated Circuit Symposium, 285–288, (1996).
- [And58] P.W. Anderson ; "Absence of Diffusion in Certain Random Lattices" ; Phys. Rev., 109 (5), 1492–1505, (1958).
- [Atu08] V.V. Atuchin, B.M. Ayupov, V.A. Kochubey, L.D. Pokrovsky, C.V. Ramana, Y.M. Rumiantsev ; "Optical properties of textured V2O5/Si thin films deposited by reactive magnetron sputtering" ; Optical Materials, 30 (7), 1145–1148, (2008).
- [Bar60] P. Barois, "Cristaux liquides" ; Techniques de l'Ingénieur, traité Sciences fondamentales, A 1 325, 1–13, (1960).
- [Bau07] P. Baum, D.-S. Yang, A.H. Zewail ; "4D Visualization of Transitional Structures in Phase Transformations by Electron Diffraction" ; Science, 318 (5851), 788–792, (2007).
- [Ber10] S.C. Bera, K. Basak, V.K. Jain, R.V. Singh, V.K. Garg ; "Schottky diode-based microwave limiter with adjustable threshold power level" ; Microwave and Optical Technology Letters, 52 (7), 1671–1673, (2010).
- [Bou09] D. Bouyge, A. Crunteanu, J.-C. Orlianges, D. Passerieux, C. Champeaux, A. Catherinot, A. Velez, J. Bonache, F. Martin, P. Blondy ; "Reconfigurable bandpass filter based on split ring resonators and vanadium dioxide (VO<sub>2</sub>) microwave switches" ; Asia Pacific Microwave Conference, 2332–2335, (2009).
- [Cao09] J. Cao, E. Ertekin, V. Srinivasan, W.D. Fan, S. Huang, H. Zheng, J.W.L. Yim, D.R. Khanal, D.F. Ogletree, J.C. Grossman, J. Wu ; "Strain engineering and one-dimensional

- organization of metal-insulator domains in single-crystal vanadium dioxide beams" ; Nature Nanotechnology, 4 (11), 732–737, (2009).
- [Cav01] A. Cavalleri, C. Tóth, C.W. Siders, J.A. Squier, F. Ráksi, P. Forget, J.C. Kieffer ; "Femtosecond structural dynamics in VO<sub>2</sub> during an ultrafast solid-solid phase transition" ; Physical Review Letters, 87 (23), 2374011–2374014, (2001).
- [Cav04] A. Cavalleri, T. Dekorsy, H.H.W. Chong, J.C. Kieffer, R.W. Schoenlein ; "Evidence for a structurally-driven insulator-to-metal transition in VO<sub>2</sub> : A view from the ultrafast timescale" ; Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics, 70 (16), 1–4, (2004).
- [Cha06] B.G. Chae, H.T. Kim, S.J. Yun, B.J. Kim, Y.W. Lee, D.H. Youn, K.Y. Kang ; "Highly oriented VO<sub>2</sub> thin films prepared by sol-gel deposition" ; Electrochemical and Solid-State Letters, 9 (1), C12–C14, (2006).
- [Cha10] B.G. Chae, H.T. Kim ; "Effects of W doping on the metal–insulator transition in vanadium dioxide film" Physica B : Condensed Matter, 405 (2), 663–667, (2010).
- [Che00] C. Chen, X. Yi, X. Zhao, B. Xiong ; "Preparation and properties of vanadium dioxide thin films for uncooled microbolometer" ; 25th International Conference on Infrared and Millimeter Waves, 145–146, (2000).
- [Che04] L.-Y.V. Chen, R. Forse, D. Chase, R.A. York, R. ; "Analog tunable matching network using integrated thin-film BST capacitors" ; IEEE MTT-S International Microwave Symposium Digest, 1, 261–264, (2004).
- [Che12] C.C. Cheng, C.H. Ko, A. Morris, G.M. Rebeiz ; "A very low loss 1.9-2.1 GHz RF MEMS phase shifter" ; IEEE MTT-S International Microwave Symposium Digest, 1–3, (2012).
- [Coa73] R.P. Coats ; "An Octave-Band Switched-Line Microstrip 3-b Diode Phase Shifter" ; IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques ; 21 (7), 444–449, (1973).

- [**Cru07**] A. Crunteanu, F. Dumas-Bouchiat, C. Champeaux, A. Catherinot, A. Pothier, P. Blondy ; "Microwave switching functions using reversible metal-insulator transition (MIT) in VO<sub>2</sub> thin films" ; European Microwave Conference, 12–15, (2007).
- [**Cru10**] A. Crunteanu, J. Givernaud, J. Leroy, D. Mardivirin, C. Champeaux, J.-C. Orlianges, A. Catherinot, P. Blondy ; "Voltage- and current-activated metal–insulator transition in VO<sub>2</sub>-based electrical switches : a lifetime operation analysis" ; Science and Technology of Advanced Materials, 11 (6), 065002, (2010).
- [**Crun10**] A. Crunteanu, M. Fabert, J. Givernaud, V. Kermene, A. Desfarges-Berthelemot, J.C. Orlianges, C. Champeaux, A. Catherinot ; "Vis-IR Optical switching modulation based on the electrically activated phase transition of VO<sub>2</sub> thin films" ; *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) and QELS* (OSA, Washington DC, 2010), San Jose, CA, USA, presentation number JWA88, May 16-21, (2010).
- [**Bou07**] D. Bouyges ; "Systèmes lasers impulsions compactes et dispositifs hyperfréquences accordables bases sur l'utilisation de composants MEMS" ; Thèse : Electronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique ; Université de Limoges, (2007).
- [**Dal08**] C. Dalmay, A. Pothier, P. Blondy, F. Lalloue, M.-O. Jauberteau ; "Label free biosensors for human cell characterization using radio and microwave frequencies" ; IEEE MTT-S International Microwave Symposium Digest, 911–914, (2008).
- [**Ros00**] J. De Rosnay ; "Les matériaux intelligents" ; [http://www.canal-u.tv/video/universite\\_de\\_tous\\_les\\_savoirs/les\\_materiaux\\_intelligents.1130](http://www.canal-u.tv/video/universite_de_tous_les_savoirs/les_materiaux_intelligents.1130), (2000).
- [**Dol93**] D. Dolfi, M. Labeyrie, P. Joffre, J.P. Huignard ; "Liquid crystal microwave phase shifter" ; Electronics Letters, 29 (10), 926–928, (1993).
- [**Dri09**] T. Driscoll, H.-T. Kim, B.-G. Chae, M. Di Ventra, D.N. Basov ; "Phase-transition driven memristive system" ; Applied Physics Letters, 95 (4), 043503, (2009).
- [**Dum09**] F. Dumas-Bouchiat, C. Champeaux, A. Catherinot, J. Givernaud, A. Crunteanu, P. Blondy ; "RF microwave switches based on reversible metal-semiconductor transition

properties of VO<sub>2</sub> thin films : An attractive way to realise simple RF microelectronic devices" ; Materials Research Society Symposium Proceedings, 1129, 275–286, (2009).

[**Fab09**] M. Fabert, A. Crunteanu, V. Kermene, A. Desfarges-Berthelemot, D. Bouyge, P. Blondy ; "8 ns pulses from a compact fibre laser Q-switched by MOEMS" : Conference on Lasers and Electro-Optics and Conference on Quantum electronics and Laser Science, 1–2, (2009).

[**Fie02**] S.J. Fiedziuszko, I.C. Hunter, T. Itoh, Y. Kobayashi, T. Nishikawa, S.N. Stitzer, K. Wakino ; "Dielectric materials, devices, and circuits" ; IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 50 (3), 706–720, (2002).

[**Gev08**] S. Gevorgian ; "Tuneable Materials for Agile Microwave Devices" ; 38th European Microwave Conference, Workshop WWE-6, (2008).

[**Giv10**] J. Givernaud, A. Crunteanu, J.-C. Orlianges, A. Pothier, C. Champeaux, A. Catherinot, P. Blondy ; "Microwave power limiting devices based on the semiconductor-metal transition in vanadium-dioxide thin films" ; IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 58 (9), 2352–2361, (2010).

[**Giv10**] J. Givernaud ; "Etude , conception et fabrication de dispositifs micro-ondes à base de matériaux intelligents" ; Thèse : Electronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique ; Université de Limoges, (2010).

[**Grü88**] G. Grüner ; "The dynamics of charge-density waves" ; Reviews of modern physics, 60 (4), 1129, (1988).

[**Gry08**] C. Grygiel ; "Etude multi-échelle de la transition métal-isolant de films minces du composé V<sub>2</sub>O<sub>3</sub>" ; Thèse : Chimie des Matériaux ; Université de Caen, (2008).

[**Has91**] P.M. Haskins, P.S. Hall, J.S. Dahele ; "Active patch antenna element with diode tuning" ; Electronics Letters, 27 (20), 1846–1848, (1991).

[**Hub63**] J. Hubbard ; "Electron Correlations in Narrow Energy Bands" ; Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences, 276 (1365), 238–257, (1963).

- [**Hou97**] V. Le Houe, P. Pochat, P. Geling ; "Réalisation d'une antenne agile en fréquence sur substrat cristal liquide" ; Journées Nationales Micro-ondes, 160–161, (1997).
- [**Hye05**] H.T. Jeong, J.E. Kim, I.S. Chang, C.D. Kim ; "Tunable impedance transformer using a transmission line with variable characteristic impedance" ; IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 53 (8), 2587–2593, (2005).
- [**ITRS**] International Technology Roadmap for Semiconductors ; Emerging Research Devices (ERD) and Emerging Research Materials (ERM) Reports ; <http://www.itrs.net>
- [**Kei98**] V.N. Keis, A.B. Kozyrev, M.L. Khazov, J. Sok, J.S. Lee ; "20GHz tunable filter based on ferroelectric (Ba,Sr)TiO<sub>3</sub> film varactors" ; Electronics Letters, 34 (11), 1107–1109, (1998).
- [**Kim04**] H.-T. Kim, B.-G. Chae, D.-H. Youn, S.-L. Maeng, G. Kim, K.-Y. Kang, Y.-S. Lim ; "Mechanism and observation of Mott transition in VO<sub>2</sub>-based two- and three-terminal devices" ; New Journal of Physics, 6, 52–70, (2004).
- [**Kim05**] K.-B. Kim, T.-S. Yun, H.-S. Kim, I.-D. Kim, H.-G. Kim, J.-C. Lee ; "Coplanar ferroelectric phase shifter on silicon substrate with TiO<sub>2</sub> buffer layer" ; 35th European Microwave Conference, 1, 649–652, (2005).
- [**Kim06**] H.-T. Kim, Y.W. Lee, B.-J. Kim, B.-G. Chae, S.J. Yun, K.-Y. Kang, K.-J. Han, k.-J. Yee, Y.-S. Lim ; "Monoclinic and correlated metal phase in VO<sub>2</sub> as evidence of the mott transition : Coherent phonon analysis" ; Physical Review Letters, 97 (26), (2006).
- [**Kim08**] H.-T. Kim, B.-J. Kim, Y. W. Lee, B.-G. Chae, S.J. Yun, "Switching of the Mott transition based on hole-driven MIT theory" ; Physica B, 403, 1434–1436, (2008).
- [**Kim10**] H.-T. Kim, B.-J. Kim, S. Choi, B.-G. Chae, Y.W. Lee, T. Driscoll, M. Qazilbash, D.N. Basov ; "Electrical oscillations induced by the metal-insulator transition in VO<sub>2</sub>" ; Journal of Applied Physics, 107 (2), 023702, (2010).
- [**Kir10**] P. Kiria, G. Hyett, R. Binionsa ; "Solid state thermochromic materials" ; Advanced Materials Letters, 1 (2), 86–105, (2010).

- [Kum04]** N. Kumar, T. Fukusako, N. Mita ; "Lithium ferrite and garnet materials for tunable microstrip patch antenna applications" *Memoirs of the Faculty of Engineering, Kumamoto University*, 48 (1), 29–42, (2004).
- [Lac08]** B. Lacroix, A. Pothier, A. Crunteanu, P. Blondy ; "Phase Shifter Design Based on Fast RF MEMS Switched Capacitors" ; *European Microwave Integrated Circuit Conference*, 478–481, (2008).
- [Lad69]** L.A. Ladd, W. Paul ; "Optical and transport properties of high quality crystals of V<sub>2</sub>O<sub>4</sub> near the metallic transition temperature" ; *Solid State Communications*, 7 (4), 425–428, (1969).
- [Lem11]** K.V. Lemberg, A.M. Serzhantov ; "Tunable resonant microstrip phase shifter with the magneto dielectric substrate" ; *International Siberian Conference on Control and Communications*, 201, 212–214, (2011).
- [Ler11]** J. Leroy, A. Bessaudou, F. Cosset, A. Crunteanu ; "Structural, electrical and optical properties of thermochromic VO<sub>2</sub> thin films obtained by reactive electron beam evaporation" ; *Thin Solid Films*, 520, 14, 4823-4825, (2011).
- [Lie03]** S. Liebus ; "Couches minces ferroélectriques appliquées aux dispositifs microondes accordables en fréquence", Thèse : Électronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique ; Université de Limoges, (2003).
- [Liu04]** J. Liu, Q. Li, T. Wang, D. Yu, Y. Li ; "Metastable vanadium dioxide nanobelts : Hydrothermal synthesis, electrical transport, and magnetic properties" ; *Angewandte Chemie - International Edition*, 43 (38), 5048–5052, (2004).
- [Lug05]** C. Lugo, J. Papapolymerou ; "Single switch reconfigurable bandpass filter with variable bandwidth using a dual-mode triangular patch resonator" ; *IEEE MTT-S International Microwave Symposium Digest*, 4, (2005).
- [Mal09]** R. Malmqvist, P. Rantakari, C. Samuelsson, M. Lahti, S. Cheng, J. Saijets, T. Vähä-Heikkilä, A. Rydberg, J. Varis ; "RF MEMS based impedance matching networks for tunable multi-band microwave low noise amplifiers" ; *International Semiconductor Conference*, 1, 303–306, (2009).

- [**Man07**] R.G. Mani, S. Ramanathan ; "Observation of a uniform temperature dependence in the electrical resistance across the structural phase transition in thin film vanadium oxide (VO<sub>2</sub>)" ; Applied Physics Letters, 91 (6), (2007).
- [**Mar08**] D. Mardivirin, A. Pothier, M. El Khatib, A. Crunteanu, O. Vendier, P. Blondy ; "Reliability of Dielectric Less Electrostatic Actuators in RF-MEMS Ohmic Switches" ; 38th European Microwave Conference, 1517–1520, (2008).
- [**Med09**] M.A. Medina-Plata, G. Leiiia-Hernandez, L.A. Iturri-Hinojosa ; "Performance analysis of PIN diodes in microwave switches" ; Journal of Vectorial Relativity, 4 (4), (2009).
- [**Mor59**] F.J. Morin ; "Oxides Which Show a Metal-to-Insulator Transition at the Neel Temperature" ; Phys. Rev. Lett., 3 (1), 34–36, (1959).
- [**Mot68**] N.F. Mott ; "Metal-insulator transition" ; Reviews of Modern Physics, 40 (4), 677–683, (1968).
- [**Nat67**] H.C. Nathanson, W.E. Newell, R.A. Wickstrom, J.R. Davis ; "The resonant gate transistor" ; IEEE Transactions on Electron Devices, 14(3), 117–133, (1967).
- [**Nyb84**] G.A. Nyberg, R.A. Buhrman ; "Preparation and optical properties of reactively evaporated VO<sub>2</sub> thin films" ; Journal of Vacuum Science Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films, 2 (2), 301–302, (1984).
- [**Orl12**] J.-C. Orlianges, J. Leroy, A. Crunteanu, R. Mayet, P. Carles, C. Champeaux ; "Electrical and optical properties of vanadium dioxide containing gold nanoparticles deposited by pulsed laser deposition" ; Applied Physics Letters, 101 (13), 133102, (2012).
- [**Pap09**] S. Ilias Pappas ; "New Developments in Liquid Crystals, Chapitre 8 : Active-Matrix Liquid Crystal Displays - Operation, Electronics and Analog Circuits Design" ; (2009).
- [**Pat12**] C.D. Patel, G.M Rebeiz ; "A High-Reliability High-Linearity High-Power RF MEMS Metal-Contact Switch for DC-40 GHz Applications" ; IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 60 (10), 3096–3112, (2012).

- [**Pei65**] R. Peierls ; "Quantum Theory of Solids" ; 229, (1965).
- [**Per03**] A. Pergament ; "Metal–insulator transition : the Mott criterion and coherence length" ; J. Phys. : Condens. Matter, 15, 3217–3223, (2003).
- [**Per04**] A.-L. Perrier, P. Ferrari, J. Duchamp, D. Vincent ; "A varactor tunable complex impedance transformer" ; 34th European Microwave Conference, 1, 301–303, (2004).
- [**Per08**] A. Perucchi, L. Baldassarre, E. Arcangeletti, D. Di Castro, P. Postorino, S. Lupi ; "Infrared study of pressure-induced insulator to metal transitions in vanadium oxide compounds at the SISSI@Elettra beamline" ; Infrared Physics & Technology, 51 (5), 440–442, (2008).
- [**Pop12**] M.A. Popov, D.V.B. Murthy, I.V. Zavislyak, G. Srinivasan ; "Magnetic field tunable 18-36 GHz dielectric bandpass filter" ; Electronics Letters, 48 (2), 98–99, (2012).
- [**Pot03**] A. Pothier ; "Conception, réalisation et test de microcommutateurs micro-électromécaniques et application aux circuits hyperfréquences reconfigurables" ; Thèse : Electronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique ; Université de Limoges, (2003).
- [**Pri07**] M. Prince, X. Ma, P. Docker, M. Ward, P. Prewett ; "The development of a novel Bio-MEMS filtration chip for the separation of specific cells in fluid suspension" ; Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part H : Journal of Engineering in Medicine, 221 (2), 113–128, (2007).
- [**Qaz07**] M.M. Qazilbash, M. Brehm, B.-G. Chae, P.-C. Ho, G.O. Andreev, B.-J. Kim, S.J. Yun, A.V. Balatsky, M.B. Maple, F. Keilmann, H.-T. Kim ; "Mott transition in VO<sub>2</sub> revealed by infrared spectroscopy and nano-imaging" ; Science, 318 (5857), 1750–1753, (2007).
- [**Reb09**] G. Rebeiz, K. Entesari, I. Reines, S. Park, M. El-tanani, A. Grichener, A. Brown ; "Tuning in to RF MEMS" ; IEEE Microwave Magazine, 10 (6), 55–72, (2009).
- [**Ric70**] T.M. Rice, D.B. McWhan ; "Metal-insulator Transition in Transition Metal Oxides" ; IBM Journal of Research and Development, 14 (3), 251–257, (1970).

- [**Rin05**] M. Rini, A. Cavalleri, R.W. Schoenlein, R. López, L.C. Feldman, R.F. Haglund, L.A. Boatner, T.E. Haynes ; "Photoinduced phase transition in VO<sub>2</sub> nanocrystals : control of surface-plasmon resonance ultrafast" ; *Optics Letters*, 30 (5), 558–560, (2005).
- [**Rod91**] M.J.W. Rodwell, M. Kamegawa, R. Yu, M. Case, E. Carman, K.S. Giboney ; "GaAs nonlinear transmission lines for picosecond pulse generation and millimeter-wave sampling" ; *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 39 (7), 1194–1204, (1991).
- [**Ruz07**] D. Ruzmetov, K.T. Zawilski, V. Narayanamurti, S. Ramanathan ; "Structure-functional property relationships in rf-sputtered vanadium dioxide thin films" ; *Journal of Applied Physics*, 102 (11), (2007).
- [**Ruz09**] D. Ruzmetov, G. Gopalakrishnan, J. Deng, V. Narayanamurti, S. Ramanathan ; "Electrical triggering of metal-insulator transition in nanoscale vanadium oxide junctions" ; *Journal of Applied Physics*, 106 (8), (2009).
- [**Sah02**] M.B. Sahana, G.N. Subbanna, S.A. Shivashankar ; "Phase transformation and semiconductor-metal transition in thin films of VO<sub>2</sub> deposited by low-pressure metalorganic chemical vapor deposition" ; *Journal of Applied Physics*, 92 (11), 6495–6504, (2002).
- [**Sak08**] J. Sakai, M. Kurisu ; "Effect of pressure on the electric-field-induced resistance switching of VO<sub>2</sub> planar-type junctions" ; *Phys. Rev. B*, 78 (3), 033106, (2008).
- [**Sam97**] M. Sambì, G. Sangiovanni, G. Granozzi, F. Parmigiani ; "Growth and the structure of epitaxial VO<sub>2</sub> at the TiO<sub>2</sub>(110) surface" ; *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 55 (12), 7850–7858 ; (1997).
- [**Sep08**] N. Sepúlveda, A. Rúa, R. Cabrera, F. Fernández ; "Young's modulus of VO<sub>2</sub> thin films as a function of temperature including insulator-to-metal transition regime" ; *Applied Physics Letters*, 92 (19), 191913, (2008).
- [**Spe62**] W. Spendley, G.R. Hext, F.R. Himsforth ; "Sequential Application of Simplex Designs in Optimisation and Evolutionary Operation" ; *Technometrics*, 4 (4), 441–461, (1962).

- [**Ste00**] G. Stefanovich, A. Pergament, D. Stefanovich ; "Electrical switching and Mott transition in VO<sub>2</sub>" ; J. Phys. : Condens. Matter, 12, 8837-8845, (2000).
- [**Ste10**] R. Stefanini, M. Chatras, P. Blondy, G.M. Rebeiz ; "Compact 2-pole and 4-pole 2.4 - 2.8 GHz dual-mode tunable filters" ; IEEE MTT-S International Microwave Symposium Digest, 1480–1483, (2010).
- [**Ste11**] R. Stefanini, M. Chatras, P. Blondy, G.M. Rebeiz ; "Miniature MEMS Switches for RF Applications" ; Journal of Microelectromechanical Systems ; 20 (6), 1324–1335, (2011).
- [**Str09**] E. Strelcov, Y. Lilach, A. Kolmakov ; "Gas Sensor Based on Metal–Insulator Transition in VO<sub>2</sub> Nanowire Thermistor" ; Nano Letters, 9 (6), 2322–2326, (2009).
- [**Suh04**] J.Y. Suh, R. Lopez, L.C. Feldman, R.F. Haglund Jr. ; "Semiconductor to metal phase transition in the nucleation and growth of VO<sub>2</sub> nanoparticles and thin films" ; Journal of Applied Physics, 96 (2), 1209–1213, (2004).
- [**Ten03**] N. Tentillier ; "Contribution à la Caractérisation Diélectrique Micro-onde de Cristaux Liquides. Application aux Circuits Agiles en Fréquence" ; Thèse : Electronique ; Université des Sciences et Technologies de Lille, (2003).
- [**Tie02**] J. Tieman, J. Schmalzel, R. Krchnavek ; "Design of a MEMS-based, 3-axis accelerometer smart sensor" ; 2nd ISA/IEEE Sensors for Industry Conference, 19–23, (2002).
- [**Uhe91**] J. Uher, W.J.R. Hofer ; "Tunable microwave and millimeter-wave band-pass filters" ; IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques ; 39 (4), 643–653, (1991).
- [**Van26**] Van der Pol ; "On relaxation-oscillations" ; Phil. Mag. Ser. 7, 2, 978–92, (1926).
- [**Vik05**] V.S. Vikhnin, S. Lysenko, A. Rua, F. Fernandez, H. Liu ; "The model of ultrafast light-induced insulator-metal phase transition in vanadium oxide" ; Journal of Physics : Conference Series, 21, 44–49, (2005).
- [**Wes08**] K.G. West, J. Lu, J. Yu, D. Kirkwood, W. Chen, Y. Pei, J. Claassen, S.A. Wolf ; "Growth and characterization of vanadium dioxide thin films prepared by reactive-biased

target ion beam deposition" ; Journal of Vacuum Science and Technology A : Vacuum, Surfaces and Films, 26 (1), 133–139, (2008).

[Wil31] A.H. Wilson ; "The theory of electronic semi-conductors" ; Proc. Roy. Soc., A 133, 450, (1931).

[Yan02] F. Yang, Y. Rahmat-Samii ; "A reconfigurable patch antenna using switchable slots for circular polarization diversity" ; IEEE Microwave and Wireless Components Letters, 12 (3), (2002).

[Yan11] J.G. Yang, K. Yang ; "Ka-band 5-Bit MMIC phase shifter using InGaAs PIN switching diodes" ; IEEE Microwave and Wireless Components Letters, 21 (3), 151–153, (2011).

[Yang11] Z. Yang, C. Ko, S. Ramanathan ; "Oxide Electronics Utilizing Ultrafast Metal-Insulator Transitions" ; Annual Review of Materials Research, 41 (1), 337–367, (2011).

[Zyl75] A. Zylbersztein, N.F. Mott ; "Metal-insulator transition in vanadium dioxide" ; Physical Review B, 11 (11), 4383–4395, (1975).

**Chapitre II : Etude des propriétés non-linéaires du VO<sub>2</sub>  
intégré dans des dispositifs à deux terminaux (2T)**



## II.1. Introduction

Au cours du premier chapitre, nous avons recensé différentes solutions permettant la réalisation de dispositifs accordables, en particulier, dans le domaine des micro-ondes. Parmi ces solutions, nous nous sommes intéressés au cas du dioxyde de vanadium (VO<sub>2</sub>) qui présente une transition de phase réversible isolant-métal (transition MIT) à 68°C. Lorsqu'il se présente sous la forme d'une couche mince, la transition MIT dans ce matériau peut alors être déclenchée par différents stimuli (thermiques, électriques, optiques, pressions/ stress) et engendrer diverses variations des propriétés du matériau (changement rapide et abrupt de ses propriétés électriques, diélectriques, optiques, etc.).

Dans ce deuxième chapitre, nous allons présenter en détail l'étude de l'activation électrique de la transition MIT dans le VO<sub>2</sub>. Plus précisément, nous allons nous intéresser aux propriétés non-linéaires présentes dans les caractéristiques courant-tension (caractéristiques I-V) de films de VO<sub>2</sub> qui sont intégrés sous la forme de motifs dans des dispositifs de type deux-terminaux (dispositifs 2T). L'étude de ces non-linéarités va nous permettre de mieux comprendre le processus de la transition MIT du VO<sub>2</sub> lors d'une activation électrique. Elle nous permettra également d'utiliser au mieux cette transition déclenchée de manière électrique dans la conception et la réalisation de fonctions accordables.

Premièrement, nous réalisons une présentation générale de l'activation électrique des dispositifs 2T intégrant des films de VO<sub>2</sub>. Ensuite, en observant successivement les non-linéarités présentes lors de la transition MIT en mode tension puis en mode courant, nous mettons en avant une hypothèse sur le mécanisme de cette transition. Nous essayons de confirmer cette hypothèse en étudiant l'influence sur la transition du VO<sub>2</sub> de différents paramètres liés, notamment, au circuit électrique de commande et à l'environnement dans lequel sont intégrés les dispositifs. Puis, nous étudions le mécanisme de conduction électrique du matériau dans sa phase isolante, avant le déclenchement de la transition MIT, en mode tension et en mode courant. Ensuite, nous mettons en évidence l'apparition d'un phénomène d'auto-oscillations électriques périodiques aux bornes des dispositifs à base de VO<sub>2</sub> qui se produit lors de la transition MIT. Nous nous intéressons aux conditions dans lesquelles on observe ce phénomène mais aussi à l'évolution de ses caractéristiques en fonction de paramètres du circuit électrique, de l'environnement et des dimensions des dispositifs. Enfin, nous terminons cette seconde partie par l'étude des performances (fiabilité, temps de commutation) et les applications potentielles de dispositifs à base de VO<sub>2</sub>.

## II.2. Activation électrique des dispositifs de type deux-terminaux à base de VO<sub>2</sub>

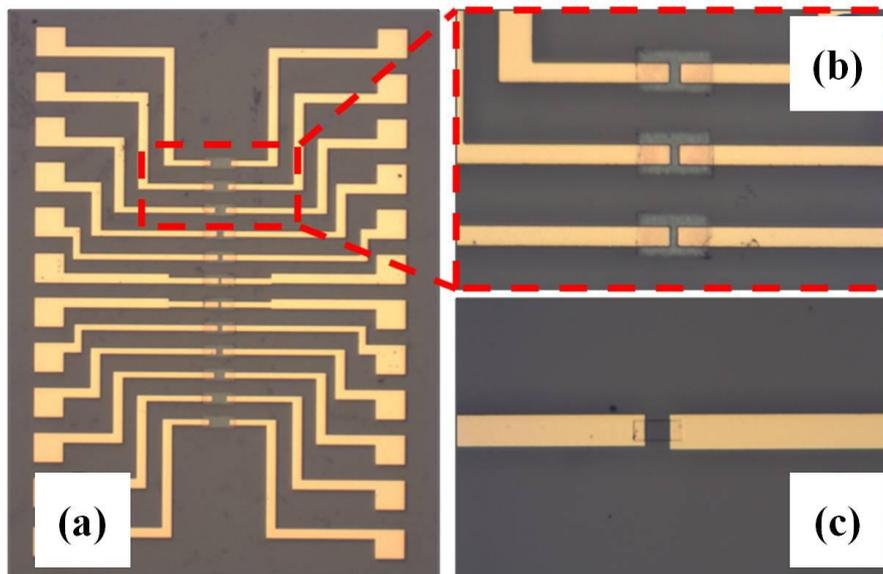
La transition MIT des films minces de VO<sub>2</sub> peut non seulement être déclenchée de manière thermique mais aussi en utilisant une commande électrique, par l'application d'une tension ou l'injection d'un courant dans le matériau, à l'aide d'électrodes métalliques placées sur le film. Pour la réalisation de dispositifs facilement intégrables, l'activation électrique du VO<sub>2</sub> est une approche attractive par rapport à l'activation thermique car elle offre des temps d'activation plus rapides et surtout une implémentation plus facile. Il nous a donc semblé important d'étudier, dans un premier temps, les caractéristiques courant-tension (I-V) de ces commutateurs à VO<sub>2</sub>.

L'intérêt pour ce mode de déclenchement concerne, tout d'abord, le temps d'activation de la transition MIT, qui peut atteindre l'échelle des nanosecondes [Cha05, Ler12] ce qui est beaucoup plus rapide que l'échelle temporelle de la transition thermique du VO<sub>2</sub> (microsecondes aux millisecondes). De plus, lorsque l'on utilise une activation thermique pour réaliser des tests, il suffit de placer l'échantillon sur un élément chauffant de type Peltier mais lors d'une intégration du matériau au niveau d'un composant, l'implémentation de ce type d'actionnement s'avère complexe, nécessitant l'utilisation d'un système de réseaux de résistances chauffantes, consommatrices d'énergie. De la même manière, l'implémentation d'une activation optique de la transition MIT dans le VO<sub>2</sub> implique l'utilisation de moyens expérimentaux difficiles à mettre en place (une source laser pour chaque composant à activer). Au contraire de ces autres modes d'activation, l'actionnement électrique est assez simple à mettre en place en appliquant une tension ou en injectant un courant dans le matériau par l'intermédiaire de deux ou trois électrodes métalliques/ terminaux posés sur le matériau. L'activation électrique rend également possible le contrôle localisé des composants, contrairement aux activations de type thermique ou optique. Ainsi, lors de la réalisation d'un circuit complexe contenant différents composants/ commutateurs à base de VO<sub>2</sub>, on peut contrôler la transition de l'un ou l'autre de ces composants de façon indépendante. Par conséquent, contrairement à une activation globale (type thermique et/ ou optique), le nombre de réponses possibles dans un circuit complexe contenant plusieurs dispositifs à base de VO<sub>2</sub> est donc beaucoup plus important lorsque l'on utilise une activation électrique de la transition MIT.

## II.2.1. Commutateurs à deux terminaux à base de VO<sub>2</sub>

### II.2.1.1. Fabrication des dispositifs 2T

Pour l'activation électrique de la transition MIT dans les films de VO<sub>2</sub>, nous avons fabriqué des composants de type deux-terminaux (2T), en utilisant les technologies classiques de micro-fabrication en salle blanche. Pour ceci, des films minces de VO<sub>2</sub> ont été déposés en utilisant les techniques de l'ablation laser réactive ou d'évaporation à canon d'électrons sur des substrats de saphir c. Comme mentionné auparavant, les films de VO<sub>2</sub> obtenus, d'environ 100 nm d'épaisseur, sont cristallins et montrent un changement de résistivité d'environ 4 – 5 ordres de grandeur pendant la transition MIT initiée thermiquement. En utilisant les procédés de lithographie et de gravure humide qui nécessitent l'emploi de seulement deux niveaux de masques (procédés détaillés dans l'**Annexe 2**), nous définissons des composants planaires constitués de motifs de VO<sub>2</sub> de formes rectangulaires sur lesquels nous disposons des électrodes métalliques (typiquement en Ti/ Au) (**Figure II.1a**). Les électrodes permettent de relier électriquement le motif au circuit électrique de commande et fixent également la longueur effective des motifs. La longueur du dispositif 2T à VO<sub>2</sub> est définie par la distance entre ces électrodes et elle est choisie entre 5 µm et 100 µm.

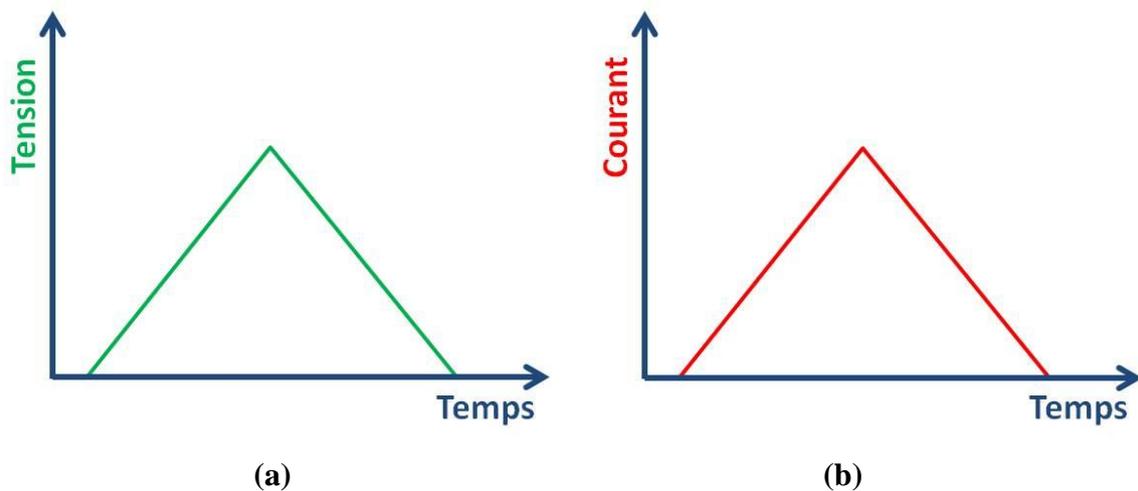


**Figure II.1 : Images par microscopie optique montrant différents dispositifs de type 2-terminaux (2T) à base de VO<sub>2</sub> (a), agrandissement de trois dispositifs de type 2T où la largeur des électrodes est inférieure à la largeur des motifs de VO<sub>2</sub> (b) et dispositif de type 2T où la largeur des électrodes est supérieure à la largeur du motif de VO<sub>2</sub> (c).**

La largeur des électrodes peut être plus petite que celle des motifs de VO<sub>2</sub> (**Figure II.1b**) mais sauf précision contraire, nous utilisons des dispositifs pour lesquels la largeur des électrodes dépasse celles des motifs (**Figure II.1c**) ; dans ce cas, la largeur effective du dispositif correspond à la largeur réelle du motif de VO<sub>2</sub>.

### II.2.1.2. Caractérisation des dispositifs 2T : mode tension et mode courant

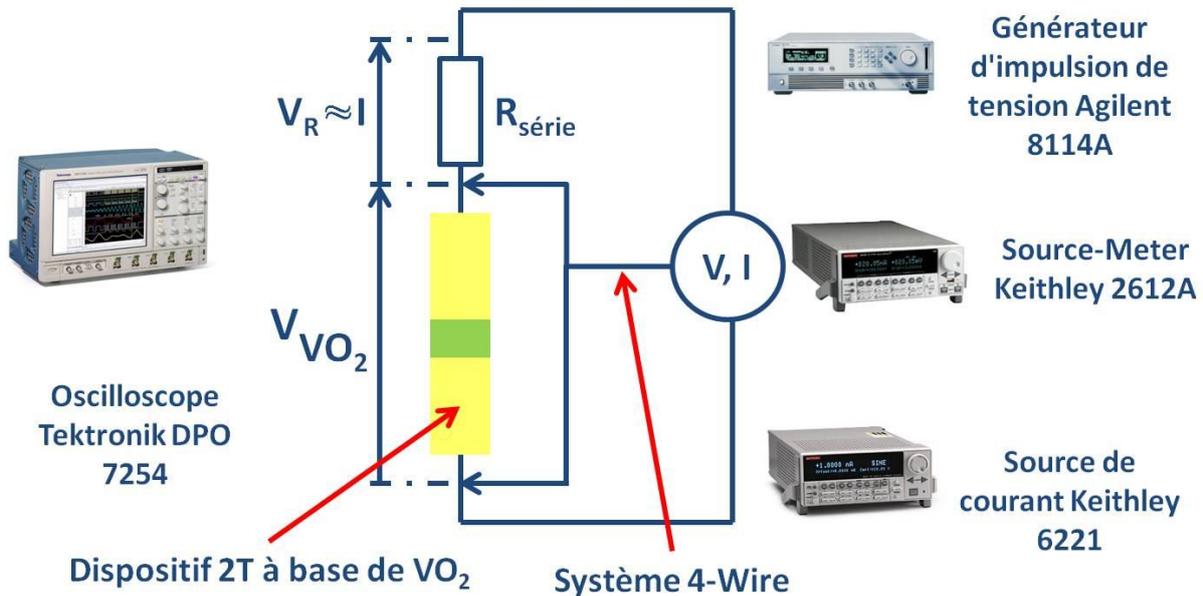
Lors de l'utilisation de l'activation électrique, nous pouvons différencier deux modes de fonctionnement. Dans le premier mode de fonctionnement (mode tension ou fonctionnement contrôlé en tension), la source alimente le circuit intégrant le dispositif à VO<sub>2</sub> en tension (**Figure II.2a**). Dans ce cas, on applique une tension aux bornes du dispositif en fonction du temps et on mesure le courant qui circule dans le circuit. Dans le deuxième mode de fonctionnement (mode courant), la source injecte de manière contrôlée du courant dans le circuit (**Figure II.2b**) et on mesure les valeurs de tension dans le circuit.



**Figure II.2 : Illustrations des deux types de fonctionnement de l'alimentation électrique du circuit d'actionnement et de mesure : mode tension (a) et mode courant (b).**

Pour déterminer leurs caractéristiques électriques, les dispositifs réalisés sont insérés dans un circuit électrique simple présenté sur la **Figure II.3**. Il comporte le dispositif à VO<sub>2</sub>, une résistance série ( $R_{\text{série}}$ ) pour éviter le passage de courants trop forts risquant d'endommager le dispositif et une source d'alimentation de type source mètre Keithley 2612A. Cette source a l'avantage de pouvoir alimenter en mode tension et/ ou courant le circuit et, en même temps, de mesurer le courant et/ ou la tension dans le circuit. En utilisant son système "4-Wire", elle nous donne également la possibilité de s'affranchir de l'influence

de résistances résiduelles dans le circuit (résistances des câbles, résistances en série) et de mesurer directement la tension aux bornes du dispositif 2T à VO<sub>2</sub>.



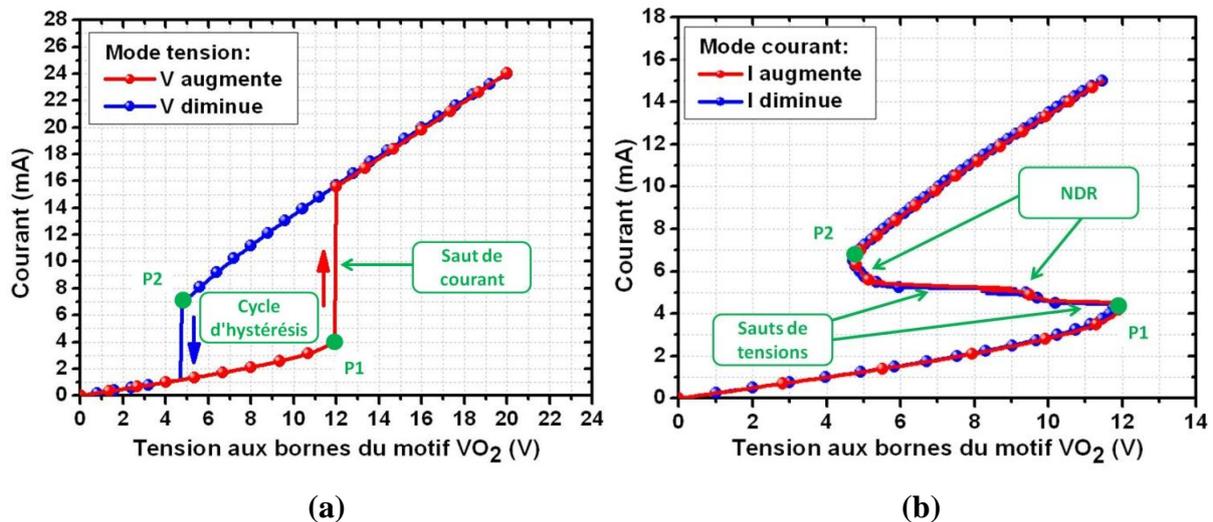
**Figure II.3 : Schéma synthétique du circuit électrique de commande permettant de déterminer les caractéristiques I-V des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> et illustrant les équipements utilisés.**

En fonction des besoins de mesure, cette source Keithley 2612 A peut être remplacée par une source de courant de type Keithley 6221 (générateur de signaux arbitraires) ou par un générateur en tension d'impulsions courtes de type Agilent 8114 ( $V_{pp} = 100$  V, durée minimum de l'impulsion 40 ns) afin de générer des signaux en courant/ tension continus ou alternatifs. Dans ce cas, nous utilisons également un oscilloscope de type Tektronix DPO 7254 pour déterminer la tension aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> et le courant dans le circuit lors de l'application de ces signaux.

### II.2.2. Les caractéristiques courant-tension (I-V) des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>

Des caractéristiques courant-tension I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) typiques des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> sont présentées sur la **Figure II.4** pour les deux modes d'actionnement dans le cas d'un motif de VO<sub>2</sub> de 25 μm de longueur, 18 μm de largeur et 100 nm d'épaisseur. Nous tenons à préciser que la tension mesurée ici est la tension aux bornes du dispositif 2T ( $V_{VO_2}$ ), qui a été déterminée en utilisant le système "4-Wire", et non la tension appliquée aux bornes du circuit ( $V_{app}$ ).

En mode tension (**Figure II.4a**), la transition isolant-métal se repère par la présence d'une tension seuil correspondant à la transition MIT ( $\sim 12$  V) suivie par un saut abrupt en courant. De 0 à 12 V, le matériau est isolant, avec une caractéristique I-V qui suit une loi de conduction de type Poole-Frenkel (pour lequel le  $\ln(J) -$  densité de courant, évolue linéairement avec la racine carrée de  $E -$  champ électrique appliqué). Une fois la tension seuil (d'activation) atteinte, le matériau passe dans un état métallique et pour des tensions supérieures à 12 V, sa caractéristique I-V obéit à une loi linéaire de type loi d'Ohm. Lors de la descente en tension, on observe une transition inverse (chute brutale de courant), d'un état métallique vers un état isolant mais celle-ci se produit à une tension plus basse, d'environ 4.5 V, que l'on qualifie de tension de désactivation. Ce décalage entre la tension d'activation et la tension de désactivation traduit la présence d'un fort cycle d'hystérésis pour cette activation en mode tension.

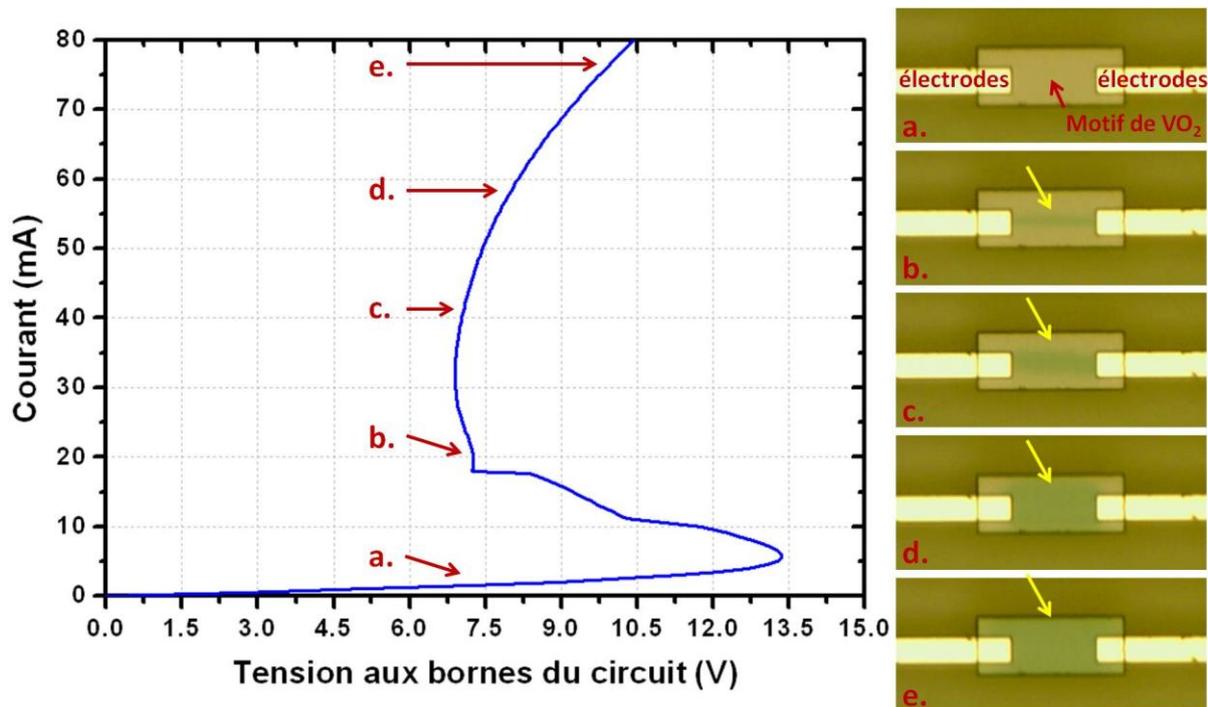


**Figure II.4 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ), à 25°C, en utilisant le mode tension en (a) et le mode courant en (b) d'un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18  $\mu\text{m}^2$  (longueur x largeur) avec une résistance en série de 500  $\Omega$ .**

Les caractéristiques I-V en mode courant (**Figure II.4b**) présentent une allure complètement différente. Comme dans le cas de l'actionnement en mode tension, lorsque le courant imposé dans le circuit augmente, la transition MIT du matériau est initiée à un seuil de courant (le point P1 sur la **Figure II.4b**). Dans ce cas, elle se matérialise par un premier saut négatif de tension, de 12 à 10 V. L'injection progressive du courant met en évidence, sur la courbe I-V, la présence d'une droite avec un coefficient directeur négatif qui traduit une diminution progressive de la résistance du dispositif lorsque le courant augmente. Cette région correspond donc à une *zone à résistance différentielle négative ou NDR*. À la suite de

cette première région NDR, nous avons, à environ 5.5 mA, un deuxième saut négatif de tension, où cette dernière diminue de 9 à 5 V puis une deuxième région NDR qui engendre une nouvelle diminution de la tension jusqu'à 4.5 V. On retrouve alors le point P2 qui correspond au point où l'on observait la transition retour, de l'état métallique vers l'état isolant, en mode tension. Au-dessus de la valeur du courant du point P2 (7 mA), on note à nouveau un comportement correspondant à l'état métallique du matériau (évolution selon une loi linéaire de type loi d'Ohm). Lorsque le courant imposé au dispositif diminue, on observe une transition inverse mais sans la présence visible d'un cycle d'hystérésis.

Pendant les mesures des caractéristiques I-V des différents motifs, nous avons également procédé à des observations visuelles des dispositifs sous tests. Sur la **Figure II.5** est représentée la caractéristique I-V en mode courant d'un motif de VO<sub>2</sub> (100 x 30 μm<sup>2</sup>) ainsi, que les images obtenues par microscopie optique de ce motif prises lors de l'injection de courants de différentes valeurs.



**Figure II.5 : Caractéristique I-V, à 17°C, en mode courant d'un motif de VO<sub>2</sub> de 100 x 30 μm<sup>2</sup> avec une résistance en série de 500 Ω et images de ce motif obtenues par microscopie optique et réalisées à différentes valeurs de courant appliqué.**

Si l'on applique un courant présentant une valeur inférieure au courant seuil de la transition MIT, le motif présente une couleur uniforme qui correspond à sa couleur à l'état

isolant. Lorsque le courant injecté dans le dispositif dépasse le courant seuil, on observe des changements de la couleur du motif de VO<sub>2</sub>. Ce phénomène devient très marqué lorsque les valeurs du courant injecté correspondent aux valeurs de la 2<sup>ème</sup> région NDR de la courbe I-V. Dans cette zone, on observe la formation d'un filament qui parcourt le motif d'une électrode à l'autre. Ce filament correspond à la région du motif de VO<sub>2</sub> qui est devenue métallique à la suite de la transition MIT. Avec l'augmentation du courant injecté, ce filament/ ce chemin conducteur s'élargit, indiquant que les régions latérales au chemin de conduction initial transitent également vers l'état métallique.

Nous allons, dans la suite de ce manuscrit, nous intéresser à l'étude de ces phénomènes non-linéaires des caractéristiques courant-tension, pour chacun des modes utilisés pour l'activation électrique des composants à base de VO<sub>2</sub>.

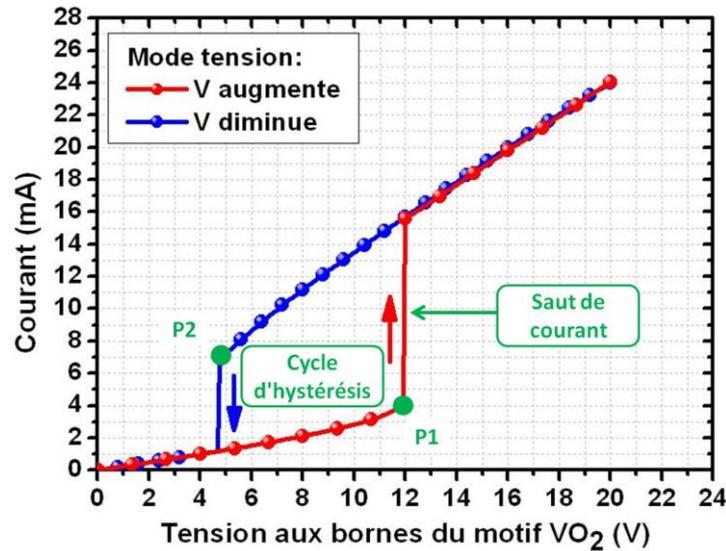
### **II.3. Etude de la transition MIT déclenchée en mode tension**

Le mode d'actionnement en tension de la transition MIT du VO<sub>2</sub> est le mode le plus souvent utilisé pour étudier les caractéristiques I-V de dispositifs à base de VO<sub>2</sub> [Lee13, Kim10, Ruz09]. Nous allons donc commencer par étudier les caractéristiques de la zone de transition MIT pour ce mode d'actionnement et l'influence de différents paramètres électriques ou environnementaux sur le comportement électrique des dispositifs.

#### **II.3.1 Une transition sous la forme de sauts de courant, d'origine thermique**

Sur la **Figure II.6**, nous avons repris les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode tension du motif de VO<sub>2</sub> de 25 μm de longueur, 18 μm de largeur et 100 nm d'épaisseur. Sur ces caractéristiques, on retrouve alors la présence d'un fort cycle d'hystérésis déjà mentionné auparavant.

L'apparition de ce phénomène d'hystérésis assez marqué témoigne d'une différence nette entre les constantes de temps associées d'une part à la transformation isolant-métal et d'autre part à la transformation inverse (métal-isolant). Il est difficile d'évaluer le mécanisme physique à l'origine de cette transition MIT ; il peut être le résultat de l'application du champ électrique à travers le dispositif mais la transition MIT peut également émaner du chauffage par effet Joule (au-delà de la température de transition MIT de 68°C) lors du passage de forts courants à travers la couche mince.



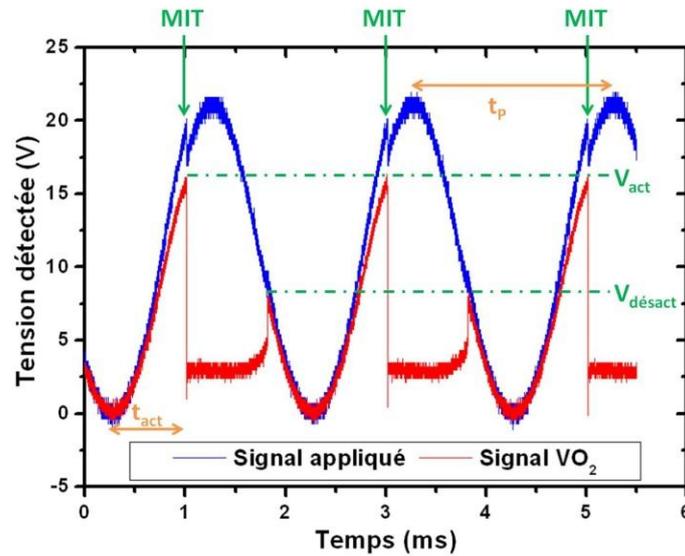
**Figure II.6 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ), à 25°C, en mode tension d'un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 µm<sup>2</sup> avec  $R_{série} = 500 \Omega$ .**

Dans le but de déterminer l'origine de la transition MIT, nous avons réalisé une première étude sur l'influence de la fréquence, d'un signal sinusoïdal en tension appliqué aux bornes du circuit, sur la tension d'activation de la transition MIT du VO<sub>2</sub>. Nous précisons qu'il est possible d'effectuer la même étude en prenant en compte la tension de désactivation mais celle-ci est plus difficilement détectable pour les signaux appliqués de plus grandes fréquences.

Sur la **Figure II.7** sont représentées la courbe du signal sinusoïdal en tension de 500 Hz appliqué aux bornes du circuit (dispositif 2T +  $R_{série}$ ) (courbe bleue) et la courbe du signal de réponse en tension aux bornes du dispositif 2T (courbe rouge).

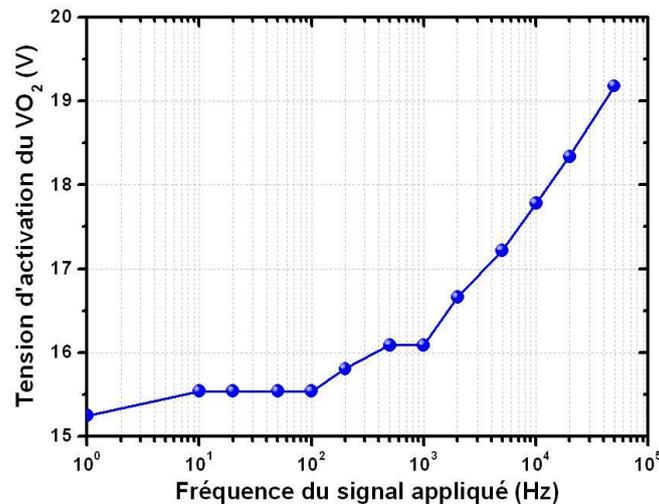
Lorsque la tension appliquée augmente, la tension aux bornes du dispositif 2T augmente de façon assez importante indiquant que la résistance du dispositif 2T est élevée (devant la résistance en série) et par conséquent, que le motif de VO<sub>2</sub> est à l'état isolant. Au moment où la tension appliquée aux bornes du circuit atteint environ 20 V, on observe une chute de tension au niveau de la réponse du dispositif 2T. Cet endroit marque la transition MIT du motif de VO<sub>2</sub> de l'état isolant vers l'état métallique. La tension aux bornes du dispositif 2T, correspondant à la tension d'activation ( $V_{act}$ ), est d'environ 15 V. A partir de ce moment, les variations de tension aux bornes du dispositif 2T deviennent très faibles confirmant le comportement d'un motif à l'état métallique, faiblement résistif. Lorsque la tension appliquée diminue, on note l'apparition du phénomène de transition inverse, de l'état

métallique vers l'état isolant, se produisant à une tension beaucoup plus faible, d'environ 7.5 V (tension seuil de désactivation ( $V_{\text{désact}}$ )). La différence entre les valeurs de tension d'activation et de désactivation définit l'ampleur du phénomène d'hystérésis.



**Figure II.7 : Illustration du signal sinusoïdal en tension appliqué (de 0 à 22 V) aux bornes du circuit (dispositif 2T +  $R_{\text{série}}$ ) et du signal enregistré aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> de 10 x 25  $\mu\text{m}^2$ , à 25°C, avec  $R_{\text{série}} = 1 \text{ k}\Omega$ .**

Sur la **Figure II.8** qui présente l'évolution de la tension d'activation d'un motif de VO<sub>2</sub> en fonction de la fréquence du signal sinusoïdal appliqué, on constate que la tension d'activation MIT augmente lorsque la fréquence du signal appliqué augmente.



**Figure II.8 : Evolution de la tension seuil d'activation en fonction de la fréquence d'un signal sinusoïdal en tension (de 0 à 22 V) appliqué sur un motif de VO<sub>2</sub> de 10 x 25  $\mu\text{m}^2$ , à 25°C, avec  $R_{\text{série}} = 1 \text{ k}\Omega$ .**

Cette évolution de la tension d'activation en fonction de la fréquence du signal n'est pas cohérente avec une transition résultant de l'application d'un champ électrique car ce type de mécanisme devrait être indépendant de la fréquence. De ce fait, on s'oriente vers l'hypothèse d'une transition MIT d'origine thermique lors de l'application d'une tension.

A présent, nous allons essayer de déterminer si les variations de la tension d'activation en fonction de la fréquence sont cohérentes avec un processus d'origine thermique, autrement dit que le déclenchement de la transition MIT lors de l'application d'une tension est le résultat d'un chauffage par effet Joule du matériau. Dans l'hypothèse de ce mécanisme d'origine thermique, l'apport énergétique permettra l'augmentation de la température du VO<sub>2</sub> à des valeurs supérieures à la température de transition MIT (68°C).

Lorsqu'on applique une tension aux bornes du motif de VO<sub>2</sub>, une partie de l'énergie électrique reçue se transforme, par effet Joule, en énergie thermique dont la puissance peut-être quantifiée par la relation **II.1**.

$$P = \frac{V_{VO_2}^2}{R_{VO_2}} \text{ (II.1)}$$

avec  $R_{VO_2}$ , la résistance électrique du motif de VO<sub>2</sub>.

Cette puissance développée dans le motif de VO<sub>2</sub> entraîne alors un flux de chaleur qui se divise en deux parties :

- la première partie de la chaleur se diffuse dans le motif de VO<sub>2</sub>, sous l'effet de la capacité thermique de ce dernier ( $C_{th}$ ), ce qui conduit à une augmentation de sa température ;
- la seconde partie de la chaleur est quant à elle échangée avec le milieu extérieur, par l'intermédiaire de la résistance thermique ( $R_{th}$ ).

A partir de ces considérations, on peut alors écrire la puissance dissipée par effet Joule dans le motif de VO<sub>2</sub> à l'aide de l'équation différentielle du 1<sup>er</sup> ordre suivante :

$$P = \frac{C_{th}dT}{dt} + \frac{T_{VO_2} - T_{amb}}{R_{th}} \text{ (II.2)}$$

avec :

$C_{th}$  et  $R_{th}$  : la capacité et la résistance thermique du motif de VO<sub>2</sub> ;

$T_{VO_2}$  et  $T_{amb}$  : la température du motif de VO<sub>2</sub> et la température ambiante.

En résolvant cette équation, on obtient la relation suivante :

$$T_{VO_2} = R_{th} \frac{V_{VO_2}^2}{R_{VO_2}} \left(1 - e\left(\frac{-t}{R_{th}C_{th}}\right)\right) + T_{amb} \quad (\text{II.3})$$

En faisant l'hypothèse que la transition MIT dans le motif de VO<sub>2</sub> est d'origine thermique, on peut considérer qu'au moment de la transition de l'état isolant vers l'état métallique ( $t_{act}$ ), la température du motif de VO<sub>2</sub> ( $T_{VO_2}$ ) n'est d'autre que la température de transition MIT du motif ( $T_{MIT}$ ), qui est donc une constante, en théorie, égale à 68°C. Ainsi, à partir de la relation **II.3**, on peut déterminer la tension seuil d'activation de la transition MIT. Dans ce cas, on peut également noter que la résistance du motif de VO<sub>2</sub> avant la transition est la résistance du motif à l'état isolant ( $R_{iso}$ ). On peut ainsi écrire la tension d'activation sous la forme de l'équation **II.4** :

$$V_{act} = \sqrt{\frac{R_{iso}(T_{MIT} - T_{amb})}{R_{th} \left(1 - e\left(-\frac{t_{act}}{R_{th}C_{th}}\right)\right)}} \quad (\text{II.4})$$

Dans le cas où le motif de VO<sub>2</sub> est inséré dans un circuit contenant une résistance ( $R_{série}$ ) et alimenté par une source de tension appliquant une tension  $V_{app}$ , on peut noter :

$$V_{app} = \frac{(R_{iso} + R_{série})}{R_{iso}} V_{VO_2} \quad (\text{II.5})$$

On peut donc également écrire la relation suivante :

$$V_{app-act} = R_{iso}(R_{iso} + R_{série}) \sqrt{\frac{(T_{MIT} - T_{amb})}{R_{th} \left(1 - e\left(-\frac{t_{act}}{R_{th}C_{th}}\right)\right)}} \quad (\text{II.6})$$

avec  $V_{app-act}$ , la tension appliquée aux bornes du circuit au moment de la transition MIT de l'état isolant vers l'état métallique.

Pour déterminer la validité de ce modèle électrothermique, il nous faut maintenant faire apparaître, dans ces relations, la fréquence du signal en tension que l'on applique aux bornes du circuit. Si l'on revient au signal en tension sinusoïdal que l'on a appliqué aux bornes du circuit (**Figure II.7**), nous allons considérer qu'il se rapproche d'un signal triangulaire dans le but de simplifier les calculs. Dans ce cas, lorsque la tension augmente, la tension appliquée ( $V_{app}$ ) en fonction du temps ( $t$ ) peut être déterminée par l'équation **II.7**.

$$V_{app} = \frac{2V_{max}t}{t_p} \quad (\text{II.7}) \quad \text{avec } 0 \leq t \leq t_p$$

avec :

$V_{max}$  : l'amplitude maximale du signal en tension appliqué ;

$t_p$  : période du signal en tension appliqué.

A partir de la relation **II.7**, au moment de la transition ( $t_{act}$ ), on peut alors obtenir la relation suivante :

$$t_{act} = \frac{t_p V_{app-act}}{2V_{max}} \quad (\text{II.8})$$

En fusionnant les relations **II.4** et **II.8**, on en déduit la relation **II.9**.

$$V_{act} = \sqrt{\frac{R_{iso}(T_{MIT} - T_{amb})}{R_{th} \left( 1 - e \left( -\frac{t_p V_{app-act}}{2V_{MAX}R_{th}C_{th}} \right) \right)}} \quad (\text{II.9})$$

De cette relation, on peut alors ressortir deux situations extrêmes :

-  $t_p \gg R_{th}C_{th}$  :

$$V_{act} = \sqrt{\frac{R_{iso}(T_{MIT} - T_{amb})}{R_{th}}} \quad (\text{II.10})$$

-  $t_p \ll R_{th}C_{th}$  :

$$V_{act} = \sqrt{\frac{2V_{max}C_{th}R_{iso}(T_{MIT} - T_{amb})}{t_p V_{app-act}}} \quad (\text{II.11})$$

En reprenant la relation **II.5**, la relation **II.11** peut également s'écrire :

$$V_{act} = \sqrt[3]{\frac{2V_{max}C_{th}R_{iso}^2(T_{MIT} - T_{amb})}{R_{iso} + R_{série}}} t_p^{-1/3} \quad (\text{II.12})$$

En étudiant la relation **II.12**, on constate que la tension d'activation, qui coïncide à la tension où  $T_{VO2}$  atteint la température de transition, varie en  $t_p^{-1/3}$  autrement-dit lorsque la fréquence augmente, cette tension augmente. Or, si l'on revient aux résultats de la **Figure II.8**,

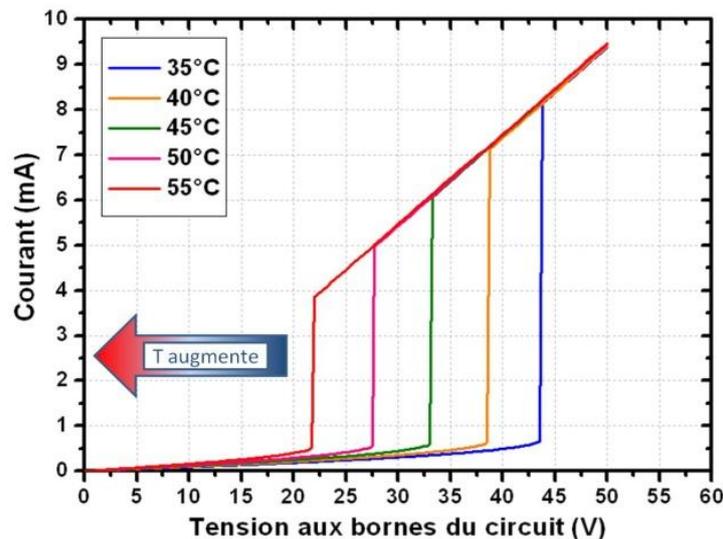
on observe une variation similaire confortant l'hypothèse d'une transition MIT d'origine thermique, lors de l'application d'une tension aux bornes du motif de VO<sub>2</sub>.

### II.3.2. Influence de différents paramètres sur les caractéristiques I-V en mode tension des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>

Dans la suite, nous allons étudier l'effet de paramètres externes et des dimensions géométriques des dispositifs sur leurs caractéristiques électriques en mode tension. Avant tout, il nous faut préciser que pour la suite de cette étude en mode tension, il ne nous a pas été possible de réaliser des mesures avec le système "4-Wire". De ce fait, la tension relevée dans les caractéristiques courant-tension présentées ci-dessous est celle aux bornes du circuit ( $V_{app}$ ) et non la tension aux bornes du dispositif 2T ( $V_{VO_2}$ ).

#### II.3.2.1. L'influence de la température sur les propriétés électriques des dispositifs 2T

Sur la **Figure II.9** sont, tout d'abord, représentées les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{app})$ ) d'un motif de VO<sub>2</sub> pour différentes valeurs de température.

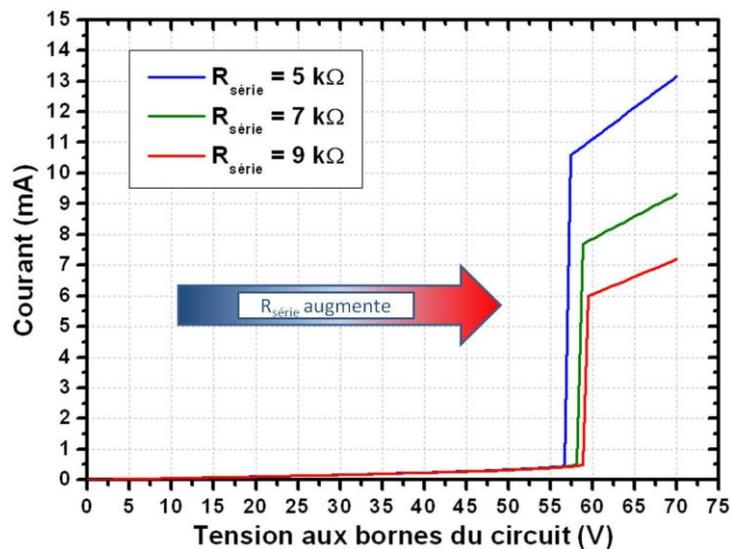


**Figure II.9** : Effet de la température sur les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{app})$ ) en mode tension d'un motif de VO<sub>2</sub> de 10 x 30  $\mu\text{m}^2$  ; où la tension indiquée correspond à la tension aux bornes du dispositif 2T ( $R_{série} = 5 \text{ k}\Omega$ ).

Nous constatons que la tension seuil d'activation MIT diminue de façon assez importante lorsque la température du dispositif augmente. Ce phénomène peut s'expliquer, dans le cadre d'un mécanisme MIT d'origine thermique, en prenant en compte l'équation **II.6**.

Dans cette relation, on constate que la tension seuil à appliquer pour déclencher la transition MIT varie proportionnellement avec la température ambiante ( $T_{amb}$ ). Ainsi, si l'on fait l'hypothèse d'un mécanisme thermique, lorsque la température ambiante augmente, la tension seuil à appliquer pour déclencher la transition MIT diminue. On peut également rajouter que lorsque la température augmente, la résistance du motif de VO<sub>2</sub> ( $R_{iso}$ ) diminue ce qui, d'après la relation **II.6**, conduit également à une diminution de la tension d'activation.

De la même manière, sur la **Figure II.10** sont représentées les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{app})$ ) d'un motif de VO<sub>2</sub> pour différentes valeurs de la résistance en série ( $R_{série}$ ).



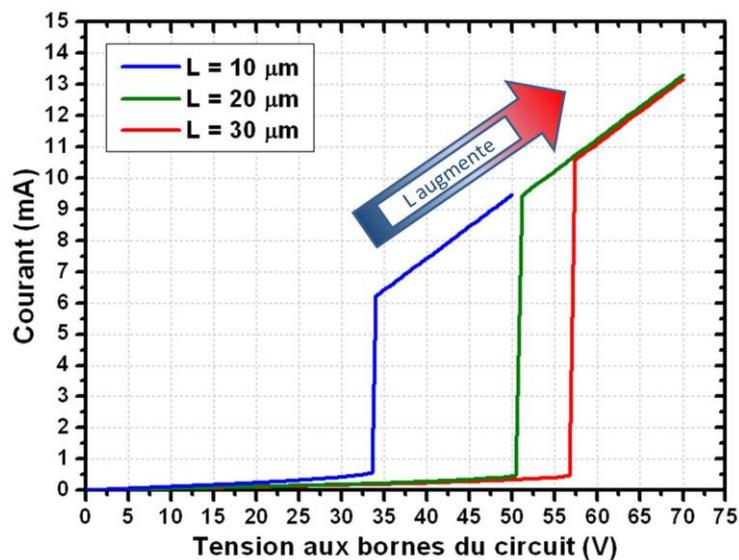
**Figure II.10 : Effet de la valeur de la résistance en série sur les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{app})$ ) en mode tension, à 54°C, d'un motif de VO<sub>2</sub> de 30 x 30  $\mu\text{m}^2$ .**

Nous constatons qu'une augmentation de la résistance série dans le circuit engendre une diminution du courant marquant le début de la zone métallique de la caractéristique I-V, ce qui conforte le rôle de protection en courant de la résistance série. Le changement de la valeur de résistance série a également un effet sur la tension seuil d'activation MIT qui augmente légèrement avec la valeur de cette résistance. Cette variation peut simplement s'expliquer à l'aide de l'équation **II.6**. Dans cette équation, on comprend que la tension seuil est proportionnelle à la résistance en série. De ce fait, lorsque la résistance en série augmente, la tension à appliquer pour déclencher la transition MIT augmente.

### II.3.2.2. L'impact des paramètres géométriques sur les caractéristiques électriques des dispositifs 2T

Nous allons, à présent, étudier l'effet des dimensions des dispositifs réalisés sur la tension seuil d'activation de la transition MIT.

La **Figure II.11** montre, tout d'abord, les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{app})$ ) de dispositifs 2T intégrant des motifs de VO<sub>2</sub> de différentes longueurs (pour une largeur constante de 10 μm). Nous observons que la tension seuil d'activation MIT évolue de façon proportionnelle à la longueur du motif.



**Figure II.11 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{app})$ ) en mode tension, à 54°C, de motifs de VO<sub>2</sub> de différentes longueurs avec une largeur de 10 μm et  $R_{série} = 5 \text{ k}\Omega$ .**

Pour comprendre cette variation, il nous faut reprendre l'équation II.6. Dans cette équation, on note que la tension à appliquer pour déclencher la transition MIT augmente avec la résistance du motif de VO<sub>2</sub> à l'état isolant ( $R_{iso}$ ). Or,  $R_{iso}$  est proportionnelle à la longueur du motif comme le montre la relation suivante :

$$R = \rho \frac{L}{l e} \quad (\text{II.13})$$

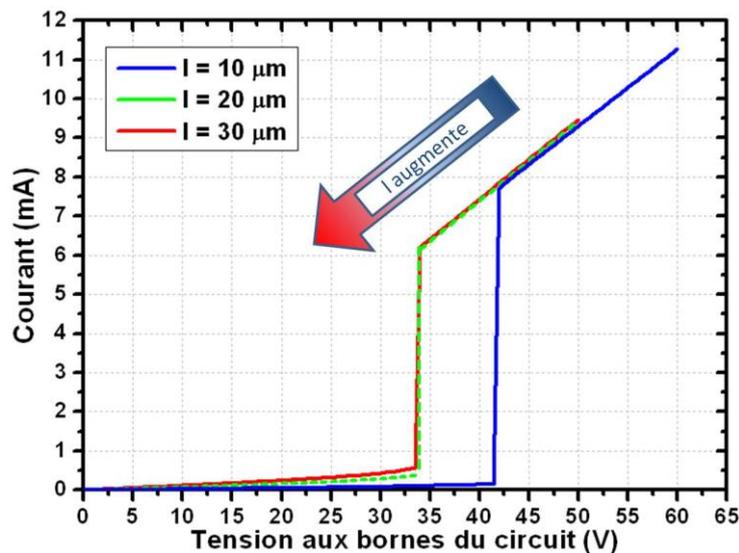
avec :

-  $\rho$  : résistivité du film de VO<sub>2</sub> ;

L, l et e : longueur, largeur et épaisseur du motif de VO<sub>2</sub>.

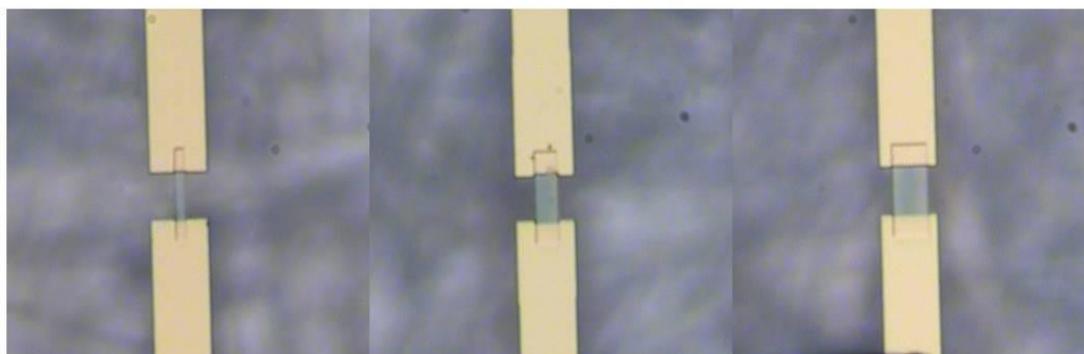
Par conséquent, au moment de la transition MIT, la tension varie de façon proportionnelle à la racine carrée de la longueur du motif de VO<sub>2</sub>.

Sur le même principe, la **Figure II.12** présente les caractéristiques I-V de motifs de VO<sub>2</sub> de différentes largeurs. On constate une diminution de la tension d'activation entre les motifs de 10 et 20  $\mu\text{m}$ . Si on reprend l'équation **II.13**, on note que, contrairement à la longueur, la largeur du motif de VO<sub>2</sub> est inversement proportionnelle à la résistance électrique de ce motif. Ainsi, tout en considérant un mécanisme thermique d'activation de la transition MIT et en appliquant le même raisonnement que pour la longueur, il en résulte une tension seuil MIT évoluant de façon inverse à la largeur des motifs de VO<sub>2</sub>. Toutefois, lorsque l'on compare les caractéristiques des motifs de 20  $\mu\text{m}$  et de 30  $\mu\text{m}$ , on s'aperçoit qu'elles présentent la même tension seuil d'activation de la transition MIT.

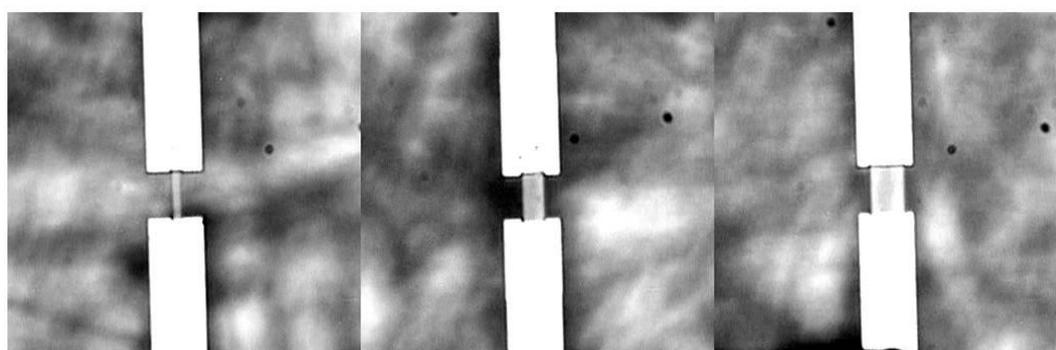


**Figure II.12 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{\text{app}})$ ) en mode tension, à 54°C, de motifs de VO<sub>2</sub> de différentes largeurs avec une longueur de 10  $\mu\text{m}$  et  $R_{\text{série}} = 5 \text{ k}\Omega$ .**

Comme nous l'avons montré auparavant lors d'une simple observation par microscopie optique, la transition MIT provoque également des variations des propriétés optiques des motifs, se manifestant par une différence de couleur entre les parties métalliques et isolantes des motifs. Ainsi, pour essayer de comprendre l'absence de variation de la tension seuil dans les caractéristiques I-V entre les motifs de 20 et 30  $\mu\text{m}$ , nous avons réalisé une observation visuelle des motifs de VO<sub>2</sub> lors de l'application d'une tension supérieure à la tension d'activation (**Figure II.13**).



(a)



(b)

**Figure II.13 : Images par microscopie optique en réflexion des motifs de VO<sub>2</sub> de différentes largeurs lors de l'application d'une tension identique supérieure à la tension d'activation MIT (80 V dans les trois cas) sans traitement en (a) et avec traitement informatique pour améliorer le contraste en (b).**

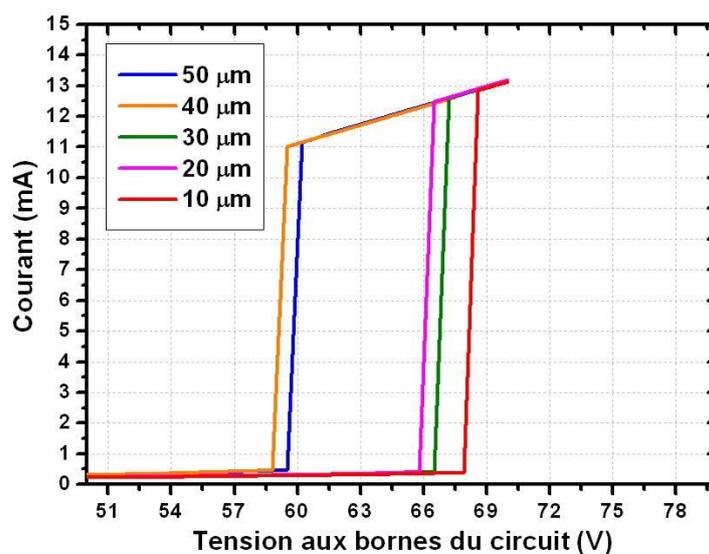
Tout d'abord, si nous observons le motif de 10  $\mu\text{m}$  lors de son activation avec une tension supérieure à la tension seuil de transition, on note qu'il présente une couleur uniforme indiquant qu'il est entièrement à l'état métallique. Ainsi, pour calculer la résistance du motif de VO<sub>2</sub> dans cet état et par conséquent, la tension d'activation, on peut utiliser la largeur réelle du motif (10  $\mu\text{m}$ ).

Ensuite, si nous nous concentrons sur le motif de 20  $\mu\text{m}$ , on retrouve bien une région sombre sur la gauche du motif, de couleur identique à celle du motif de 10  $\mu\text{m}$  qui doit donc correspondre à une zone métallique. Mais on observe également la présence d'une région plus claire sur la droite montrant qu'il reste encore une zone isolante non transformée à l'état métallique, pour la même tension appliquée. Néanmoins, on constate que la largeur de la partie métallique est supérieure à 10  $\mu\text{m}$  ce qui explique que la tension d'activation, qui est

inversement proportionnelle à cette largeur, diminue entre le motif de 10  $\mu\text{m}$  et celui de 20  $\mu\text{m}$ .

En revanche, pour le motif de 30  $\mu\text{m}$  de largeur, on s'aperçoit que la largeur de cette zone métallique semble être identique à celle observée dans le motif de 20  $\mu\text{m}$  avec une zone isolante restante plus importante. De ce fait, on peut considérer que la largeur à prendre en compte pour le motif de 30  $\mu\text{m}$  est identique à celle du motif de 20  $\mu\text{m}$ , ce qui explique que la tension d'activation ne varie pas entre ces deux motifs.

Pour terminer l'étude des caractéristiques I-V en mode tension, nous nous sommes intéressés aux deux configurations possibles des dispositifs 2T où la largeur des électrodes est soit supérieure soit inférieure à celle du motif de VO<sub>2</sub>. Dans ce contexte, la **Figure II.14** montre les caractéristiques I-V de dispositifs 2T présentant des électrodes de différentes largeurs mais ayant tous un motif de VO<sub>2</sub> de mêmes dimensions (longueur x largeur : 10 x 30  $\mu\text{m}^2$ ).



**Figure II.14 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{\text{app}})$ ) en mode tension, à 54°C, de motifs de VO<sub>2</sub> de 10 x 30  $\mu\text{m}^2$  avec des électrodes de différentes largeurs (de 10 à 50  $\mu\text{m}$ ) et  $R_{\text{série}} = 5 \text{ k}\Omega$ .**

Sur ce graphique, on constate que ces caractéristiques I-V peuvent se regrouper en deux catégories. Dans une première catégorie, nous pouvons inclure les dispositifs où les électrodes ont une largeur inférieure ou égale à la largeur du motif de VO<sub>2</sub> ( $< 30 \mu\text{m}$ ) qui présentent une tension d'activation supérieure à 65 V et dans une autre catégorie, nous retrouvons les dispositifs qui ont une largeur supérieure à la largeur du motif de VO<sub>2</sub> ( $> 30$

μm), avec une tension seuil de transition d'environ 60 V. Tout comme l'effet de la largeur du motif, ce phénomène peut certainement être expliqué par des variations de l'énergie apportée au matériau par effet Joule. Ainsi, en considérant un mécanisme thermique de la transition MIT, il est possible d'expliquer la diminution de la tension seuil lorsque la largeur de l'électrode devient supérieure à la largeur du motif. Mais ces variations mettent avant tout en évidence l'intérêt d'utiliser la configuration où l'électrode est plus large que le motif afin d'obtenir des tensions d'activation moins élevées. De plus, on peut rajouter que cette configuration permet de concentrer tout le champ électrique appliqué à l'intérieur du motif de VO<sub>2</sub> et ainsi, éviter les effets de bord et la courbure des lignes de champs dans le motif.

À travers cette étude sur les caractéristiques I-V, en mode tension, des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>, nous avons, tout d'abord, mis en avant que la transition MIT se matérialise par des sauts de courant dans les caractéristiques courant-tension des dispositifs et pourrait avoir une origine purement thermique, du fait de la présence d'un fort effet d'hystérésis. Nous avons, ensuite, pu constater que la tension d'activation de cette transition était relativement sensible à différents paramètres propres ou externes aux dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> et toutes ces variations peuvent s'expliquer par un mécanisme d'origine thermique de la transition MIT dans le matériau.

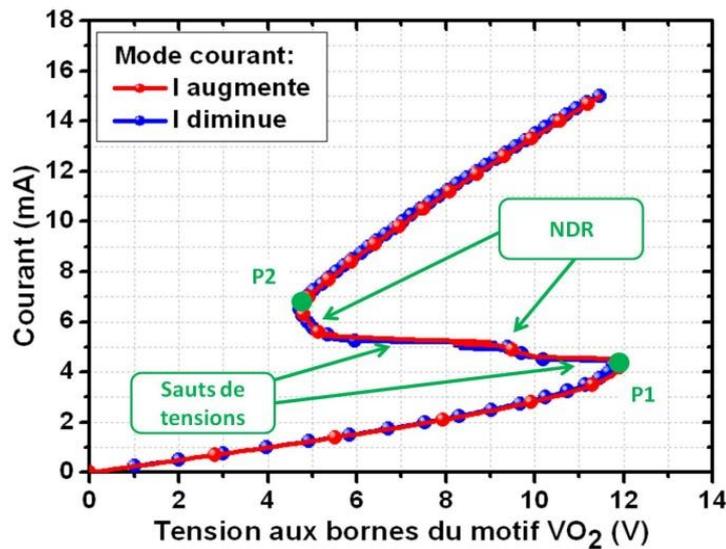
#### **II.4. Etude de la transition MIT lors de l'actionnement des dispositifs 2T à VO<sub>2</sub> en mode courant**

Après avoir étudié les non-linéarités de la transition MIT dans les dispositifs 2T à VO<sub>2</sub> en mode tension, nous nous sommes intéressés à l'étude des non-linéarités électriques présentes en mode courant. L'intérêt de cette étude est de nous permettre de confirmer les résultats obtenus en mode tension et d'apporter de nouveaux éléments pour mieux comprendre la transition MIT. Au passage, il nous faut préciser que, contrairement au mode tension, l'ensemble de l'étude en mode courant, sauf mention faite, a été réalisée avec le système "4-Wire". De ce fait, la tension mesurée est la tension aux bornes du dispositif 2T ( $V_{VO_2}$ ) et non la tension aux bornes du circuit ( $V_{app}$ ).

### II.4.1. Une transition initiée par percolation isolant-métal

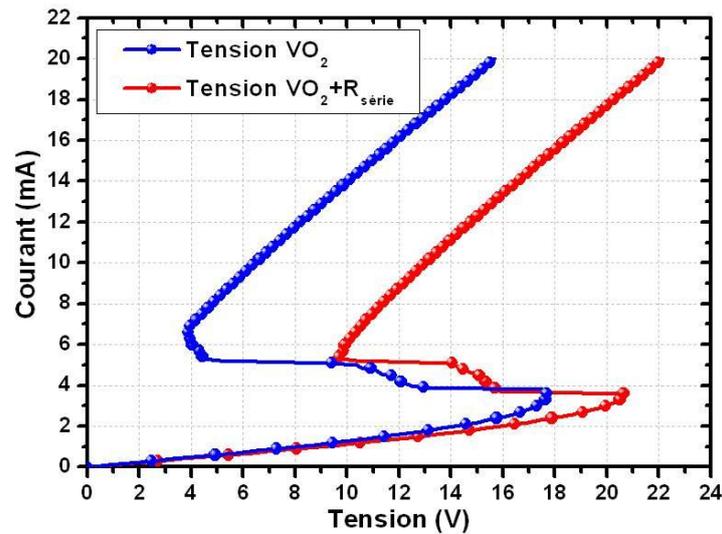
Sur la **Figure II.15**, nous avons repris les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant d'un dispositif 2T intégrant un motif de VO<sub>2</sub> (25 x 18 μm<sup>2</sup>).

Comme nous l'avons mentionné auparavant, celles-ci se distinguent de celles observées en mode tension par une zone de transition plus complexe (**Figure II.15**). Si la transition MIT en mode tension était caractérisée par la présence d'un simple saut de courant, en mode courant, on observe dans l'ordre : un saut négatif de tension, une première région NDR, un nouveau saut négatif de tension et une deuxième région NDR.



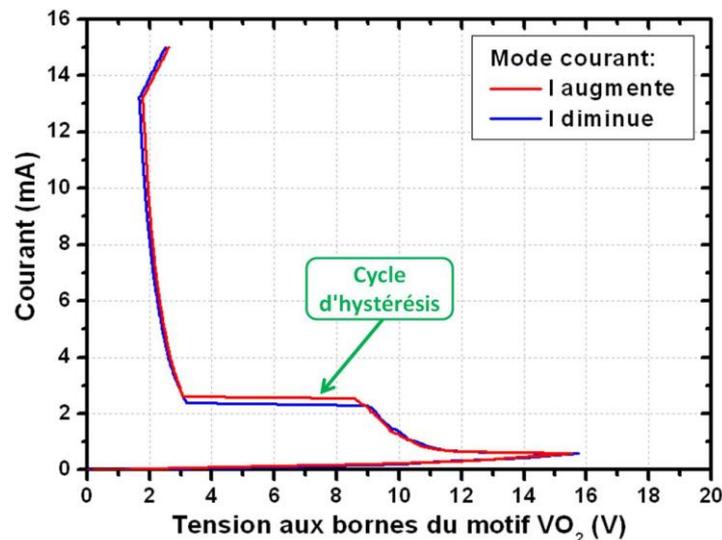
**Figure II.15** : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant, à 25°C, du dispositif intégrant un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup> (présenté en mode tension dans la **Figure II.6**) avec  $R_{série} = 500 \Omega$ .

En comparant les deux zones NDR, on constate que la seconde présente une résistance négative différentielle moins forte, autrement-dit la diminution de résistance dans cette deuxième région NDR est moins importante. D'ailleurs, si l'on trace la caractéristique I-V en prenant également en compte la résistance en série dans le circuit,  $R_{série}$  ( $I= f(V_{app})$  – courbe rouge sur la **Figure II.16**), la deuxième région NDR (courbe bleue sur la **Figure II.16**,  $I=f(V_{VO_2})$ ) n'est plus visible car elle est compensée par la résistance placée en série.



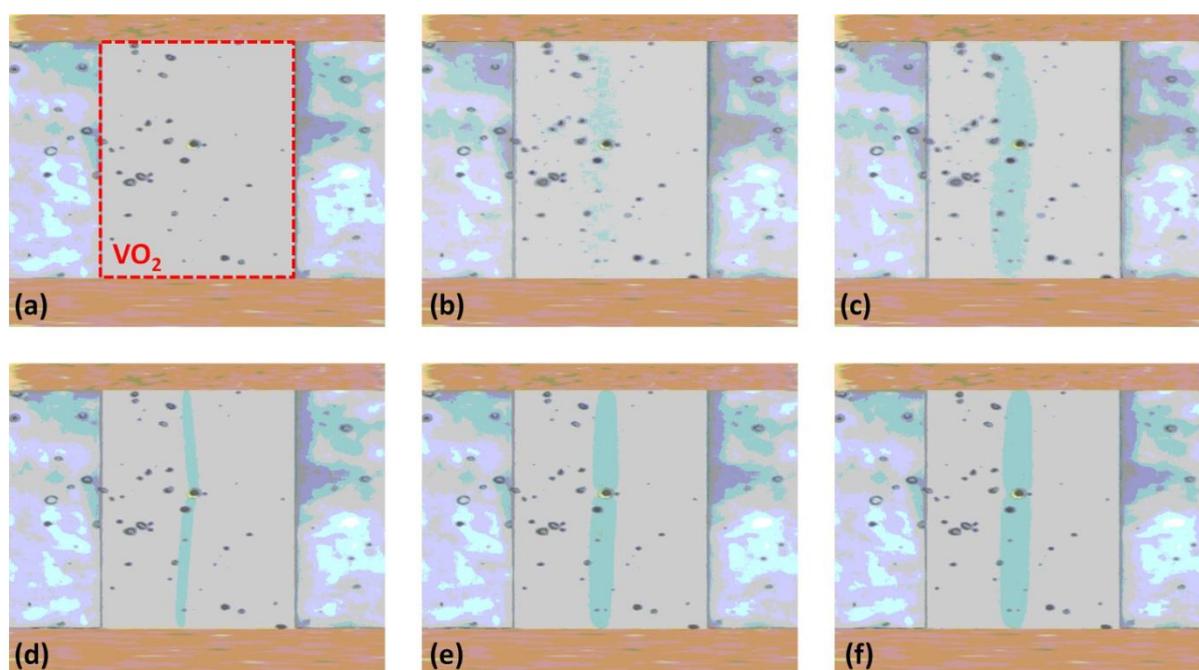
**Figure II.16 :** Comparaison des caractéristiques I-V, à 25°C, avec la tension prise soit aux bornes du circuit (motif de VO<sub>2</sub> + R<sub>série</sub>) soit directement aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> (dimensions de 25 x 18 μm<sup>2</sup> et avec R<sub>série</sub> = 500 Ω).

Enfin, on peut constater que pour le motif dont les caractéristiques I-V sont représentées sur la **Figure II.15**, nous n’observons pas de cycle d’hystérésis comme dans le cas d’un actionnement en mode tension (**Figure II.6**). Ceci peut signifier une diminution des effets thermiques mis en jeu lors de la transition MIT activée en mode courant. Cependant, sur la majorité des caractéristiques I-V des composants caractérisés, il subsiste un cycle d’hystérésis (exemple sur la **Figure II.17**) mais il est généralement nettement moins important que dans le cas de l’activation en mode tension.



**Figure II.17 :** Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant, à 25°C, d’un motif de VO<sub>2</sub> de 35 x 18 μm<sup>2</sup> avec R<sub>série</sub> = 1 kΩ.

Pour mieux comprendre le mécanisme de la transition MIT des motifs de VO<sub>2</sub> en mode courant, nous allons nous appuyer sur l'observation visuelle de motifs de VO<sub>2</sub> lors de l'injection, dans le dispositif, de courants avec des valeurs correspondant à chacune des zones constituant la caractéristique I-V en mode courant (**Figure II.15**). Comme on peut le rappeler, la transition MIT initiée électriquement induit la modification des propriétés optiques du matériau VO<sub>2</sub>, modification facilement mise en évidence par simple observation en microscopie optique. Sur la **Figure II.18** sont ainsi représentées des images obtenues par microscopie optique d'un dispositif intégrant un motif de VO<sub>2</sub> (80 x 50 μm<sup>2</sup>) lors de l'injection de courants avec des valeurs correspondant aux différentes régions dans la caractéristique I-V.



**Figure II.18 : Images par microscopie optique (soumises à un traitement logiciel pour augmenter le contraste) d'un motif de VO<sub>2</sub> (80 x 50 μm<sup>2</sup>) lors de l'injection de courants avec différentes valeurs correspondant aux diverses zones constituant la caractéristique I-V : a. zone isolante b. et c. région NDR1, d. et e. région NDR 2, f. région métallique.**

Tout d'abord, lorsque l'on injecte des courants de faibles valeurs, le matériau reste dans sa phase isolante (**Figure II.18a**), l'ensemble du motif présente une couleur gris clair assez uniforme. On peut juste noter la présence de points noirs correspondant à des défauts dans le film qui sont dus à un problème au moment du dépôt par PLD.

Puis, lors de l'injection de courants avec des valeurs correspondant à la première zone NDR (**Figure II.18b**), on observe l'apparition de petites zones (couleur bleue sur la figure) qui parcourent le motif sur sa longueur, dans le sens de l'injection du courant et correspondent certainement à l'apparition de domaines métalliques. Dans cette partie de la caractéristique I-V, le courant injecté permet de dépasser la tension seuil d'activation MIT et ainsi, de produire un échauffement par effet joule suffisant pour déclencher localement la transition MIT dans ces domaines. Comme dans le cas du mode tension, lorsque ces domaines transitent vers l'état métallique cela engendre nécessairement une diminution de la résistance globale du motif. Or, en mode tension, cette diminution est compensée par une augmentation du courant permettant de maintenir la tension constante et par conséquent, l'énergie produite par effet Joule. En revanche, en mode courant, le courant restant constant, la diminution de la résistance engendre une diminution de la tension et donc de l'apport énergétique, empêchant d'autres zones du motif d'atteindre la température de transition MIT et de transiter à l'état métallique. Lorsque le courant injecté augmente, le nombre de domaines métalliques augmente et ces domaines tendent à s'accumuler (**Figure II.18c**) avec comme résultat une diminution progressive de la résistance globale du dispositif (ensemble des résistances des domaines isolants et des domaines métalliques) et par conséquent, une baisse de la tension du dispositif. Ce phénomène de percolation des domaines métalliques au sein d'une matrice isolante [**Kim10, Dri12**] se matérialise donc par une diminution de la tension aux bornes du dispositif lorsque le courant injecté augmente et donne ainsi naissance à la région NDR, présente dans la caractéristique I-V du composant.

Ensuite, en continuant d'augmenter le courant d'injection, ces domaines métalliques finissent par se rejoindre. C'est à ce moment que l'on observe la deuxième chute de tension qui marque la fin de la première région NDR et le début de la seconde zone NDR. Dans cette seconde région NDR (**Figure II.18d**), les zones métalliques forment alors un chemin de conduction étroit entre les deux électrodes. A partir de ce moment, l'augmentation progressive du courant d'injection conduit seulement à l'élargissement progressif (par effet Joule) du chemin de conduction métallique vers les zones adjacentes isolantes (**Figure II.18e**).

Enfin, nous notons qu'à partir d'une certaine valeur de courant, le chemin de conduction ne s'élargit plus (**Figure II.18f**). Dans cette zone, le courant varie de manière linéaire avec la tension du dispositif et même si une partie du motif de VO<sub>2</sub> reste à l'état

isolant, on considère que nous sommes dans la région métallique de la caractéristique I-V du composant.

Avant de poursuivre, il nous faut préciser que ces observations et explications d'ordre phénoménologique restent à confirmer par une analyse à l'échelle nanométrique des phénomènes physiques mis en œuvre lors de la transition de phase MIT. Cette analyse (par exemple, par C-AFM – conductive atomic force microscopy) devrait permettre d'identifier, à l'échelle nanométrique, le phénomène graduel de percolation des domaines métalliques au sein de la matrice isolante du VO<sub>2</sub>, lors de l'injection progressive du courant dans le dispositif. De plus, elle devrait également permettre d'identifier avec plus de précision l'origine des régions de résistance négative.

#### **II.4.2. Influence de différents paramètres sur les caractéristiques I-V en mode courant des dispositifs 2T à VO<sub>2</sub>**

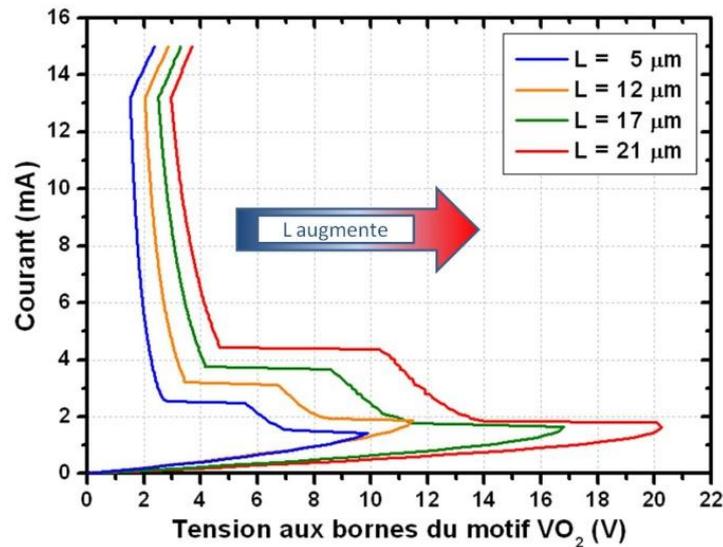
Sur le même principe que le cas de l'actionnement en mode tension, nous allons étudier l'effet de différents paramètres sur les caractéristiques I-V de la zone de transition en mode courant. L'objectif de cette étude est de vérifier nos hypothèses sur l'origine thermique et sur le mécanisme de percolation isolant-métal de la transition MIT dans ce mode de fonctionnement.

##### **II.4.2.1. Les paramètres internes aux dispositifs 2T**

Dans un premier temps, nous avons choisi de nous intéresser à l'effet des dimensions des motifs de VO<sub>2</sub> sur leurs caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) obtenues en mode courant.

Sur la **Figure II.19** sont, tout d'abord, représentées les courbes I-V en mode courant pour des composants à VO<sub>2</sub> de longueurs différentes (de 5 à 21 μm).

En premier, nous observons, comme dans le cas de l'actionnement en mode tension, que la tension d'activation diminue avec la longueur du motif, pour des courants d'activation relativement constants. Comme dans le cas du mode tension, ce phénomène peut s'expliquer en supposant un mécanisme d'activation thermique de la transition MIT. Dans cette hypothèse, d'après la relation **II.4**, la tension d'activation évolue dans le même sens que la résistance du motif de VO<sub>2</sub> à l'état isolant. La résistance du motif de VO<sub>2</sub> étant proportionnelle à la longueur de ce motif (équation **II.13**), au moment de la transition MIT, la tension seuil augmente donc avec la longueur du motif de VO<sub>2</sub>.



**Figure II.19 :** Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant, à 25°C, de motifs de VO<sub>2</sub> avec différentes longueurs et une largeur de 10 µm ( $R_{série} = 500 \Omega$ ).

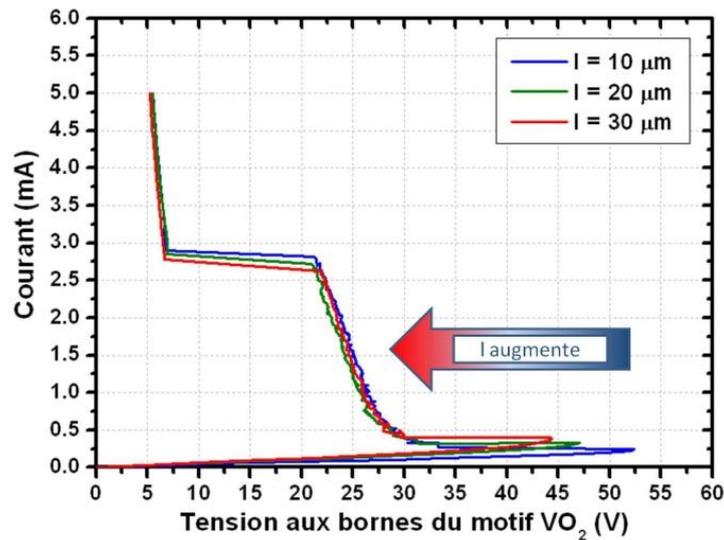
Ensuite, nous notons une augmentation du courant seuil correspondant à la fin de la première région NDR lorsque la longueur du motif augmente. On peut supposer qu'étant donné que la résistance du motif augmente avec la longueur de ce dernier, l'énergie thermique à fournir pour former le chemin de conduction doit être plus élevée ce qui explique l'augmentation du courant seuil correspondant à la formation de ce chemin de conduction.

Enfin, on observe une translation des courbes correspondant à la première et à la deuxième région NDR vers les hautes tensions, autrement-dit une augmentation du rapport  $V/I$ , lorsque la longueur du motif augmente. Cette variation est la conséquence d'une simple augmentation de la résistance du motif lorsque la longueur augmente.

De la même manière, nous avons enregistré les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ), représentées sur la **Figure II.20**, de dispositifs intégrant des motifs de VO<sub>2</sub> de différentes largeurs mais ayant tous une longueur de 30 µm.

Tout d'abord, nous remarquons une légère diminution de la tension d'activation seuil lorsque la largeur des motifs augmente. A l'opposé de la longueur, la largeur du motif de VO<sub>2</sub> est inversement proportionnelle à la résistance électrique de ce dernier (équation **II.13**). Ainsi si l'on reprend l'équation **II.4** qui montre que la tension d'activation est proportionnelle à la résistance du motif alors par conséquent, cette tension diminue lorsque la largeur du motif augmente. Contrairement au mode tension, nous observons également une variation de la tension seuil entre les motifs de largeurs 20 et 30 µm. Il est assez difficile d'expliquer ce

phénomène. Néanmoins, contrairement au mode tension où la tension seuil permet de passer directement à la formation d'un chemin de conduction dans le motif, il faut rappeler qu'en mode courant cette tension seuil délimite l'apparition d'inclusions métalliques. Comme montré sur la **Figure II.18**, nous avons remarqué le fait que, dans cette zone, la région où se forment ces inclusions est plus large que le chemin de conduction final (**Figures II.18 c et d**) ce qui pourrait expliquer les variations de tension seuil pour des motifs plus larges.



**Figure II.20 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant, à 54°C, de motifs de VO<sub>2</sub> de différentes largeurs avec une longueur de 30 µm et  $R_{série} = 500 \Omega$ .**

Mise à part la variation de la tension seuil, on constate aussi une augmentation du courant seuil de la transition MIT. Cela pourrait également s'expliquer par la diminution de la résistance du motif qui fait que pour une tension seuil donnée, la valeur du courant seuil augmente en conséquence.

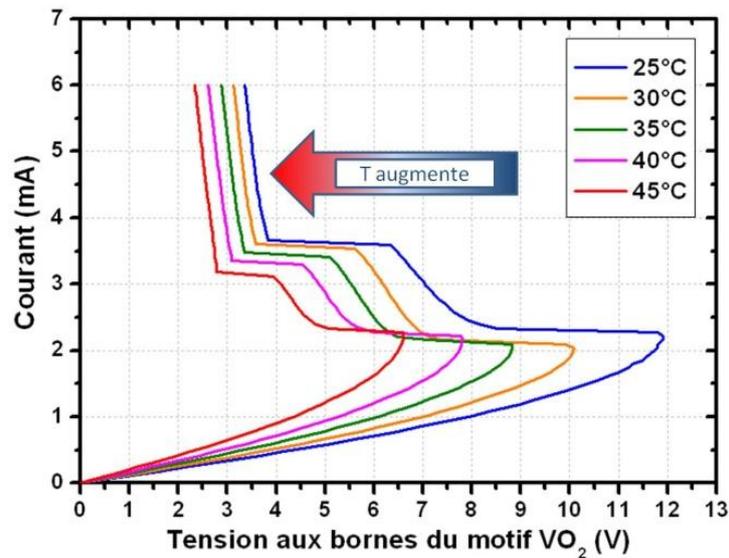
Enfin, si nous nous intéressons à la deuxième région NDR, nous constatons qu'il n'y a aucune variation majeure dans ses caractéristiques. Cette absence de variation est le résultat d'un chemin de conduction métallique qui présente, dans cette zone, une largeur inférieure aux largeurs des motifs caractérisés.

#### II.4.2.2. Les paramètres externes au dispositif

Comme dans le cas du mode d'actionnement en tension, mises à part les dimensions du motif de VO<sub>2</sub>, nous avons également étudié l'effet de paramètres externes sur les caractéristiques I-V en mode courant.

La **Figure II.21** présente, tout d'abord, les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant pour un motif de VO<sub>2</sub> ( $21 \times 20 \mu\text{m}^2$ ) à différentes températures.

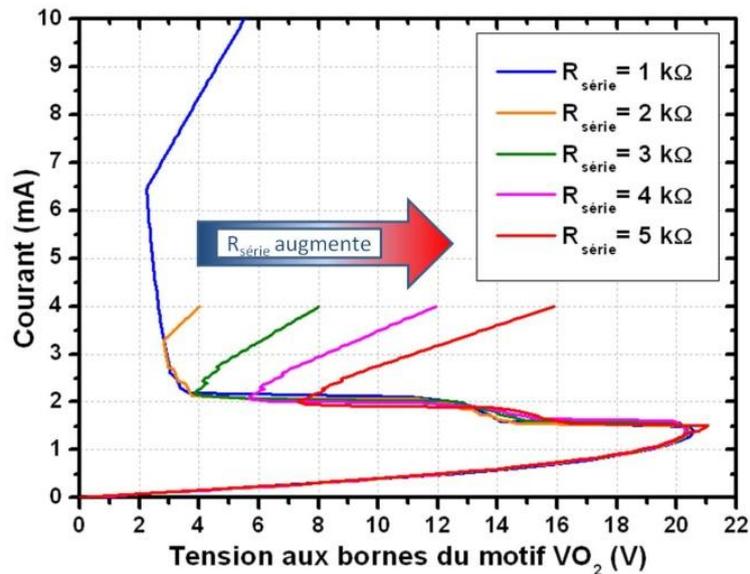
Ces courbes montrent qu'une augmentation de la température externe engendre une diminution de la tension d'activation. Cette variation peut s'expliquer par la relation **II.4** qui montre que la tension d'activation est proportionnelle à la racine carrée de la température. Mais cette variation peut également s'expliquer par la variation avec la température de la résistance globale du dispositif (conformément à la courbe de la variation de la résistivité d'une couche de VO<sub>2</sub> en fonction de la température) qui conduit d'ailleurs à la translation vers des tensions plus basses des courbes de la 1<sup>ère</sup> et de la 2<sup>ème</sup> NDR.



**Figure II.21 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant, pour différentes températures, d'un motif de VO<sub>2</sub> de  $21 \times 20 \mu\text{m}^2$  avec  $R_{\text{série}} = 500 \Omega$ .**

Sur la **Figure II.21**, on peut également observer une diminution avec la montée en température du courant seuil où se termine la première région NDR. Nous pensons que cette variation est également due à la diminution de l'apport énergétique nécessaire pour arriver à la formation du chemin métallique.

Sur le même principe, nous avons, également, étudié l'influence de la valeur de la résistance série dans le circuit électrique sur les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant des dispositifs 2T à VO<sub>2</sub> (**Figure II.22**).



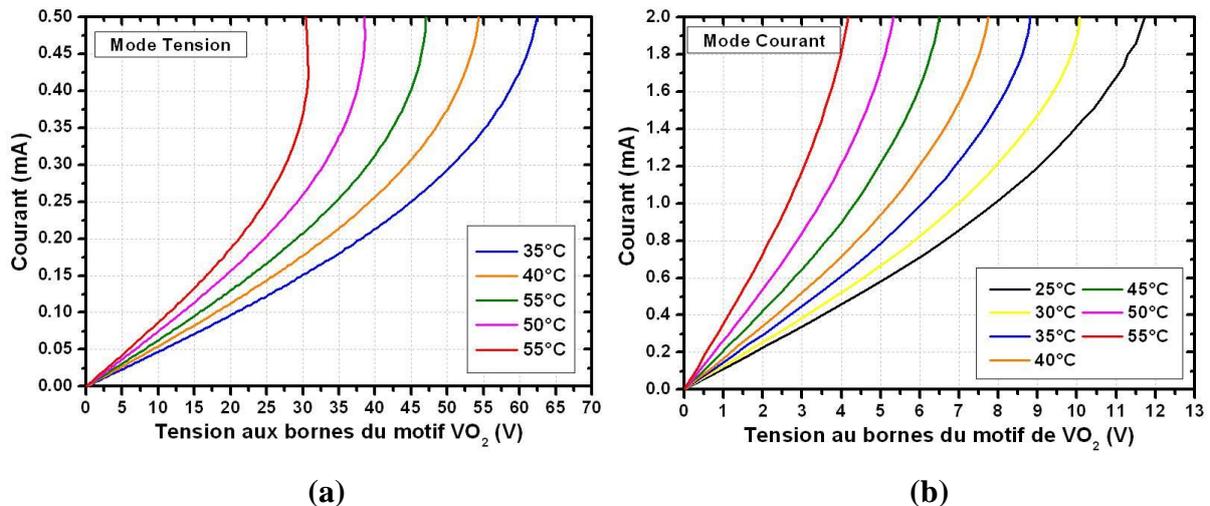
**Figure II.22 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant, à 25°C, de motifs de VO<sub>2</sub> de 20 x 7 μm<sup>2</sup> pour différentes valeurs de la résistance série ( $R_{série}$ ).**

Nous notons que la résistance série a un effet limité sur la tension d'activation ou sur l'allure de la première région NDR. En revanche, elle a un impact notable sur l'allure de la seconde zone NDR et également sur la forme des courbes dans la zone métallique des caractéristiques I-V. Plus précisément, on constate que la valeur du courant délimitant la partie supérieure de la seconde zone NDR et le coefficient directeur de la zone métallique diminuent lorsque la résistance augmente. Plus probablement, ces effets pourraient être la conséquence d'une augmentation de la résistance globale du circuit.

En conclusion de cette étude sur les effets non-linéaires présents dans les caractéristiques I-V des dispositifs à base de VO<sub>2</sub> en mode courant, nous pouvons, tout d'abord, remarquer que pour ce mode d'actionnement la transition MIT est plus complexe, avec la présence de deux zones à résistance différentielle négative (NDR). En se basant sur des analyses phénoménologiques (visualisations par microscopie optique du changement de réflectivité des échantillons lors de l'injection du courant), nous avons mis en évidence la présence d'un mécanisme de percolation isolant-métal donnant naissance à une première région NDR dans la caractéristique courant-tension du composant. Nous avons pu constater que ces caractéristiques I-V étaient sensibles à différents paramètres, avec des évolutions en accord avec une transition MIT d'origine thermique entraînant un mécanisme de percolation.

## II.5. Phénomènes de conduction électrique dans la zone semi-conductrice (isolante), en mode tension et courant

Après avoir étudié l'évolution de la zone de transition MIT des caractéristiques I-V en mode tension puis en mode courant, nous nous concentrons sur l'étude de la zone isolante des caractéristiques I-V des composants 2T réalisés. Sur la **Figure II.23** sont représentées les courbes (en fonction de la température des composants) de ces caractéristiques I-V enregistrées pour des valeurs de tension/ courant inférieures aux seuils de déclenchement de la transition de phase MIT des films de VO<sub>2</sub>.



**Figure II.23 : Variations avec la température des caractéristiques I-V de la zone isolante en mode tension pour un motif de VO<sub>2</sub> de 30 x 30 μm<sup>2</sup> (a) et en mode courant pour un motif de VO<sub>2</sub> de 21 x 20 μm<sup>2</sup> (b).**

Par rapport à la région de conduction métallique (e.g. région n°3 sur la **Figure II.4**) où l'on peut considérer que la conduction est régie par une loi linéaire de type ohmique, les allures fortement non-linéaires observées dans la région isolante des caractéristiques I-V montrent que le mécanisme de conduction dans cette zone ne peut pas correspondre à une simple évolution ohmique. Dans ce contexte, nous allons essayer de déterminer le mécanisme de conduction qui pourrait décrire cette zone isolante en utilisant les données obtenues pour le mode tension mais également pour le mode courant.

La plupart des données disponibles dans la littérature au sujet de l'étude de cette zone de conduction mettent en évidence des lois de conduction électrique basées sur l'effet Poole-Frenkel. Si certaines de ces données arrivent à la conclusion que toute la zone isolante est régie par ce type conduction [**Yan10**], d'autres montrent que pour des valeurs de champs intermédiaires, l'allure des courbes suit une évolution ohmique [**Ruz09**]. Pour des champs

encore plus faibles, Golan et al. parlent même d'une conduction de type Schottky mais en utilisant une architecture de composant comparable à une diode "back to back" (association série de deux diodes en polarisation inverse) [Gol04].

Au vu de la disparité de ces données, nous avons souhaité étudier les caractéristiques de la conduction électrique correspondante à la région isolante des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>. Contrairement aux articles précédents qui utilisaient seulement le mode tension pour identifier ce mécanisme, nous avons réalisé cette étude en mode tension mais également en mode courant afin de conforter nos résultats.

### **II.5.1. Les différents types de conduction électrique dans les semi-conducteurs**

Les mécanismes de conduction qui interviennent dans les matériaux semi-conducteurs peuvent se regrouper en deux catégories en fonction du type de contrôle de la conduction dans le matériau [Seg00].

La première catégorie correspond aux matériaux où la conduction est contrôlée par l'interface entre l'électrode métallique et le matériau. Dans ce type de mécanisme, on considère d'un côté le métal pour lequel tous les électrons disponibles se trouvent en-dessous du niveau de Fermi ( $E_F$ ) et de l'autre côté, le matériau semi-conducteur caractérisé par le niveau supérieur de la bande de valence ( $E_V$ ) et le niveau inférieur de la bande de conduction ( $E_C$ ). Pour participer à la conduction, un électron situé sur le niveau de Fermi du métal doit alors arriver à franchir la barrière de potentiel ( $E_C - E_F$ ) pour "rentrer" dans la bande de conduction du matériau, ce qu'il peut faire de deux façons différentes. Tout d'abord, sous l'effet d'un champ électrique suffisamment fort, il devient possible pour l'électron de passer au-dessus de cette barrière, c'est ce que l'on appelle l'effet Schottky. Ensuite, dans certains métaux de type alcalin, il est possible que, sous l'effet d'un champ électrique moins important, l'électron arrive à franchir cette barrière même si son énergie est inférieure à l'énergie de cette barrière, c'est ce que l'on appelle l'effet Fowler Nordheim qui est un cas particulier des effets tunnels.

La deuxième catégorie de mécanismes de conduction dans les matériaux semi-conducteurs rassemble les mécanismes où la circulation des électrons est liée au volume du diélectrique. Cela est, tout d'abord, le cas de la conduction dite de courant limité par charge d'espace où la mobilité des porteurs est fonction du champ électrique environnant. Ensuite, on trouve la conduction de type Poole-Frenkel dont l'équation caractéristique ressemble

beaucoup à celle de l'effet Schottky mais où la circulation des électrons est contrôlée par des pièges coulombiens engendrés par des défauts dans la structure du matériau. Enfin, il existe la conduction par saut qui se produit dans certains diélectriques où les sites occupés et les sites vides sont proches soit de façon spatiale soit de façon énergétique permettant aux électrons de passer de l'un à l'autre.

Du fait de la diversité de ces mécanismes qui sont résumés sur la **Figure II.24**, on comprend alors pourquoi il n'est pas aussi évident d'identifier le mécanisme intervenant dans un semi-conducteur particulier.

Type de contrôle	Mécanisme	Caractéristique
Interface électrode/ diélectrique	Schottky	$\text{Ln}(J) \approx E^{1/2}$
	Fowler-Nordheim	$\text{Ln}(J) \approx f(1/E)$
Volume diélectrique	Poole-Frenkel	$\text{Ln}(J) \approx f(1/T)$
	CLCE	$J \approx E^{l+1}$ avec $0 < l < 3$
	Conduction par saut	$\text{Ln}(\sigma) \approx 1/T^{1/4}$

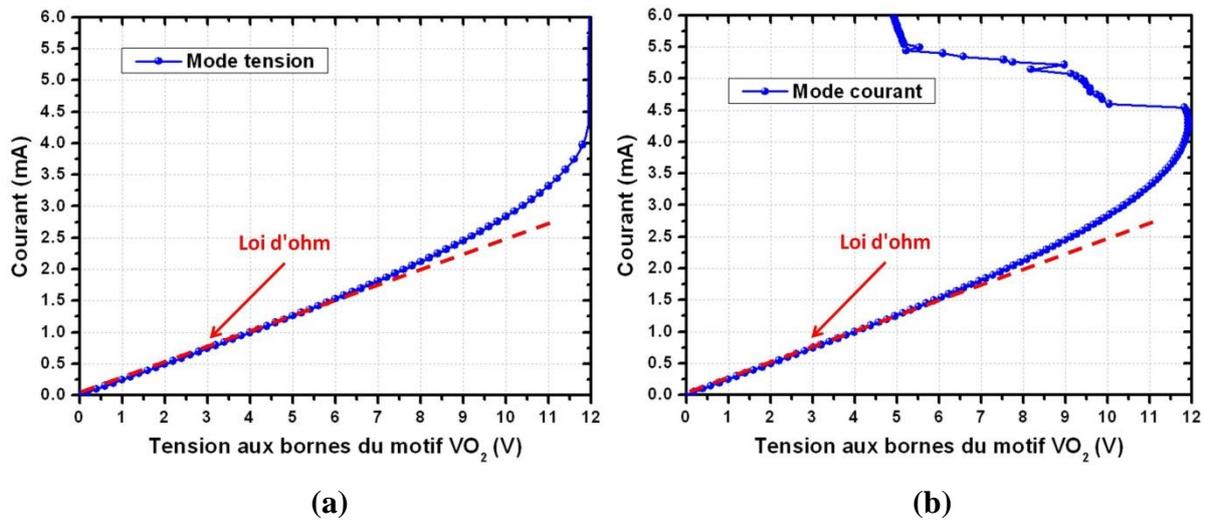
**Figure II.24 : Tableau présentant les différents mécanismes de conduction et les relations caractéristiques (lois de conduction) entre la densité de courant (J), le champ appliqué (E), la conductivité et/ ou la température permettant de les distinguer.**

Néanmoins, sur le tableau de la **Figure II.24**, on constate que chacun de ces mécanismes présente une évolution caractéristique (loi de conduction) entre la densité de courant (J), le champ appliqué (E), la conductivité ( $\sigma$ ) et/ ou la température qui permet de le différencier des autres. Par exemple, on peut observer que la conduction par saut présente une conduction électrique qui évolue en  $T^{1/4}$  où T est la température.

### II.5.2. Le mécanisme de conduction en fonction du champ électrique

Avant tout, on peut préciser que dans la configuration des dispositifs 2T que nous utilisons, les électrodes sont très distancées avec des surfaces en regard très petites. Nous pouvons donc considérer que les mécanismes contrôlés par l'interface métal/ diélectrique sont potentiellement à exclure et que les mécanismes de conduction limités par le volume sont beaucoup plus probables.

Dans ce cadre, sur la **Figure II.25**, nous avons, tout d'abord, repris les caractéristiques I-V, en mode courant et en mode tension, d'un motif de VO<sub>2</sub> (25 x 18 μm<sup>2</sup>) dans la région isolante.



**Figure II.25 : Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ), à 25°C, en mode tension en (a) et en mode courant en (b), d'un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup> avec une résistance en série de 500 Ω montrant une évolution ohmique pour de faibles tensions.**

On constate que lorsque la tension diminue, la fonction  $I=f(V_{VO_2})$  tend vers le comportement d'une droite. Ainsi, comme l'ont observé Ruzmetov et al [Ruz09], à faibles tensions, la conduction dans le motif de VO<sub>2</sub> semble être régie par une simple loi d'Ohm.

Ensuite, en se basant sur les résultats des autres équipes de recherche, nous nous sommes intéressés au mécanisme de conduction de type Poole-Frenkel qui suit une loi de conduction décrite par l'équation II.14.

$$J(E, T) = J_0 \exp \left[ - \frac{(\phi_0 - \beta_{PF} E^{1/2})}{kT} \right] \quad (\text{II.14})$$

avec :

- J : densité de courant ;
- E : champ électrique appliqué ;
- T : température ambiante ;
- J<sub>0</sub> : densité de courant pour E=0 ;
- φ<sub>0</sub> : profondeur de piège ;
- k : constante de Boltzmann (1,38 x 10<sup>-23</sup>) ;

$\beta_{PF}$  : constante de Poole-Frenkel que l'on définit par la relation suivante :

$$\beta_{PF} = \left( \frac{q^3}{\pi \epsilon_r \epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (\text{II.15})$$

avec :

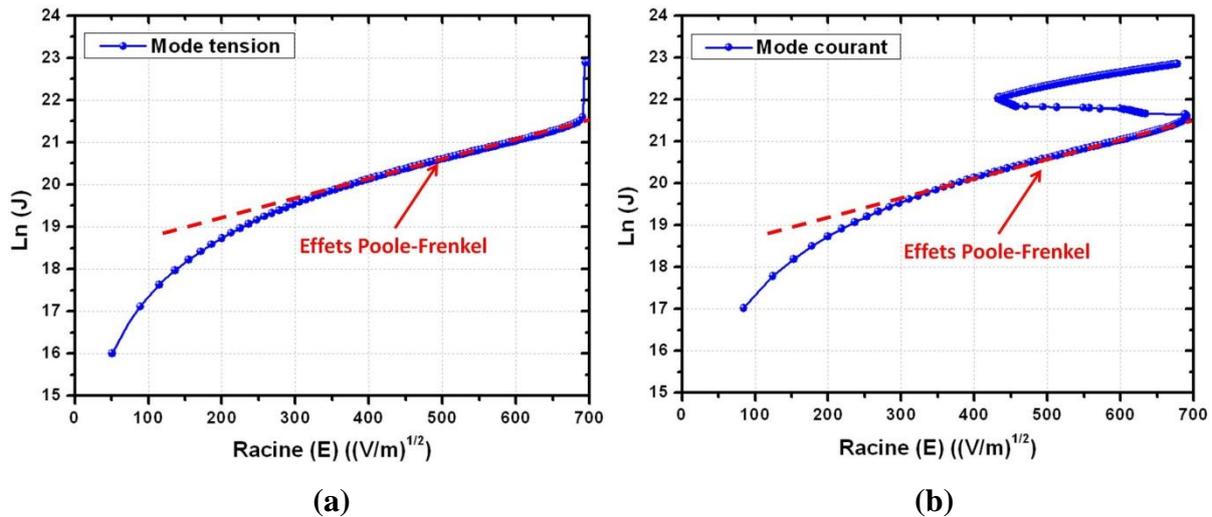
$q$  : charge élémentaire ( $1,602 \times 10^{-19}$  C) ;

$\epsilon_r$  : permittivité relative ;

$\epsilon_0$  : permittivité du vide ( $8,85 \times 10^{-12}$ ).

Dans ce contexte, sur la **Figure II.26**, nous avons représenté les courbes  $\text{Ln}(J) = f(E^{1/2})$ , en mode tension et en mode courant pour le motif de VO<sub>2</sub> de  $25 \times 18 \mu\text{m}^2$  qui devraient correspondre à des droites, comme le montre l'équation **II.16**, si la conduction est effectivement régie par des effets de type Poole-Frenkel.

$$\ln J = Cte - \left( \frac{\beta_{PF}}{kT} \right) E^{1/2} \quad (\text{II.16})$$



**Figure II.26 : Courbes  $\text{Ln}(J) = f(E^{1/2})$ , à 25°C, en mode tension (a) et en mode courant (b), du motif de VO<sub>2</sub> de  $25 \times 18 \mu\text{m}^2$  avec une résistance en série de  $500 \Omega$  montrant un mécanisme de conduction de type Poole-Frenkel pour des champs électriques élevés ( $> 350 (\text{V/m})^{1/2}$ ).**

Si en dessous d'environ  $350 \text{ V/m}^{1/2}$ , on observe une évolution non-linéaire qui correspond à la zone de conduction ohmique, en revanche, au-dessus de cette valeur la courbe  $\text{Ln}(J) = f(E^{1/2})$  devient linéaire aussi bien en mode tension qu'en mode courant. Ainsi, comme Ruzmetov et al [**Ruz09**], nous en déduisons que le mécanisme de conduction dans la zone isolante des dispositifs 2T évolue d'une simple loi ohmique pour des champs électriques

faibles vers une conduction caractéristique d'effets Poole-Frenkel pour des champs électriques plus intenses.

En faisant l'hypothèse que pour les valeurs de champs électriques situées au-dessus de  $1,6 \times 10^5$  V/m ( $E^{1/2} \approx 400$  V/m<sup>1/2</sup>), la courbe  $\text{Ln}(J) = f(E^{1/2})$  suit une évolution linéaire de type Poole-Frenkel, on peut donc considérer que le coefficient directeur de cette droite, noté "a", nous permet de déterminer la permittivité relative du VO<sub>2</sub> comme le montre la relation **II.17** qui est obtenue à partir des relations **II.15** et **II.16**. En appliquant la relation **II.17** aux données des courbes  $\text{Ln}(J) = f(E^{1/2})$  en mode tension et en mode courant présentées auparavant (**Figure II.26**), nous avons obtenu une permittivité relative du VO<sub>2</sub> de 4,45.

$$\epsilon_r = \frac{q^3}{(akT)^2 \pi \epsilon_0} \quad (\text{II.17})$$

Lorsque l'on compare cette valeur aux permittivités relatives obtenues par Yang et al [Yan10] ainsi que par Ruzmetov et al [Ruz09] pour des dispositifs de type MIM (Métal-Isolant-Métal), on s'aperçoit qu'elle n'est pas en accord avec les résultats de ces deux équipes de recherche. D'un côté Ruzmetov et al obtiennent une permittivité relative de 240 à température ambiante et de l'autre côté, Yang et al montrent une permittivité d'environ 36 autour de la même température. Au passage, on peut préciser que Yang et al mettent en évidence une permittivité relative qui augmente lorsque la température augmente. La divergence de nos résultats par rapport à la littérature est liée à la configuration des dispositifs 2T qui ne permet pas de déterminer correctement la permittivité relative. Dans cette configuration, il nous est impossible de connaître la profondeur du canal de conduction car il est possible que cette conduction ne se produise pas dans toute l'épaisseur du motif. Or, cette donnée est nécessaire pour déterminer la densité de courant et par conséquent, la permittivité relative dont le calcul fait appel au coefficient directeur de la droite  $\text{Ln}(J) = f(E^{1/2})$ .

En s'intéressant à la zone isolante en mode tension et courant, nous avons donc pu observer des caractéristiques indiquant une conduction ohmique pour des champs électriques faibles et des effets de type Poole-Frenkel pour des champs électriques plus élevés. Au passage, on peut préciser que les résultats obtenus en mode courant sont équivalents à ceux obtenus en mode tension. Néanmoins, en raison de la configuration des dispositifs 2T, il ne nous a pas été possible de déterminer la permittivité relative du VO<sub>2</sub>. Ce paramètre doit être plus facilement mesuré dans des configurations plus adaptées du dispositif à base de VO<sub>2</sub> comme, par exemple, des configurations de type MIM.

## II.6. Etude du phénomène d'auto-oscillations dans les dispositifs VO<sub>2</sub> de type 2T

Après s'être intéressé à la zone isolante des caractéristiques I-V des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> en mode tension et en mode courant, nous allons maintenant nous concentrer sur l'étude d'un phénomène qui peut se produire dans ces dispositifs et qui est particulièrement intéressant : l'apparition (dans certaines conditions) *d'oscillations intrinsèques* qui peuvent se développer dans le dispositif lors d'un actionnement électrique. Un nombre réduit de publications ont montré qu'il est possible d'observer des oscillations dans les dispositifs à base de VO<sub>2</sub> en mode tension. Dans ce contexte, nous avons voulu déterminer l'origine et les caractéristiques de ces oscillations mais contrairement aux études précédentes, nous avons également étudié la possibilité d'observer ce phénomène lors de l'activation en mode courant.

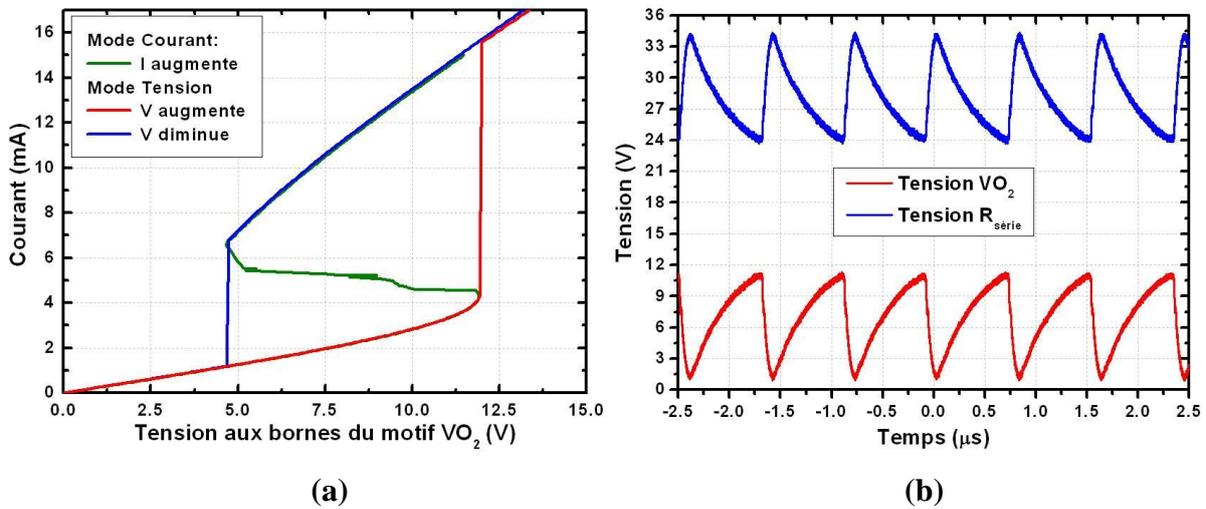
### II.6.1. Des oscillations liées à la résistance différentielle négative dans les caractéristiques I-V

La présence de régions à résistance différentielle négative (NDR) dans les caractéristiques I-V d'un matériau ou d'un composant est généralement un élément indiquant la possibilité de générer un phénomène d'oscillations électriques dans un circuit intégrant ce matériau ou ce composant. Ce lien entre des régions à NDR et des phénomènes d'oscillations a, par exemple, été montré dans des composés à base d'halogénures de nickel [Kiz09] ou encore dans des conducteurs organiques présentant des régions NDR dans leurs caractéristiques I-V [Oza09]. Les circuits oscillants de relaxation de type van der Pol [Pol26, Pol27] ou Pearson-Anson [Pea21, Pear21] utilisent également des composants à NDR comme, par exemple, des diodes ou des lampes à néon.

#### II.6.1.1. Le mécanisme à la base des oscillations intrinsèques dans le VO<sub>2</sub>

En se basant sur différentes publications [Kim10, Fis78, Sak08] qui ont mis en évidence le phénomène d'oscillations dans des dispositifs à base de VO<sub>2</sub> lors d'un actionnement en tension, nous avons voulu retrouver ce phénomène en mode tension dans un dispositif 2T à VO<sub>2</sub> dont les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ), en mode tension et en mode courant, sont présentées sur la **Figure II.27a**. Dans ce but, nous avons fixé la température à 25°C (inférieure à la température de transition MIT, 68°C) et la résistance en série à une valeur assez élevée de 5 kΩ. Lors de l'application d'une tension continue de 35 V aux bornes du circuit (à l'aide du source-mètre Keithley 2612A), nous avons alors mis en évidence

l'apparition de signaux périodiques de tension aux bornes du dispositif VO<sub>2</sub> et sur la résistance en série (signaux enregistrés à l'aide de l'oscilloscope Tektronik DPO 7254) qui sont représentés sur la **Figure II.27b**.



**Figure II.27 : Caractéristiques I-V, à température ambiante, en mode tension et en mode courant d'un dispositif 2T avec un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup> en (a), variations périodiques (auto-oscillations) des tensions enregistrées, à température ambiante, aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> et de la résistance série de 5 kΩ pour une tension continue appliquée aux bornes du circuit de 35 V.**

Pour mieux comprendre le mécanisme de ces oscillations, nous avons reporté, sur la **Figure II.28**, les tensions mesurées aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> (25 x 18 μm<sup>2</sup>) et de la résistance en série (5 kΩ) lors d'un cycle d'oscillations. Si l'on s'intéresse à la forme du signal de tension sur le motif de VO<sub>2</sub> (courbe rouge sur la **Figure II.28**), on constate qu'elle présente les caractéristiques typiques d'un phénomène capacitif (comme dans le cas d'un oscillateur à relaxation).

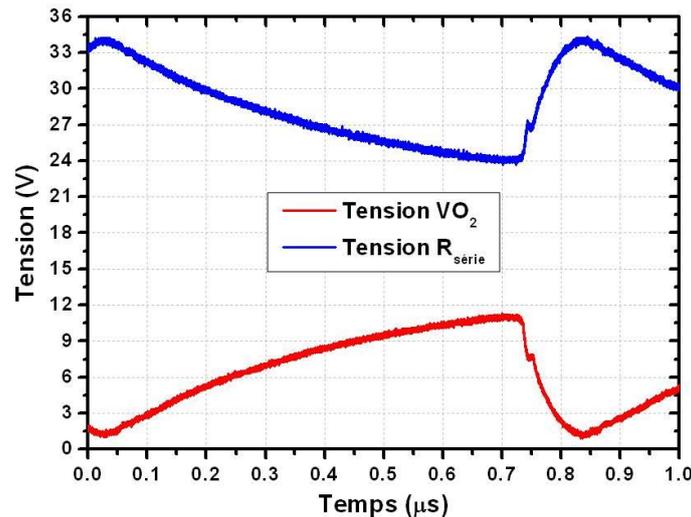
Tout d'abord, pour la variation de tension aux bornes du VO<sub>2</sub> (courbe rouge), le front montant suit la forme d'un chargement capacitif. Sur la même période temporelle, le courant dans le circuit, proportionnel à la tension sur la résistance série (courbe bleue), diminue. La tension sur le VO<sub>2</sub> augmente ainsi, jusqu'à atteindre la tension seuil de la transition MIT (~12 V). Dans cette partie du cycle d'oscillations, la tension aux bornes du VO<sub>2</sub> en fonction du temps peut alors être décrite par la **relation II.18** :

$$V_{VO_2}(t) = V_{app}(1 - \exp(-t/\tau)) \quad (\text{II.18})$$

avec :

$V_{app}$  : tension appliquée aux bornes du circuit ;

$\tau$  : constante de temps du phénomène de chargement qui est égale au produit RC où R et C correspondent, respectivement, à la résistance et la capacité globales du circuit (incluant la résistance et la capacité du motif de VO<sub>2</sub>).



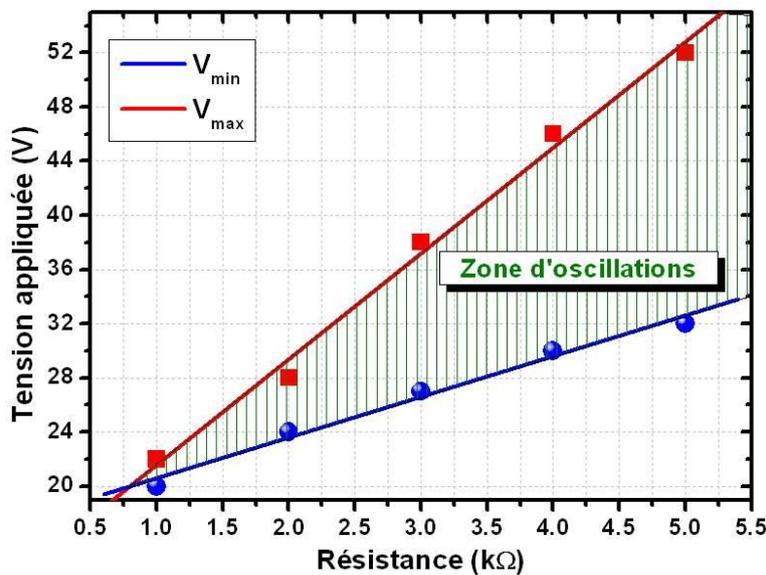
**Figure II.28 : Période d'un cycle d'oscillations observé, à température ambiante, en mode tension pour un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup> et pour R<sub>série</sub> = 5 kΩ.**

Ensuite, le front descendant des oscillations correspond à un phénomène de déchargement rapide de capacité, la tension aux bornes du VO<sub>2</sub> diminue alors que le courant dans le circuit augmente. Le début de ce phénomène coïncide avec la transition MIT du motif de VO<sub>2</sub> et l'apparition d'un chemin conducteur dans le matériau. Une partie du motif de VO<sub>2</sub> étant à l'état métallique, sa résistance globale diminue drastiquement et sa capacité devient quasiment négligeable. A la suite de ce phénomène, la tension du motif de VO<sub>2</sub> descend à des valeurs inférieures à la tension de transformation métal-isolant, le matériau redevient entièrement isolant et de nouveaux cycles d'oscillations se produisent tant que les conditions initiales d'excitation restent réunies.

### II.6.1.2. Mise en évidence du lien entre la première région NDR et le phénomène d'oscillations

Tout comme d'autres recherches sur le sujet, nous avons voulu déterminer l'influence de la tension appliquée et de la résistance en série sur l'apparition des oscillations dans les

dispositifs. D'après les résultats rapportés dans la littérature [Kim10, Fis78, Sak08], ce sont ces deux paramètres qui conditionnent la présence du phénomène d'oscillations, en plus de la température (qui doit être suffisamment inférieure à la température de la transition MIT (68°C)). Sur la représentation graphique de type tension continue appliquée en fonction de la résistance en série du circuit qui est présentée sur la **Figure II.29**, nous avons délimité une plage de fonctionnement à l'intérieur de laquelle le couple tension appliquée/ résistance série permet la génération du phénomène d'oscillations (zone hachurée sur le graphique de la **Figure II.29**).



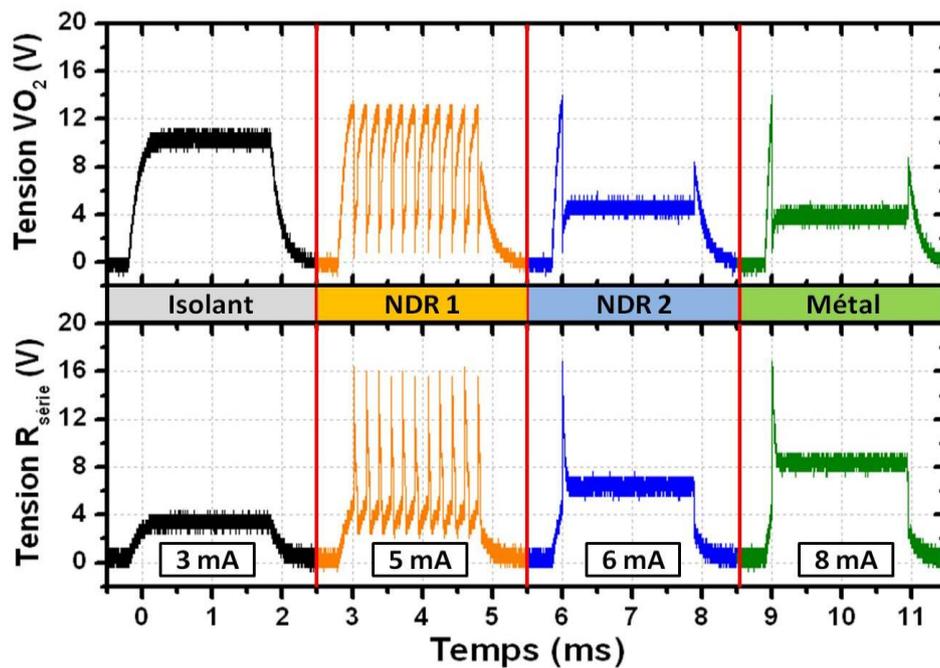
**Figure II.29 :** Evolution de la plage de fonctionnement en tension (à 25°C) où l'on observe le phénomène d'oscillations en fonction de la résistance en série pour le motif de VO<sub>2</sub> dont les caractéristiques I-V sont présentées sur la **Figure II.27**.

Cette plage est spécifique au motif de VO<sub>2</sub> dont les caractéristiques sont présentées sur la **Figure II.27**. Sur ce graphique, on observe que lorsque la résistance en série diminue, la tension continue à appliquer pour observer le phénomène d'oscillations est décalée vers des valeurs plus basses et que la plage de fonctionnement dans laquelle on observe les oscillations diminue.

Pour mieux comprendre les conditions d'apparition du phénomène d'oscillations dans les dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>, nous avons voulu étudier ce phénomène en mode courant.

Dans ce contexte, en fixant la température à 25°C et en utilisant une résistance en série de 1 kΩ, nous avons appliqué des impulsions carrées en courant avec différentes amplitudes permettant de parcourir les différentes zones de la caractéristique IV en mode courant du

motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup>. Sur la **Figure II.30** où sont représentées les impulsions en tension correspondantes relevées aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> et aux bornes de la résistance en série (proportionnelles au courant circulant dans le circuit), nous retrouvons l'apparition d'un signal périodique oscillant aux bornes du dispositif 2T lorsque l'amplitude du courant d'excitation se situe dans la première région NDR de la caractéristique I-V du composant. Cette région NDR correspond physiquement à la formation des nano- et micro-domaines métalliques dans la matrice isolante du matériau (formation d'un réseau complexe de micro-capacités).



**Figure II.30 :** Valeurs de tension relevées aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> et aux bornes de la résistance en série (1 kΩ) lors de l'injection d'impulsions de courant carrées (2 ms) avec différentes amplitudes ; les caractéristiques I-V du dispositif sont celles présentées sur la Figure II.27.

En observant l'évolution de la tension aux bornes de la résistance en série lors de l'enclenchement du phénomène d'oscillations (ex. lors de l'application des impulsions de 5 mA), on note que le signal, proportionnel au courant dans le circuit, est également oscillant. Ce phénomène peut être causé par la source de courant qui devant le changement rapide de l'impédance du dispositif à VO<sub>2</sub> lors de l'enclenchement des oscillations, n'arrive plus à contrôler et à maintenir constante la valeur du courant à fournir dans le circuit (boucle de rétroaction dont la vitesse n'est pas assez élevée pour contrôler un courant constant lors des oscillations).

Lors de l'enclenchement des oscillations en mode tension (excitation par une tension continue), si l'on s'intéresse au courant circulant dans le circuit (dispositif 2T + R<sub>série</sub>), ce dernier peut s'écrire sous la forme de l'équation suivante :

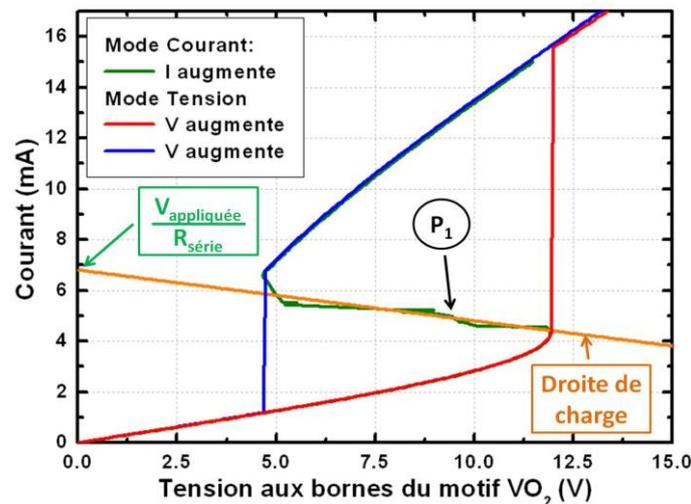
$$I = \frac{V_{app}}{R_{série}} - \frac{V_{VO_2}}{R_{série}} \quad (\text{II.19})$$

avec :

V<sub>app</sub> : tension appliquée aux bornes du circuit ;

V<sub>VO<sub>2</sub></sub> : tension aux bornes du motif de VO<sub>2</sub>.

Dans une représentation de type I=f(V<sub>VO<sub>2</sub></sub>), cette équation définit la droite de charge du générateur. L'intersection de cette droite avec la courbe I-V du dispositif VO<sub>2</sub> (définie par l'équation  $I = V_{VO_2} / R_{VO_2}$ ) détermine ce que l'on appelle le point de fonctionnement ou le point de repos du circuit (P<sub>1</sub>), comme l'illustre la **Figure II.31**.



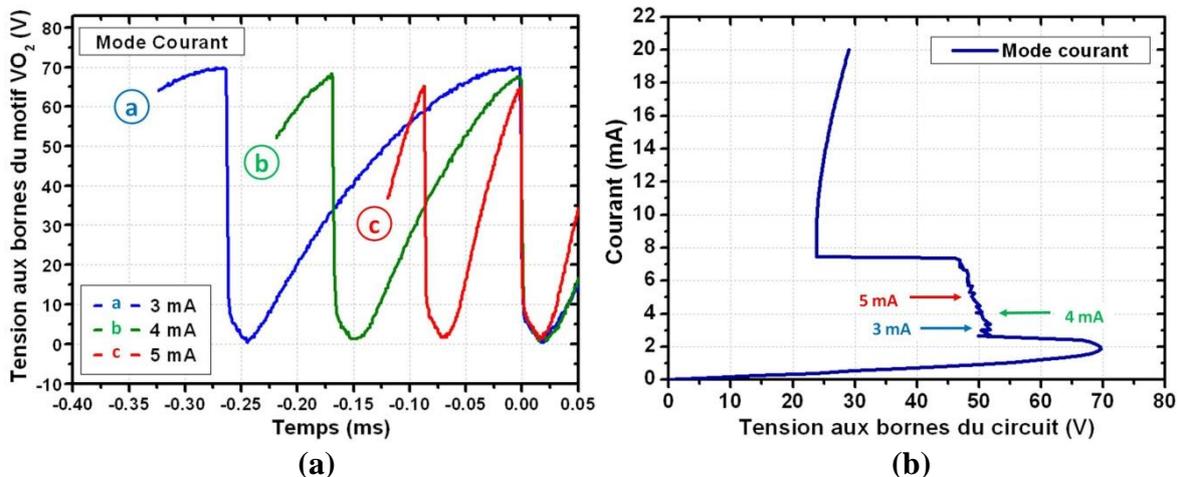
**Figure II.31 : Superposition de la caractéristique I-V (droite de charge) du circuit générateur (source de tension et résistance en série) et des caractéristiques I-V du dispositif 2T dans le cas du motif de VO<sub>2</sub> présenté dans la Figure II.27.**

Pour observer le phénomène d'oscillations en mode tension, il est alors nécessaire que le point de fonctionnement se situe dans la zone de transition MIT et plus précisément dans la première région de NDR. Les couples tension continue/ résistance en série pour lesquels on observe les oscillations (**Figure II.29**) correspondent ainsi, à la famille des droites de charges qui, pour une caractéristique I-V du dispositif VO<sub>2</sub>, présentent un point de fonctionnement situé dans la zone de résistance négative différentielle.

## II.6.2. Influence de divers paramètres sur le phénomène d'oscillations

### II.6.2.1. Influence du courant et de la tension d'excitation

Sur la **Figure II.32a**, nous avons, tout d'abord, représenté les oscillations en tension mesurées pour différentes valeurs de courants continus d'excitation, sur le motif de VO<sub>2</sub> de 350 x 50 μm<sup>2</sup> dont la caractéristique I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) en mode courant est présentée sur la **Figure II.32b**. Il nous faut également préciser que la tension mesurée pour cette caractéristique I-V est la tension aux bornes du circuit ( $V_{app} \neq V_{VO_2}$ ) car il ne nous a pas été possible de réaliser de mesures avec le système "4-Wire" sur ce motif de VO<sub>2</sub>.

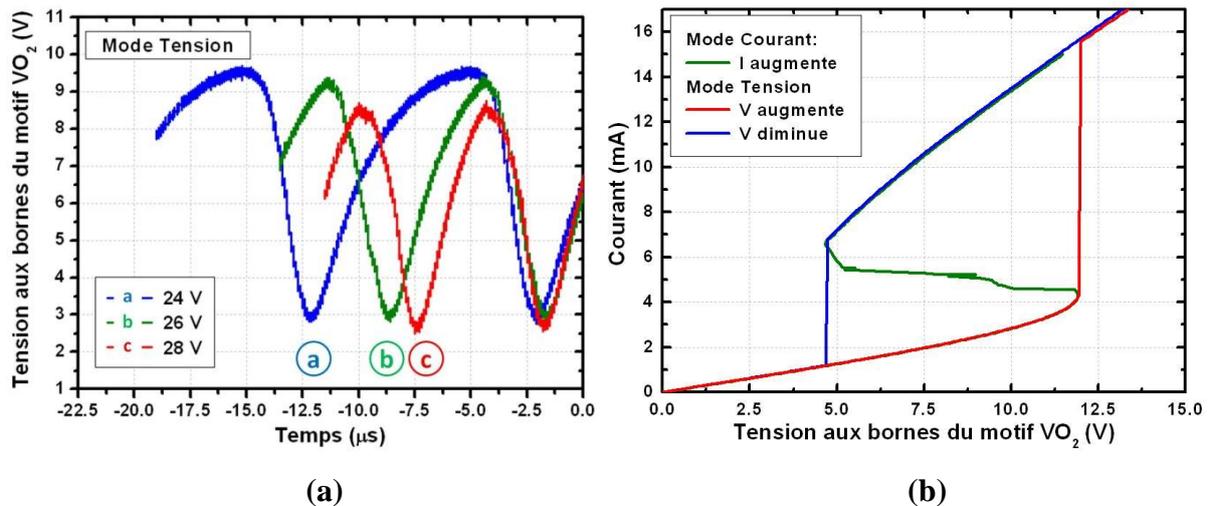


**Figure II.32 : a. Oscillations enregistrées aux bornes d'un motif de VO<sub>2</sub>, à 50°C, lors de l'application aux bornes du circuit de courants d'excitation continus de différentes amplitudes ( $R_{série} = 1 \text{ k}\Omega$ , dimensions du motif : 350 x 50 μm<sup>2</sup>) et b. caractéristique I-V ( $I=f(V_{app})$ ) en mode courant du dispositif.**

Nous constatons que lorsque la valeur du courant d'excitation augmente, l'amplitude des oscillations diminue légèrement et leur fréquence augmente en passant, en l'occurrence, de 4 kHz à 13 kHz (pour des courants d'excitation de 3 à 5 mA). Comme le rappelle la **Figure II.32b**, ces valeurs de courant sont situées dans la première région NDR de la caractéristique I-V du composant ce qui signifie que lorsque le courant augmente, la résistance du motif de VO<sub>2</sub> diminue. En utilisant l'équation permettant de déterminer la tension d'activation (relation **II.4**), on note que cette diminution de résistance entraîne une diminution de la tension d'activation de la transition MIT expliquant la diminution de l'amplitude des oscillations. Mais la variation de résistance du motif de VO<sub>2</sub> a également un impact sur la constante de temps  $\tau$  qui est proportionnelle à cette résistance (**équation II.18**). De ce fait, lorsque la résistance du

motif de VO<sub>2</sub> diminue, la constante de temps  $\tau$  décroît provoquant une diminution de la durée du front montant des oscillations et par conséquent, une augmentation de la fréquence de ces oscillations.

De la même manière, sur la **Figure II.33a**, nous avons représenté les oscillations en tension mesurées pour différentes valeurs de tensions d'excitation continues appliquées aux bornes du circuit pour le motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18  $\mu\text{m}^2$  dont les caractéristiques ( $I=f(V_{\text{VO}_2})$ ) sont rappelées sur la **Figure II.33b**.



**Figure II.33 : a. Oscillations enregistrées aux bornes d'un motif de VO<sub>2</sub> 25 x 18  $\mu\text{m}^2$ , à température ambiante, lors de l'application aux bornes du circuit de tensions d'excitation continues de différentes amplitudes et avec  $R_{\text{série}} = 1 \text{ k}\Omega$ , b. caractéristiques I-V ( $I=f(V_{\text{VO}_2})$ ) en mode tension et en mode courant du dispositif.**

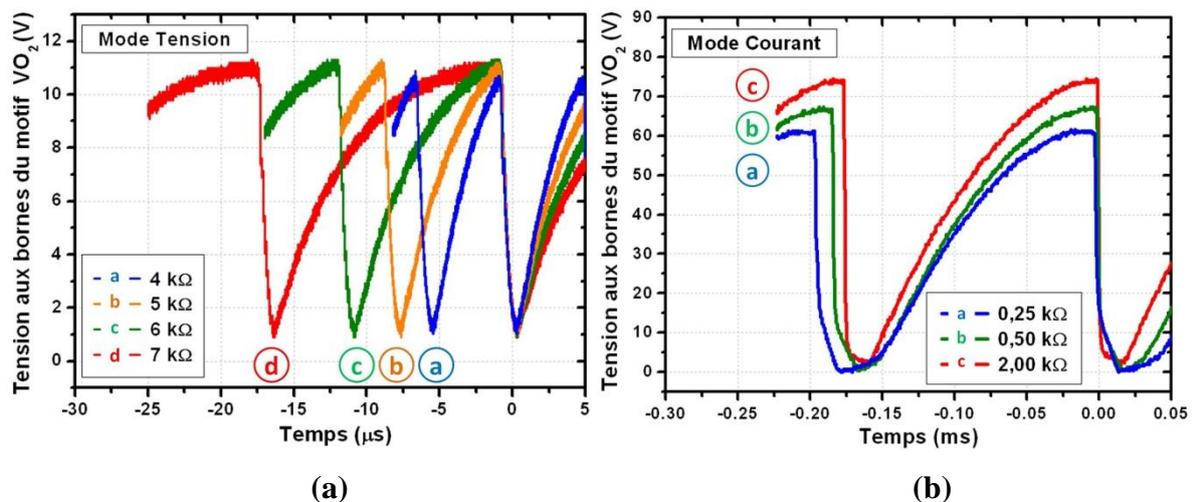
Nous observons que lorsque la valeur de la tension d'excitation appliquée augmente de 24 à 26 V, l'amplitude maximale des oscillations diminue alors que leur fréquence augmente de 74 kHz à 114 kHz. En reprenant la relation **II.19**, on constate que le courant circulant dans le circuit, en mode tension, est directement proportionnel à la tension appliquée. Ainsi, lorsque la tension appliquée augmente, ce courant augmente ce qui provoque une diminution de l'amplitude des oscillations et une augmentation de leur fréquence comme nous l'avons observé pour l'excitation en mode courant.

De manière générale, nous pouvons préciser que la fréquence des oscillations observées, en mode tension ou en mode courant dans les dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>, varie entre 1 kHz et  $\sim 1$  MHz en fonction des dimensions du circuit et des conditions d'excitation.

### II.6.2.2. Influence de la résistance en série

Après avoir étudié l'impact du courant et de la tension d'excitation sur les caractéristiques du phénomène d'oscillations, nous nous intéressons, à présent, à l'effet de la résistance série sur ces caractéristiques.

Sur la **Figure II.34a** où sont, tout d'abord, représentées les oscillations en tension enregistrées, aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup> pour différentes résistances en série, avec une même tension d'excitation continue, nous constatons que lorsque la résistance en série du circuit augmente, l'amplitude des oscillations augmente et leur fréquence diminue. Comme le montre la relation **II.19**, une augmentation de la résistance en série provoque une diminution du courant circulant dans le circuit. De ce fait, étant toujours situé dans la première zone NDR, la diminution de courant engendre une augmentation de la résistance du motif de VO<sub>2</sub>. Cette augmentation de la résistance du motif entraîne une augmentation de la tension d'activation (relation **II.4**) et de la constante de temps  $\tau$  expliquant, respectivement, l'augmentation en amplitude et la diminution en fréquence des signaux d'oscillations.



**Figure II.34 : Oscillations observées pour différentes résistances en série aux bornes d'un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup> lors de l'application d'une tension d'excitation de 35 V à température ambiante en (a) et pour un motif de VO<sub>2</sub> de 350 x 50 μm<sup>2</sup> pour un courant d'excitation de 3 mA à 50°C en (b).**

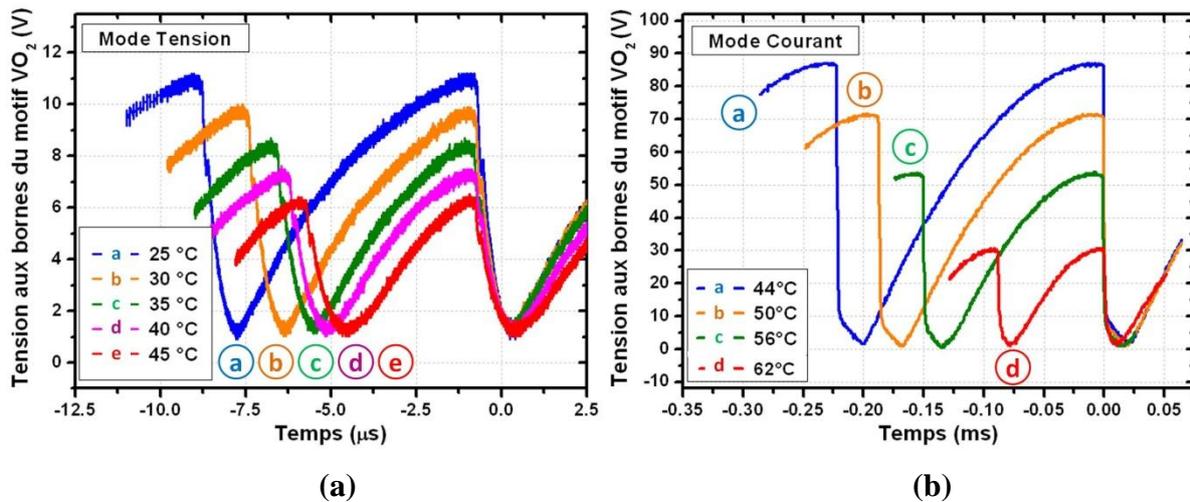
Sur le même principe, nous avons également étudié l'influence de la valeur de la résistance en série sur l'allure des signaux d'oscillations aux bornes d'un motif de VO<sub>2</sub> de 350 x 50 μm<sup>2</sup> lors d'une excitation avec un courant (**Figure II.34b**). Nous notons qu'une augmentation de la résistance en série a pour conséquence une augmentation de l'amplitude des oscillations et de leur fréquence. Au même titre que les effets observés lors de l'étude des

caractéristiques I-V en mode courant, ces variations sont probablement la conséquence d'une augmentation de la résistance globale du circuit.

### II.6.2.3. Influence de la température du dispositif sur l'allure des signaux d'oscillations

L'un des paramètres auquel nous nous sommes également intéressés dans le cadre de cette étude sur le phénomène d'oscillations est l'effet de la température du dispositif.

Sur la **Figure II.35a** sont représentées les oscillations en tension enregistrées aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup> pour différentes températures, lors de l'excitation avec une tension continue. Nous observons qu'une augmentation de la température engendre une diminution de l'amplitude des oscillations et une augmentation de leur fréquence. Ce même comportement est retrouvé lors de l'excitation avec un courant continu, comme on le constate sur la **Figure II.35b** qui montre l'évolution avec la température des oscillations en tension enregistrées, aux bornes du motif de VO<sub>2</sub> de 350 x 50 μm<sup>2</sup>, lors de son excitation avec un courant continu de 3 mA.



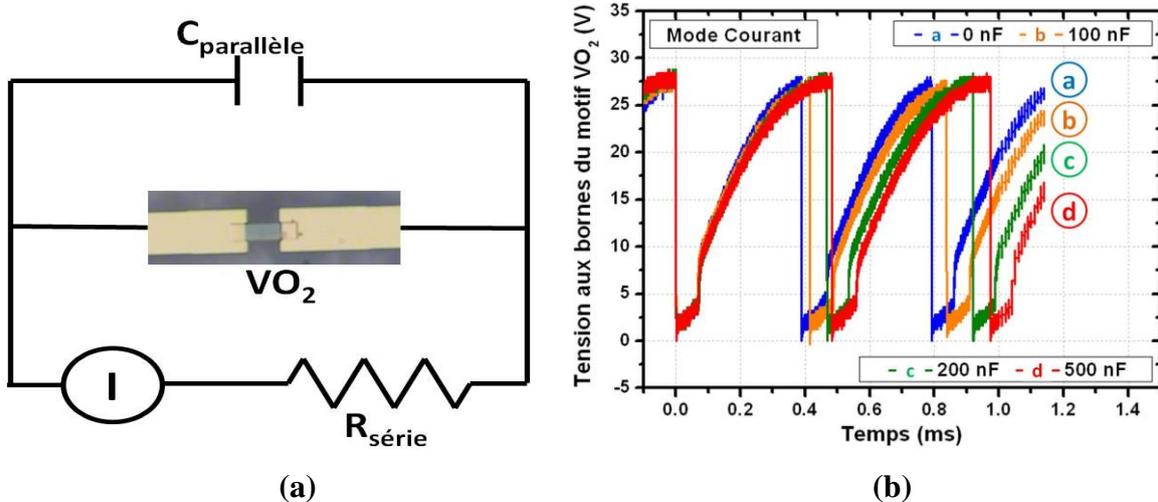
**Figure II.35 : a. Oscillations observées pour différentes températures dans un dispositif avec un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 18 μm<sup>2</sup> lors de l'application d'une tension d'excitation de 35 V avec R<sub>série</sub> = 1 kΩ et b. dans un dispositif avec un motif de VO<sub>2</sub> de 350 x 50 μm<sup>2</sup> pour un courant d'excitation de 3 mA (R<sub>série</sub> = 1 kΩ).**

La diminution en amplitude est la conséquence de la diminution de la tension seuil de la transition MIT avec la température déjà observée sur les **Figures II.9** et **II.21** pour les deux modes d'activation de la transition MIT. Quant à l'augmentation de la fréquence, elle peut

s'expliquer par une diminution de la constante de temps  $\tau$  qui est proportionnelle à la résistance du motif de VO<sub>2</sub> qui diminue lorsque la température augmente.

#### II.6.2.4. L'effet d'un condensateur en parallèle avec le dispositif à VO<sub>2</sub>

Mis à part l'effet de la résistance en série, nous avons aussi étudié l'influence d'un condensateur externe sur le phénomène d'oscillations, lors d'une excitation en mode courant. Sur la **Figure II.36a** est représenté un schéma du circuit réalisé qui montre que pour cette étude, le condensateur est placé en parallèle par rapport au motif de VO<sub>2</sub>.



**Figure II.36 :** (a) Schéma du circuit électrique montrant la mise en parallèle d'un condensateur externe avec le motif de VO<sub>2</sub> et (b) oscillations observées, à température ambiante, pour différentes valeurs de la capacité du condensateur en parallèle avec un dispositif 2T intégrant un motif de VO<sub>2</sub> de 25 x 25 µm<sup>2</sup>, lors de l'application d'un courant d'excitation continu de 4 mA avec  $R_{série} = 1 \text{ k}\Omega$ .

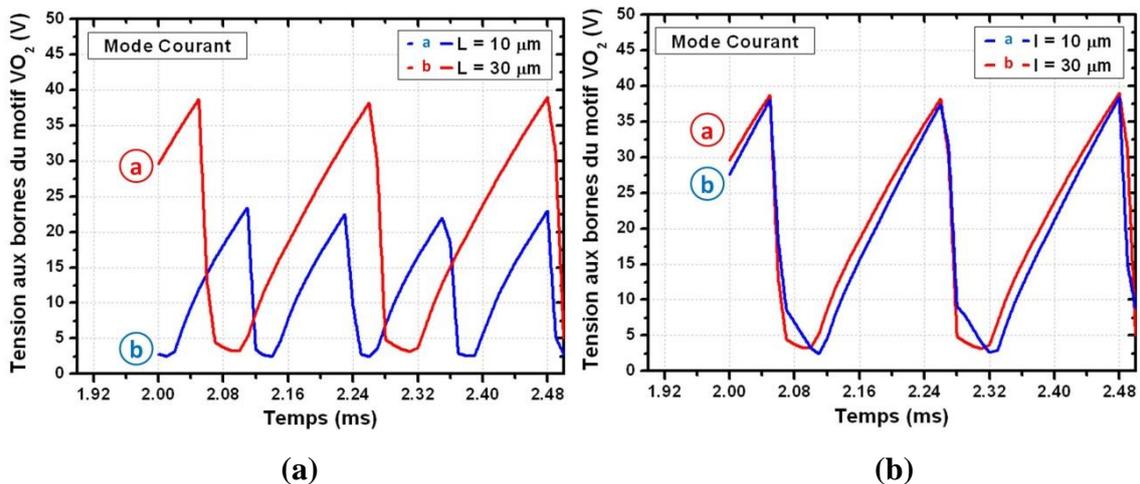
Les oscillations mesurées aux bornes d'un motif de VO<sub>2</sub> (25 x 25 µm<sup>2</sup>) en mode courant, pour différentes valeurs de capacité du condensateur sont représentées sur la **Figure II.36b**. Nous constatons que l'ajout de ce condensateur en parallèle n'a pas d'influence sur l'amplitude des oscillations, qui reste constante quelle que soit la valeur de la capacité. Cette absence de variation se comprend assez facilement puisque la tension appliquée aux bornes du dispositif est fixée par la branche du circuit contenant la source de courant et la résistance en série. En revanche, on remarque que l'augmentation de la valeur de la capacité engendre une diminution de la fréquence de répétition des oscillations, qui est liée à une augmentation de la durée du front montant des oscillations. Le dispositif se comporte donc bien comme un élément capacitif car sa mise en parallèle avec un condensateur externe provoque une

augmentation de la constante de temps de chargement du circuit capacitif ( $\tau$ ) et par conséquent, une diminution de la fréquence des oscillations.

### II.6.2.5. Effet des dimensions du motif

Auparavant, nous avons vu que les dimensions du motif de VO<sub>2</sub> ont également une influence sur les caractéristiques I-V des dispositifs à base de VO<sub>2</sub> en mode tension et en mode courant. Dans ce contexte, il nous est apparu intéressant d'étudier l'effet de la longueur et de la largeur des motifs sur les caractéristiques des oscillations en mode courant.

Sur la **Figure II.37a** sont représentées les oscillations enregistrées en mode courant aux bornes de motifs de VO<sub>2</sub> de différentes longueurs, pour le même courant d'excitation continu. L'évolution des courbes montre que l'amplitude des oscillations évolue de façon proportionnelle à la longueur du motif tandis que leur fréquence diminue lorsque la longueur du motif augmente ce qui peut s'expliquer par une variation de la résistance du motif. D'une part, nous avons montré que lorsque la longueur du motif augmente cela entraîne une augmentation de la résistance du motif et par conséquent, une augmentation de la tension seuil (cf. **Figure II.19**). D'autre part, si la constante de temps est proportionnelle à la résistance du motif de VO<sub>2</sub>, on peut alors en conclure que lorsque la longueur du motif augmente cela entraîne une augmentation de cette constante et de ce fait une diminution de la fréquence des oscillations.



**Figure II.37 :** a. Oscillations observées, à 54°C, pour des motifs de VO<sub>2</sub> de différentes longueurs mais une largeur identique de 30 μm et b. pour des motifs de différentes largeurs mais de longueur identique (10 μm) lors de l'application d'un courant d'excitation de 0.6 mA avec  $R_{\text{série}} = 1 \text{ k}\Omega$ .

En revanche, sur la **Figure II.37b** où sont représentées les oscillations enregistrées aux bornes de motifs de VO<sub>2</sub> de différentes largeurs lors de l'excitation avec un courant continu, on constate que la largeur des motifs n'a que très peu d'influence sur les caractéristiques des oscillations, que ce soit au niveau de leur amplitude ou de leur fréquence. Cette absence de variation peut s'expliquer par le fait que la largeur du chemin de conduction métallique apparaissant au moment de la transition MIT (et donc durant le phénomène d'apparition des oscillations) est beaucoup plus faible que celle des motifs étudiés.

En conclusion, nous avons observé, dans les dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>, des oscillations intrinsèques présentant les caractéristiques de phénomènes capacitifs, pour une excitation des dispositifs avec des tensions ou des courants continus, à des valeurs spécifiques. Nous avons montré la possibilité d'obtenir plus facilement ces oscillations en mode courant, mode d'activation qui met surtout en évidence un lien entre le phénomène d'oscillations et la première région NDR dans la caractéristique I-V des composants. Ces observations nous permettent de considérer que l'apparition des oscillations sont la conséquence de phénomènes de chargement/ déchargement (formation/ destruction) de micro-capacités dans le motif de VO<sub>2</sub> expliquant ainsi, la forme des oscillations et leur évolution en fonction de différents paramètres. Enfin, la présence de ce phénomène d'oscillations et de sa sensibilité aux conditions d'excitation et/ ou environnementales permet d'envisager de nouvelles applications pour les dispositifs à base de VO<sub>2</sub> : oscillateurs (oscillateurs de relaxation en utilisant une résistance négative), capteurs (thermiques, gaz, stress/ pression), amplificateurs dans le domaine RF/ micro-ondes, convertisseurs de fréquences ou impédances négatives qui pourront être utilisées dans la conception d'antennes... Au passage, on peut mentionner qu'une étude sur la modélisation des phénomènes d'oscillations et la réalisation d'un modèle mathématique, compatible avec un logiciel de conception de circuits électriques, est en cours au laboratoire XLIM, dans le cadre du stage post-doctoral du Dr. Arnaud Beaumont.

## **II.7. Performances et perspectives d'intégration pour les dispositifs à base de VO<sub>2</sub>**

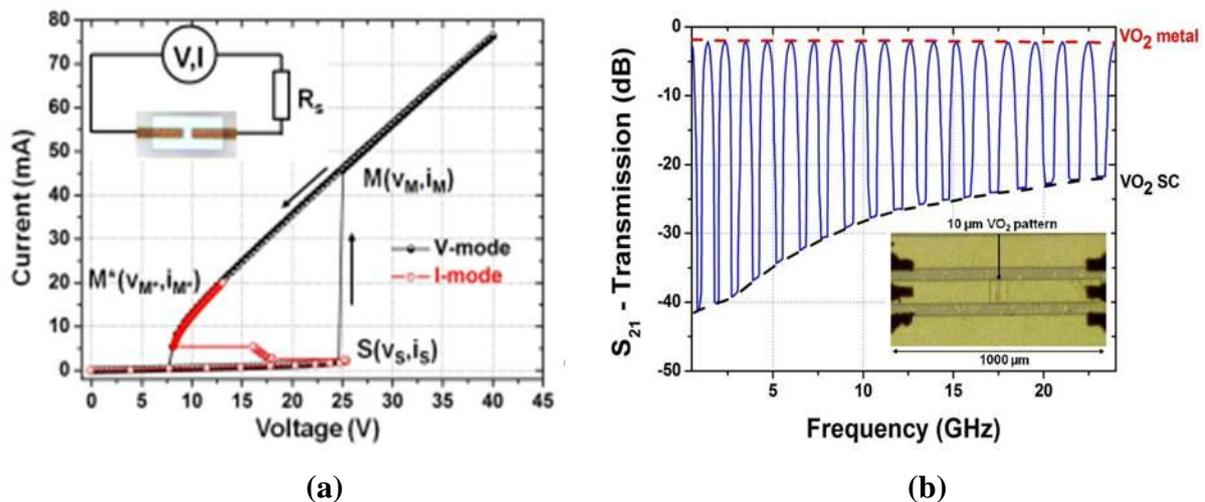
Pour conclure ce deuxième chapitre, nous présentons les performances en termes de fiabilité des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>. Nous mettons, notamment, en avant la possibilité de réaliser des dispositifs à base de VO<sub>2</sub> avec des tensions seuils d'activation de la transition MIT plus faibles et des temps de réponse plus rapides en utilisant des motifs de VO<sub>2</sub> de plus petites

longueurs sous la forme de dispositifs 2T à gaps nanométriques ou de structures MIM (Métal-Isolant-Métal).

### II.7.1. Fiabilité des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à la durée de vie des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>, que l'on peut espérer atteindre lors de leur actionnement électrique (transformation MIT du matériau VO<sub>2</sub>) en mode tension et en mode courant.

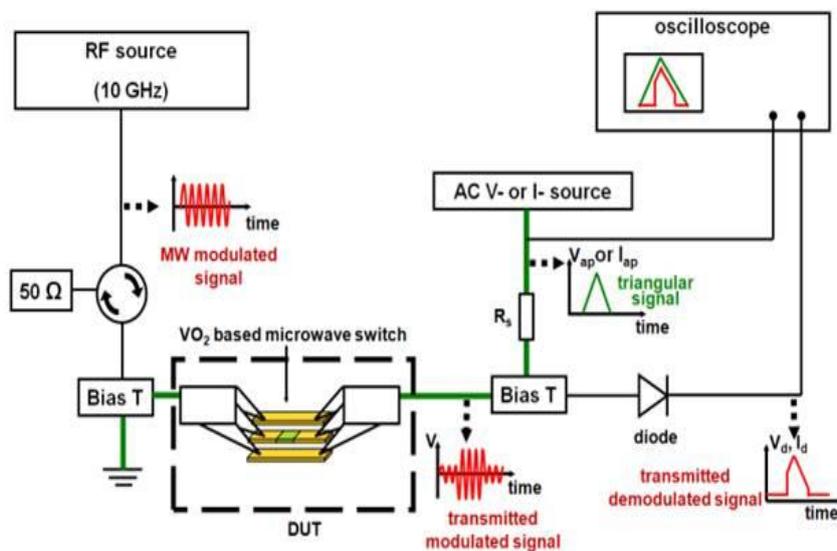
Pour cette étude, nous utilisons des dispositifs 2T contenant chacun un motif de VO<sub>2</sub> de 20 μm de large, dont les caractéristiques I-V typiques ( $I=f(V_{VO_2})$ ) sont rappelées sur la **Figure II.38a**. Ces dispositifs 2T sont alors insérés sur un guide coplanaire micro-ondes (CPW) en configuration série (ligne de signal interrompue par le commutateur 2T à VO<sub>2</sub>). La **Figure II.38b** reprend le principe de ce commutateur qui est présenté sur l'insert de la **Figure II.38b**. Quand le matériau VO<sub>2</sub> est à l'état semi-conducteur, le signal envoyé dans le dispositif est bloqué et le paramètre de transmission  $S_{21}$  descend en-dessous de -25 dB : le commutateur est à l'état OFF. En revanche, lors de l'actionnement électrique, le VO<sub>2</sub> passe à l'état métallique et le signal envoyé dans le dispositif circule à travers le guide coplanaire, le paramètre de transmission atteint ~-3 dB : le commutateur est à l'état ON.



**Figure II.38** : a. Caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ), à 25°C, en mode tension et en mode courant d'un motif de VO<sub>2</sub> (20 x 20 μm<sup>2</sup>), b. Evolution du paramètre  $S_{21}$  en fonction de la fréquence pour la commutation électrique périodique en tension (signal d'amplitude 100 V à 10 Hz) des commutateurs CPW à l'état OFF (VO<sub>2</sub> SC) et à l'état

### ON (VO<sub>2</sub> métal), avec en insert une image par microscopie optique du commutateur testé.

Dans le but de déterminer la durée de vie des dispositifs CPW à VO<sub>2</sub> pour les deux types d'activation (tension et courant), nous utilisons le banc de mesure décrit par la **Figure II.39** et mis en place dans le cadre de la thèse de David Mardivirin pour tester la fiabilité de dispositifs MEMS [**Mar10**]. Il est composé d'une source MW (Agilent E3633A) opérant à 10 GHz, connectée au dispositif sous test (DUT) par un circulateur et un filtre passe bande à 10 GHz. Le composant à VO<sub>2</sub> est introduit dans une station de mesure Desert Microwave sous atmosphère sec de N<sub>2</sub>.



**Figure II.39** : Schéma du banc de test utilisé pour déterminer la durée de vie des dispositifs commutateurs à base de VO<sub>2</sub> intégrés dans des guides d'ondes coplanaires [**Mar10**].

L'actionnement du matériau est réalisé en appliquant (à travers le T de polarisation) un signal triangulaire en tension ou en courant périodique dont l'amplitude maximale dépasse l'amplitude de transition MIT, comme représenté par la courbe noire sur la **Figure II.40a** qui présente un cycle typique d'actionnement d'un commutateur de VO<sub>2</sub> dans le cas de l'actionnement en mode tension.

En mode tension, la commutation se repère simplement par l'instant où la tension du signal RF détecté augmente de manière abrupte (**Figure II.40a**, courbe rouge). En traçant l'évolution de la tension d'activation MIT en fonction du nombre de cycles d'activation, nous retrouvons la courbe représentée sur la **Figure II.40b**. Cette évolution nous permet de constater que le dispositif se détruit brusquement à environ 16.25 millions de cycles.

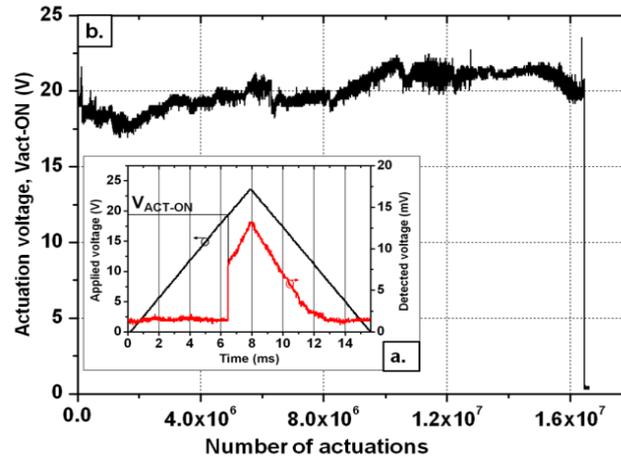


Figure II.40 : a. Cycle typique d'actionnement en tension d'un commutateur de VO<sub>2</sub> de 10 µm de long : signal de tension appliqué (courbe noire) et signal micro-onde détecté (courbe rouge) passant à travers le composant VO<sub>2</sub> montré dans l'insert de la Figure II.38 et b. Évolution des valeurs de la tension d'actionnement  $V_{ACT-ON}$  avec le nombre de cycles d'actionnement.

En mode courant, on constate que le passage d'une tension de détection faible à une tension importante n'est pas évident à détecter. En effet, dans ce mode de fonctionnement, les cycles d'actionnement, comme ceux présentés sur la **Figure II.41**, sont masqués par le phénomène d'oscillations qui apparaît lors de la transition MIT du matériau.

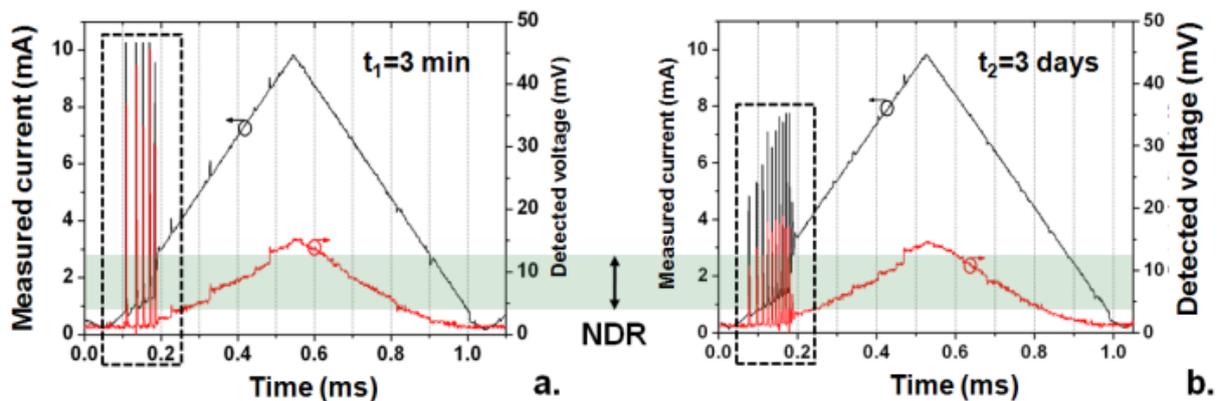


Figure II.41 : a. Signal RF détecté (courbe rouge) en fonction du signal de courant appliqué (courbe noire) pour un composant VO<sub>2</sub> de 10 µm de long, après 3 minutes d'actionnement (signal triangulaire en courant de commande à 1 kHz) et b. signal RF détecté après ~250 millions de cycles d'actionnement.

Néanmoins, dans ce mode d'actionnement, nous avons pu constater qu'après 3 jours, soit plus de 250 millions de cycles, le phénomène d'oscillations est toujours présent ce qui nous permet d'affirmer que le VO<sub>2</sub> transite toujours d'un état à l'autre (transformation isolant-

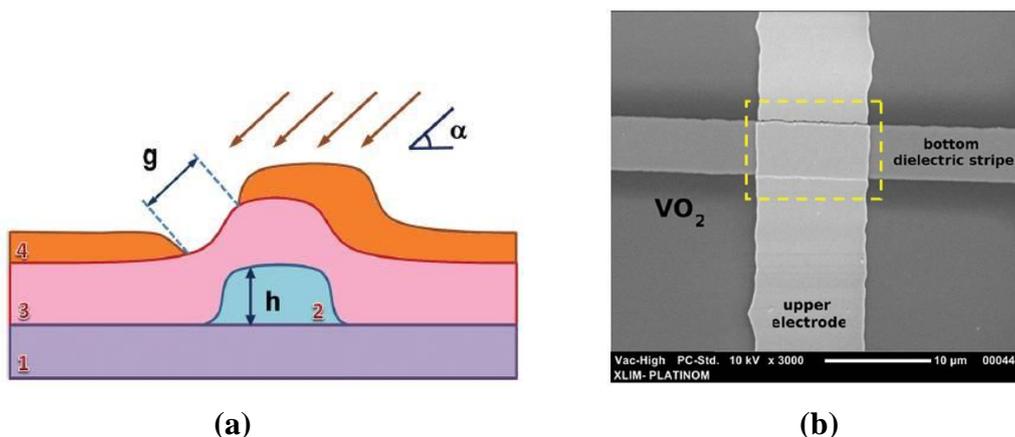
métal). Cela se confirme visuellement puisque le film ne présente aucune dégradation visible. On note quant même une diminution d'environ 22 mV de l'amplitude des oscillations détectées et une augmentation de leur fréquence qui passe de 54 kHz à 84 kHz ce qui indique une certaine fatigue du dispositif.

La différence de fiabilité entre les deux types d'activation peut s'expliquer par le fort cycle d'hystérésis I-V qui est observé lors de l'activation en tension. Ce phénomène est associé aux effets thermiques induits dans le composant qui sont probablement moins importants dans le cas de l'activation en mode courant (cycle d'hystérésis très diminué voir quasi absent).

### II.7.2. Dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> présentant des gaps nanométriques

Au cours de nos recherches, nous avons constaté que les dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> ont des tensions d'activation de la transition MIT de l'ordre de plusieurs dizaines de volts ce qui représente des valeurs assez élevées par rapport à d'autres technologies comme les jonctions semi-conductrices dont la tension d'activation descend en dessous de 10 V (cf. Chapitre I). Cette caractéristique des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> pourrait donc représenter un frein à leur intégration dans des sous-systèmes complexes. Or, lorsque nous avons étudié les effets de différents paramètres sur la tension d'activation, nous avons montré que cette dernière diminue avec la longueur du motif.

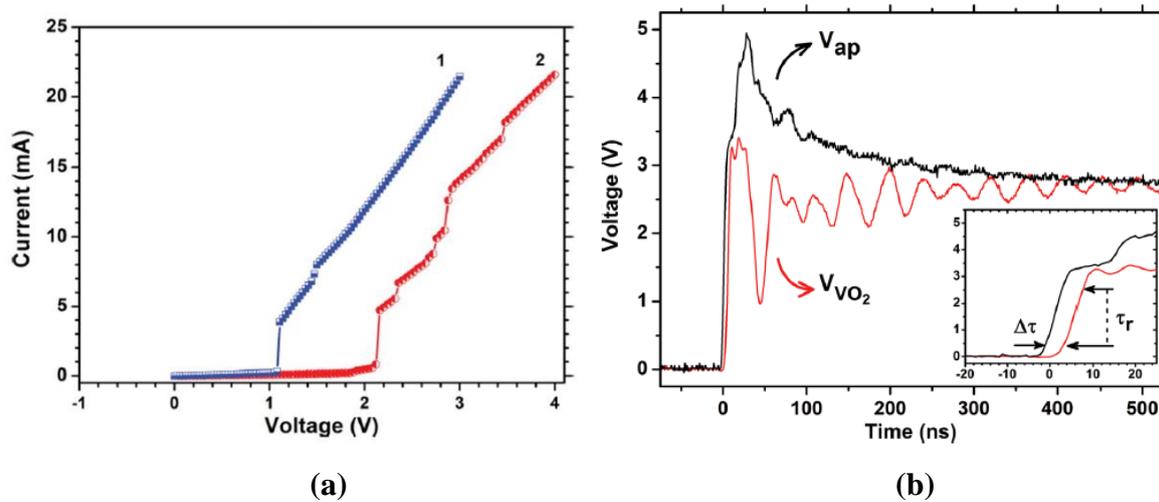
Dans ce contexte, nous avons étudié des dispositifs 2T présentant des gaps nanométriques ( $< 1 \mu\text{m}$ ) [Ler12]. Sur la **Figure II.42** est représenté le schéma de profil et une vue de dessus obtenue par SEM d'un tel composant.



**Figure II.42 : a. Schéma du dispositif 2T à gap nanométrique : (1) substrat de saphir c, (2) ligne diélectrique inférieure de hauteur  $h$ , (3) film de VO<sub>2</sub>, (4) électrode**

supérieure réalisée par évaporation à canon à électrons sous angle  $\alpha$  ; b. image par SEM de la vue de dessus d'un dispositif 2T à nano gap réalisé montrant la ligne inférieure, le film de VO<sub>2</sub> et l'électrode supérieure.

Sur la **Figure II.43a**, nous avons représenté les caractéristiques I-V de deux dispositifs à base de VO<sub>2</sub> avec des gaps nanométriques. Nous observons que la tension d'activation de la transition MIT est, respectivement, de 1 et 2 V. Ainsi, la tension d'activation de ces dispositifs à nano gaps est largement inférieure aux dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> étudiés auparavant. Ces caractéristiques permettent, par conséquent, de retrouver des performances semblables aux jonctions semi-conductrices mais dont la fabrication est beaucoup plus difficile.

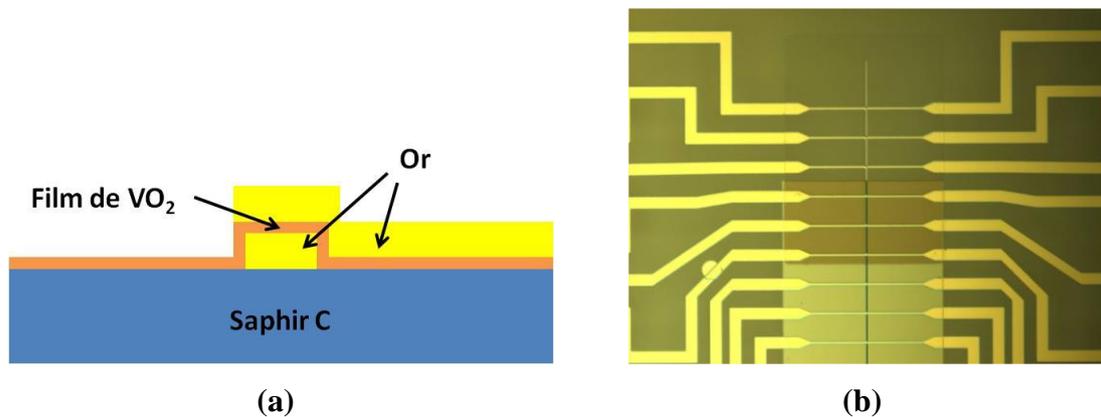


**Figure II.43** : a. Caractéristiques I-V de dispositifs 2T à gaps nanométriques, b. profil de la tension mesurée aux bornes d'un dispositif 2T à nano gap ( $V_{VO_2}$ ) lors de l'application d'une impulsion de tension ( $V_{ap} > V_{MIT}$ ) où l'insert montre un zoom sur les courbes de tension définissant le temps de retard ( $\Delta\tau$ ) et le temps de montée/ réponse du dispositif ( $\tau_r$ ).

De plus, la diminution de la tension d'activation n'est pas le seul intérêt des dispositifs à nano gaps par rapport aux dispositifs 2T classiques. Sur la **Figure II.43b**, nous avons représenté la tension mesurée aux bornes d'un dispositif 2T à nano gap lors de l'application d'une impulsion de tension. Nous constatons que le temps de réponse du dispositif à VO<sub>2</sub>, défini par  $\tau_r$ , descend en-dessous de 5 ns. Or, les travaux antérieurs réalisés au laboratoire XLIM [Giv10] portant sur l'étude des dispositifs 2T présentant des motifs de VO<sub>2</sub> de 65  $\mu\text{m}$  de longueur, 20  $\mu\text{m}$  de largeur et 265 nm d'épaisseur avaient mis en évidence des temps de réponse beaucoup plus lents, de l'ordre de 200 – 300 ns.

### II.7.3. Dispositifs de type MIM (Métal-Isolant-Métal) à base de VO<sub>2</sub>

Toujours dans le but de diminuer la tension d'activation des dispositifs à base de VO<sub>2</sub>, nous nous sommes intéressés à des structures Métal-Isolant-Métal (MIM) comme celle présentée sur la **Figure II.44**. Tout comme les dispositifs 2T à nano gaps, l'intérêt des structures MIM est de permettre la réalisation de dispositifs présentant des motifs de VO<sub>2</sub> avec des distances entre les électrodes d'actionnement plus faibles. En l'occurrence, dans cette configuration, on peut considérer que la distance entre les électrodes d'actionnement équivaut à l'épaisseur du film de VO<sub>2</sub>.

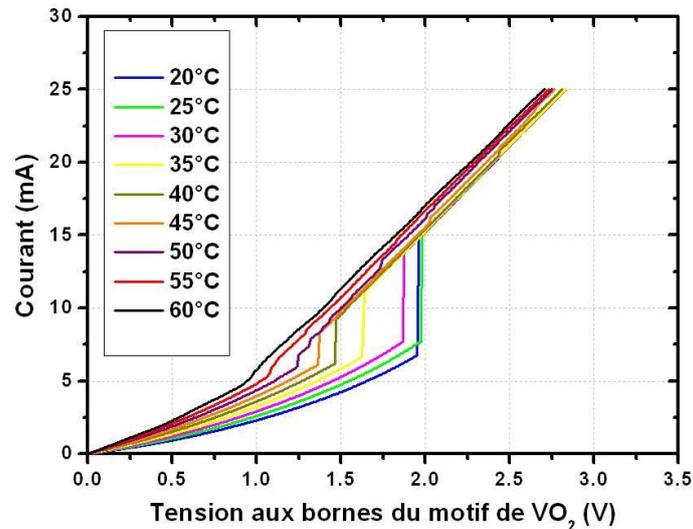


**Figure II.44 : a. Schéma de profil d'une structure MIM à base de VO<sub>2</sub> et b. image par microscopie optique d'un circuit MIM présentant une électrode inférieure sur laquelle est déposé un film de VO<sub>2</sub> avec un gradient d'épaisseur surmonté de plusieurs électrodes supérieures.**

Ainsi, la résistance du motif de VO<sub>2</sub> est beaucoup plus faible ce qui permet de réduire amplement les tensions seuil de la transition MIT dans le matériau. Sur la **Figure II.45**, nous avons représenté les caractéristiques I-V ( $I=f(V_{VO_2})$ ) pour différentes valeurs de température d'un dispositif MIM intégrant un film de VO<sub>2</sub> de 100 nm d'épaisseur. Nous constatons qu'à 20°C, la tension d'activation n'est plus que de 2 V.

Néanmoins, on peut remarquer que le courant circulant dans le circuit est plutôt élevé mais il nous faut, alors, préciser que ceux sont des résultats préliminaires correspondant à une première démonstration d'un actionnement MIT du VO<sub>2</sub> dans une configuration MIM (résultats en cours de préparation pour publication). L'optimisation, actuellement réalisée, des dispositifs MIM à VO<sub>2</sub> semble indiquer une diminution du courant circulant dans le circuit tout en conservant de faibles tensions d'activation. De plus, dans la continuité des dispositifs

2T à gaps nanométriques, on peut supposer que l'utilisation de dispositifs de type MIM à base de VO<sub>2</sub> permettra d'obtenir des vitesses de commutation encore plus rapides.



**Figure II.45 : Caractéristiques I-V d'un dispositif de type MIM intégrant un film de VO<sub>2</sub> de 100 nm pour différentes températures.**

En conclusion de cette étude sur les performances et les perspectives des dispositifs à base de VO<sub>2</sub>, nous pouvons indiquer que leurs performances en termes de fiabilité sont très encourageantes puisqu'elles permettent de se rapprocher des performances des dispositifs classiques. De plus, l'utilisation de dispositifs présentant des motifs de VO<sub>2</sub> de plus petites longueurs (dispositifs 2T à gaps nanométriques, structures MIM) permettent d'envisager la réalisation de dispositifs présentant des tensions d'activation plus faibles et des vitesses encore plus rapides, avec des temps de réponse que l'on peut envisager en-dessous de la nanoseconde.

## II.8. Conclusion

À travers ce deuxième chapitre, nous nous sommes donc intéressés à l'utilisation de l'activation électrique pour déclencher la transition MIT dans les films minces de VO<sub>2</sub>. Elle présente généralement différents avantages : vitesse, simplicité, activation localisée. Pour cela, nous avons intégré ces films sous la forme de motifs dans des dispositifs à deux électrodes dont nous avons étudié les caractéristiques I-V. Ces caractéristiques ont une allure très complexe et peuvent se décomposer en trois zones : une zone pour laquelle le matériau

est isolant, une zone métallique et une zone de transition qui est marquée par de fortes non-linéarités.

Cette étude nous a, tout d'abord, permis de mieux comprendre le processus de la transition MIT lorsque l'on applique une tension ou lors de l'injection d'un courant dans ces dispositifs 2T pour la déclencher. Suivant nos observations, il semblerait qu'en mode tension le déclenchement de la transition MIT, caractérisée par des sauts de courant et un fort cycle d'hystérésis, peut s'expliquer par un mécanisme de transformation de phase de type thermique (effet Joule induit par la tension appliquée). Cette hypothèse permettrait ainsi, d'expliquer l'ensemble des variations de la tension seuil d'activation MIT avec la température ou avec les dimensions des motifs. L'étude des caractéristiques I-V des dispositifs 2T lors d'une activation en mode courant, où la transition MIT est caractérisée par la présence de deux zones NDR, semblent d'une part, confirmer ce mécanisme thermique de la transition et d'autre part, mettre en évidence une transition MIT présentant un mécanisme de percolation.

Mise à part cette hypothèse sur l'origine et le déroulement de la transition MIT, nous avons également étudié le mécanisme de conduction électrique dans la phase isolante du matériau qui présente les caractéristiques d'une conduction ohmique pour des champs électriques faibles et une conduction de type Poole-Frenkel pour des champs électriques plus élevés.

Ensuite, nous avons mis en évidence en mode tension mais également en mode courant, un phénomène d'auto-oscillations sur des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> qui est lié à l'existence d'une région de résistance négative différentielle (NDR) dans les caractéristiques I-V (mode courant) des composants réalisés. L'étude de ce phénomène nous a permis de mieux comprendre l'origine, la forme et l'évolution des oscillations apparaissant dans les dispositifs. Ce phénomène peut ainsi être expliqué par une alternance entre la charge et la décharge de domaines micro-capacitifs développés par un phénomène de percolation isolant-métal dans le matériau VO<sub>2</sub>, lors de sa transition MIT. Ces hypothèses semblent se confirmer par l'étude de l'influence de différents paramètres sur les caractéristiques (amplitude et fréquence) des oscillations. Dans ce contexte, nous pouvons préciser qu'une étude sur la modélisation des phénomènes d'oscillations et la réalisation d'un modèle mathématique est en cours, au laboratoire XLIM, dans le cadre du stage post-doctoral du Dr. Arnaud Beaumont. En termes d'applications, nous envisageons d'utiliser le phénomène d'oscillations pour la conception d'oscillateurs (oscillateurs de relaxation en utilisant une résistance négative), de capteurs (thermiques, de pression), d'amplificateurs dans le domaine RF/ micro-ondes, de

convertisseurs de fréquences ou d'impédances négatives qui pourront être utilisées dans la conception d'antennes...

Enfin, l'étude sur les performances en termes de fiabilité permet de placer les dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> à des niveaux comparables aux dispositifs classiques de type jonctions semi-conductrices. De plus, l'utilisation de dispositifs 2T à nano gaps et de structures MIM permettent d'envisager la réalisation de dispositifs présentant des tensions d'activation plus faibles et des vitesses de commutation encore plus rapides.

Dans les prochains chapitres de ce manuscrit, les différentes variations de propriétés électriques du matériau VO<sub>2</sub> présentées dans ce chapitre mais également celles d'ordre électromagnétique mentionnées dans le premier chapitre, lors d'une activation thermique ou électrique, nous serviront de base pour mieux aborder la réalisation de dispositifs accordables dans le domaine THZ. Notre objectif sera de réaliser des composants originaux dans cette gamme de fréquences après avoir caractérisé la transition MIT de ce matériau dans ce domaine fréquentiel.

## Références Chapitre II

- [Cav01] A. Cavalleri, C. Tóth, C.W. Siders, J.A. Squier, F. Ráksi, P. Forget, J.C. Kieffer ; "Femtosecond structural dynamics in VO<sub>2</sub> during an ultrafast solid-solid phase transition" ; *Physical Review Letters*, 87 (23), 2374011–2374014, (2001).
- [Cha05] B.-G. Chae, H.-T. Kim, D.-H. Youn, H.-Y. Kang ; "Abrupt metal–insulator transition observed in VO<sub>2</sub> thin films induced by a switching voltage pulse" ; *Physica B : Condensed Matter*, 369 (1-4), 76–80, (2005).
- [Dri12] T. Driscoll, J. Quinn, M. Di Ventra, D.N. Basov, G. Seo, Y.-W. Lee, H.-T. Kim, D.R. Smith ; "Current oscillations in vanadium dioxide : Evidence for electrically triggered percolation avalanches" ; *Physical Review B*, 86 (9), 094203 (2012).
- [Fis78] B. Fisher ; "Voltage oscillations in switching VO<sub>2</sub> needles" ; *Journal of Applied Physics*, 5340, (1978).
- [Giv10] J. Givernaud ; "Etude , conception et fabrication de dispositifs micro-ondes à base de matériaux intelligents" ; Thèse : *Electronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique* ; Université de Limoges, (2010).
- [Gol04] G. Golan, A. Axelevitch, B. Sigalov, B. Gorenstein ; "Investigation of phase transition mechanism in vanadium oxide thin films, *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 6 (1), 189–195, (2004).
- [Kim10] H.-T. Kim, B.-J. Kim, S. Choi, B.-G. Chae, Y.W. Lee, T. Driscoll, M.M. Qazilbash, D.N. Basov ; "Electrical oscillations induced by the metal-insulator transition in VO<sub>2</sub>" ; *Journal of Applied Physics*, 107 (2), 023702, (2010).
- [Kis09] H. Kishida, T. Ito, A. Nakamura, S. Takaishi, M. Yamashita ; "Current oscillation originating from negative differential resistance in one-dimensional halogen-bridged nickel compounds" ; *Journal of Applied Physics*, 106 (1), 016106, (2009).

- [Lee13] S.B. Lee, K. Kim, J.S. Oh, B. Kahng, J.S. Lee ; "Origin of variation in switching voltages in threshold-switching phenomena of VO<sub>2</sub> thin films" ; Applied Physics Letters, 102 (6), 063501, (2013).
- [Ler12] J. Leroy, A. Crunteanu, A. Bessaudou, C. Champeaux, J.-C. Orlianges ; "High-speed metal- insulator transition in vanadium dioxide films induced by an electrical pulsed voltage over nano-gap electrodes" ; Applied Physics Letters, 100, 213507, (2012).
- [Mar10] D. Mardivirin ; "*Etude des mécanismes mis en jeu dans la fiabilité des micro-commutateurs MEMS-RF*" ; Thèse : Electronique des Hautes Fréquences et Optoélectronique ; Université de Limoges, (2010).
- [Oza09] T. Ozawa, K. Tamura, Y. Bando, T. Kawamoto, T. Mori, I. Terasaki ; "Giant nonlinear conductivity in an organic conductor with a sharp metal-insulator transition :  $\beta$ "-(BEDT-TTF)<sub>3</sub>(HSO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>" ; Physical Review B, 80 (15), 155106, (2009).
- [Pea21] S. O. Pearson and H. S. G. Anson ; "The neon tube as a means of producing intermittent currents" ; Proc. Phys. Soc. Lond. 34, 204, (1921).
- [Pear21] S. O. Pearson and H. S. G. Anson ; "Demonstration of some electrical properties of neon-filled lamps" ; Proc. Phys. Soc. Lond. 34, 175, (1921).
- [Pol26] B. van der Pol ; "On relaxation-oscillations" ; Phil. Mag. Ser. 7, 2, 978–92, (1926).
- [Pol27] B. van der Pol and J. van der Mark ; "Frequency demultiplication" ; Nature 120, 364, (1927).
- [Ruz09] D. Ruzmetov, G. Gopalakrishnan, J. Deng, V. Narayanamurti, S. Ramanathan ; "Electrical triggering of metal-insulator transition in nanoscale vanadium oxide junctions" ; Journal of Applied Physics, 106 (8), 083702, (2009).
- [Sak08] J. Sakai ; "High-efficiency voltage oscillation in VO<sub>2</sub> planer-type junctions with infinite negative differential resistance" ; Journal of Applied Physics, 103 (10), 103708, (2008).
- [Seg00] Y. Segui ; "Diélectriques - Courants de conduction" ; Techniques de l'Ingénieur, traité Génie électrique, D 2301, 1–12, (2000).

[**Yan10**] Z. Yang, C. Ko, V. Balakrishnan, G. Gopalakrishnan, S. Ramanathan ; "Dielectric and carrier transport properties of vanadium dioxide thin films across the phase transition utilizing gated capacitor devices" ; Physical Review B, 82 (20), 205101, (2010).

## **Chapitre III : Réalisation de métamatériaux térahertz accordables à base de VO<sub>2</sub>**



### III.1. Introduction

Auparavant, nous avons évoqué le fait que pour contourner les limites de la miniaturisation des composants en micro-électronique, il existe différentes solutions permettant de rendre ces composants accordables et ainsi, réaliser de nouveaux systèmes plus compacts et plus performants. Toutefois, les composants fonctionnant aux fréquences micro-ondes, très utilisés pour les télécommunications, sont soumis à une autre contrainte qui est la disponibilité du spectre fréquentiel. La multiplication des systèmes fonctionnant à ces fréquences et le nombre d'utilisateurs toujours plus important pourrait provoquer, à l'avenir, une saturation de ce domaine de fréquences.

C'est en partie l'une des raisons pour laquelle la communauté scientifique s'oriente vers l'utilisation de nouvelles gammes de fréquences et en particulier, les fréquences térahertz (THz). Ce domaine de fréquences possède des caractéristiques très intéressantes mais, à la différence du domaine des micro-ondes, il est encore peu utilisé car le nombre de composants térahertz disponibles (sources, détecteurs, modulateurs, filtres...) est assez limité. À travers ce troisième chapitre, nous allons étudier la possibilité d'utiliser la transition isolant-métal (MIT) des films de dioxyde de vanadium (VO<sub>2</sub>) pour réaliser des dispositifs térahertz accordables, à l'image des dispositifs micro-ondes accordables à base de VO<sub>2</sub> présentés dans le premier chapitre. Ces dispositifs pourront, notamment, être utilisés pour réaliser des composants passifs et/ ou actifs dans une future chaîne d'émission/ réception de télécommunication térahertz.

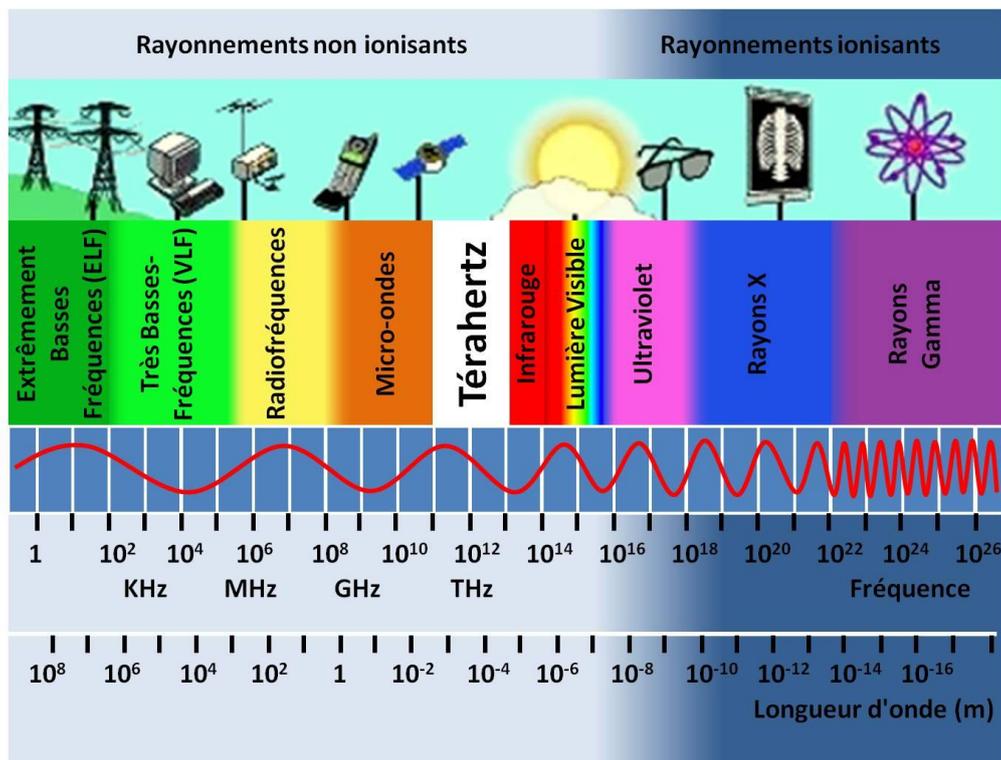
Dans ce contexte, la première partie de ce troisième chapitre permet de décrire le domaine des fréquences térahertz en s'intéressant à sa position dans le spectre électromagnétique, à ses propriétés, à ses applications ainsi qu'aux technologies térahertz existantes. Ensuite, nous introduisons également la notion de métamatériau en étudiant, notamment, l'intérêt de ces matériaux pour réaliser des dispositifs térahertz. Puis nous nous concentrons sur les propriétés de la transition MIT d'un film de VO<sub>2</sub> aux fréquences THz, qui seront déterminées en utilisant la technique de la spectroscopie térahertz dans le domaine temporel. Enfin, nous terminons ce troisième chapitre par l'étude de métamatériaux térahertz planaires à base de VO<sub>2</sub> en mettant en évidence le caractère accordable de ces structures. Dans ce cadre, en utilisant différentes configurations d'implémentation du matériau VO<sub>2</sub>, nous étudions la possibilité d'utiliser une commande thermique ou une commande électrique pour déclencher la variation de la réponse THz des dispositifs réalisés.

## III.2. Le domaine des fréquences térahertz (THz)

En raison de l'émergence récente de sources et de détecteurs travaillant aux fréquences THz, le domaine des fréquences térahertz est, aujourd'hui, l'objet de recherches de plus en plus nombreuses car étant situé au-dessus du domaine des micro-ondes, il représente l'une des solutions naturelles au problème d'une éventuelle saturation de cette gamme de fréquences.

### III.2.1. Définition et intérêt des ondes térahertz

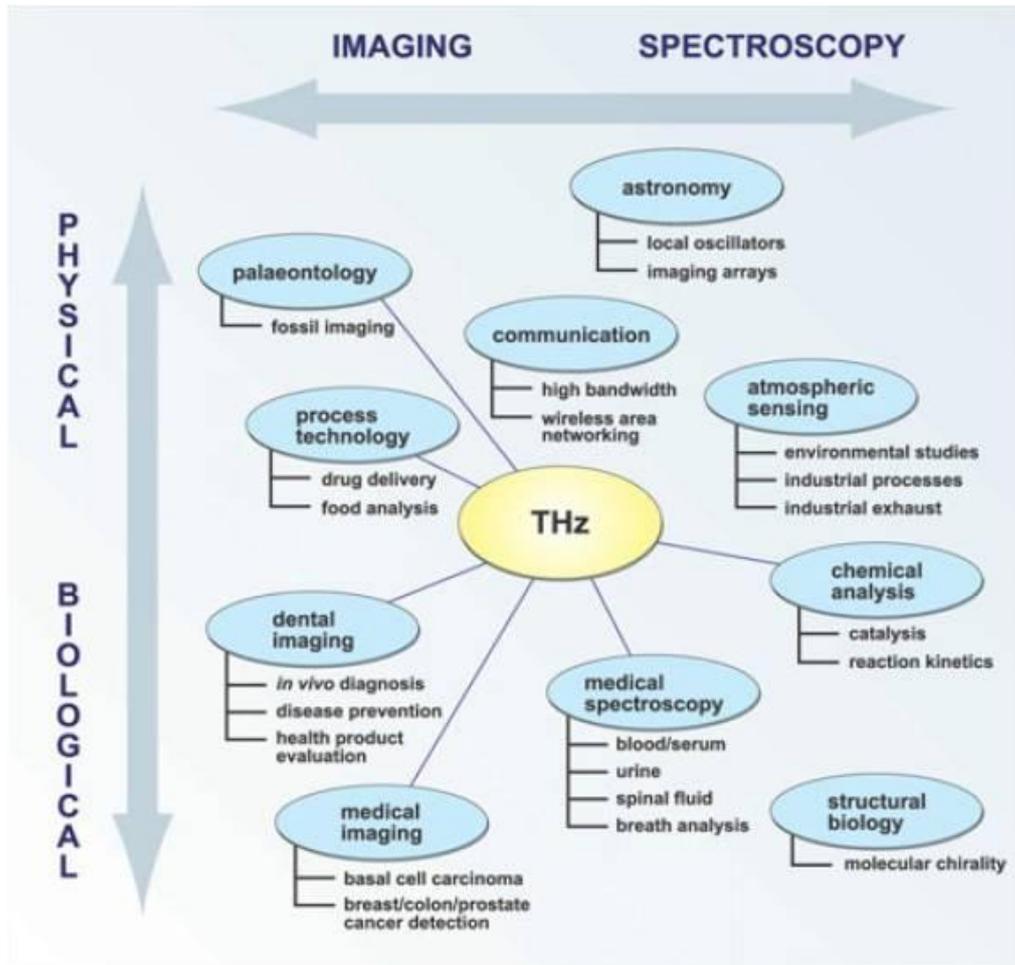
Les fréquences térahertz correspondent à un domaine fréquentiel situé entre celui des micro-ondes et de l'infrarouge (**Figure III.1**). Par rapport à sa position, le domaine des térahertz est souvent qualifié d'infrarouge lointain ou encore de rayons T, en opposition aux rayons X qui se situent de l'autre côté du domaine des fréquences optiques. En termes de valeurs de fréquences, on place généralement le domaine des fréquences térahertz entre ~100 GHz et ~30 THz.



**Figure III.1 : Spectre électromagnétique mettant en évidence le domaine des fréquences Téraherz.**

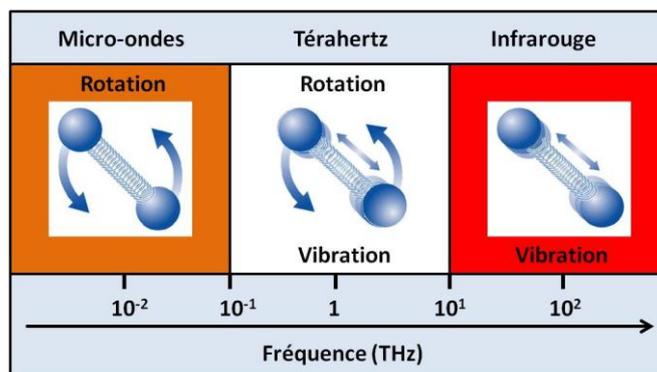
Une grande partie des ondes électromagnétiques interagissent (de diverses manières) avec la matière. Suivant le domaine de fréquences considéré, ces interactions spécifiques donnent ainsi, au domaine en question des propriétés intéressantes pour certaines applications

en particulier. En l'occurrence, les interactions caractéristiques des fréquences térahertz permettent d'envisager une utilisation dans de très nombreux domaines applicatifs, comme illustré sur la **Figure III.2**.



**Figure III.2** : Schéma graphique montrant les différents domaines d'application des ondes térahertz, d'après A.G Davies [Dav02].

Parmi les différents domaines d'application des térahertz, on peut, tout d'abord, citer la réalisation de systèmes spectroscopiques. De ce point de vue, la gamme des fréquences térahertz présente l'avantage de pouvoir sonder la matière en accédant aux résonances de type rotationnel des molécules que l'on observe dans le domaine des micro-ondes et à celles de type vibrationnel caractéristiques de l'infrarouge (**Figure III.3**). Ainsi, une grande partie des molécules présentent une signature particulière aux fréquences THz qui permettent d'identifier avec certitude leur présence dans un milieu donné. Ces systèmes de spectroscopie THz peuvent être utilisés dans de nombreux secteurs tels que la biologie, pour l'étude de l'ADN, ou encore l'astronomie, pour déterminer la composition chimique de l'atmosphère d'une planète.



**Figure III.3 : Les différents modes de résonance des molécules dans le domaine des micro-ondes, des térahertz et de l'infrarouge adapté d'après [Pea06].**

Les systèmes d'imagerie constituent le deuxième axe d'application des fréquences térahertz. Comme montré dans le tableau de la **Figure III.4**, certains matériaux comme le papier, le plâtre ainsi que des semi-conducteurs, qui sont habituellement opaques dans d'autres domaines de fréquences, sont relativement transparents aux fréquences térahertz. À l'inverse, d'autres matériaux, comme l'eau ou les métaux, ont la particularité d'absorber les ondes térahertz. Ainsi, en ajoutant un système de balayage spatial, il devient possible d'utiliser les techniques de spectroscopie THz comme outils d'imagerie. Ces systèmes ont un intérêt dans de nombreux secteurs comme le domaine médical où, contrairement aux rayons X, les ondes térahertz ne présentent pas d'effet ionisant. Ces systèmes d'imagerie térahertz sont de plus en plus utilisés dans le domaine de la sécurité et de la défense, comme moyen de détection de composants difficilement détectables par d'autres moyens usuels.

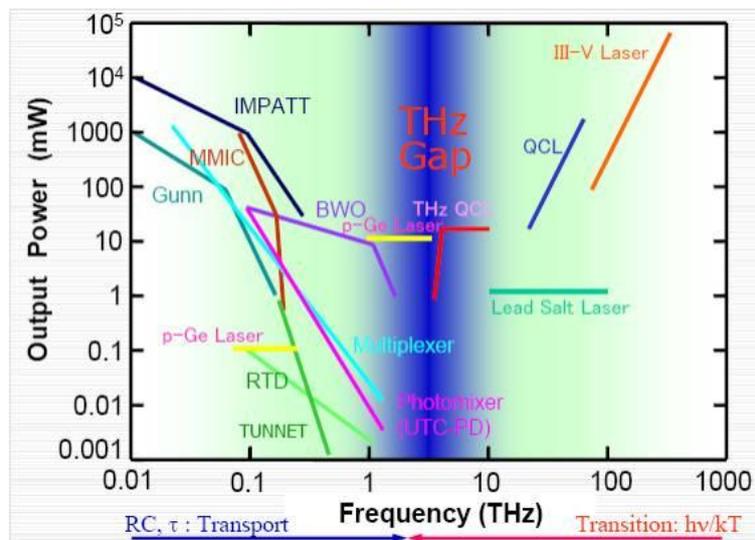
Echantillon	Epaisseur [mm]	Indice à 1 THz	Atténuation [dB] à 1 THz	f [THz] à -3 dB	Transparence
T-Shirt	0.42	1.14	1.08	1.64	☺
Denim	0.96	1.22	4.56	0.89	☺
Laine	0.273	1.14	15.22	0.48	-
Lin	0.51	1.22	12.3	0.54	☺
Cuir	1.89	1.47	27	0.39	☹
Laine épaisse	2.15	1.11	16.4	0.29	☹
Annuaire	0.05	1.4	0.46	> 2	☺
Carte	0.21	1.47	1.55	1.73	☺
Liner	0.18	1.41	1.5	1.6	☺
Papier repro.	0.12	1.4	1.25	> 2	☺
Carton	1.85	1.41	14.81	0.43	-
Caoutchouc	4.1	1.58	14.2	0.41	-
Cuir	5.5	1.412	-	-	☹
Liège	3.15	1.168	21.77	0.3	☹

**Figure III.4 : Tableau indiquant l'atténuation et la transparence de différents matériaux aux fréquences THz [Ket12].**

Parmi les nombreux autres domaines d'application des ondes térahertz, nous pouvons citer celui émergeant des télécommunications et en particulier, la réalisation de dispositifs de communication sans fil de courte portée similaires aux systèmes Wifi. Dans ce cadre, l'utilisation des ondes térahertz a, tout d'abord, l'avantage d'augmenter le débit d'informations jusqu'au téraoctet par le biais de la simple augmentation de la fréquence porteuse. Toutefois, la forte absorption des ondes térahertz, par l'humidité ambiante, limite la portée de la propagation THz mais il est tout à fait envisageable de concevoir des réseaux locaux à courte portée, présentant une confidentialité accrue des informations échangées.

### III.2.2. Les technologies THz aujourd'hui

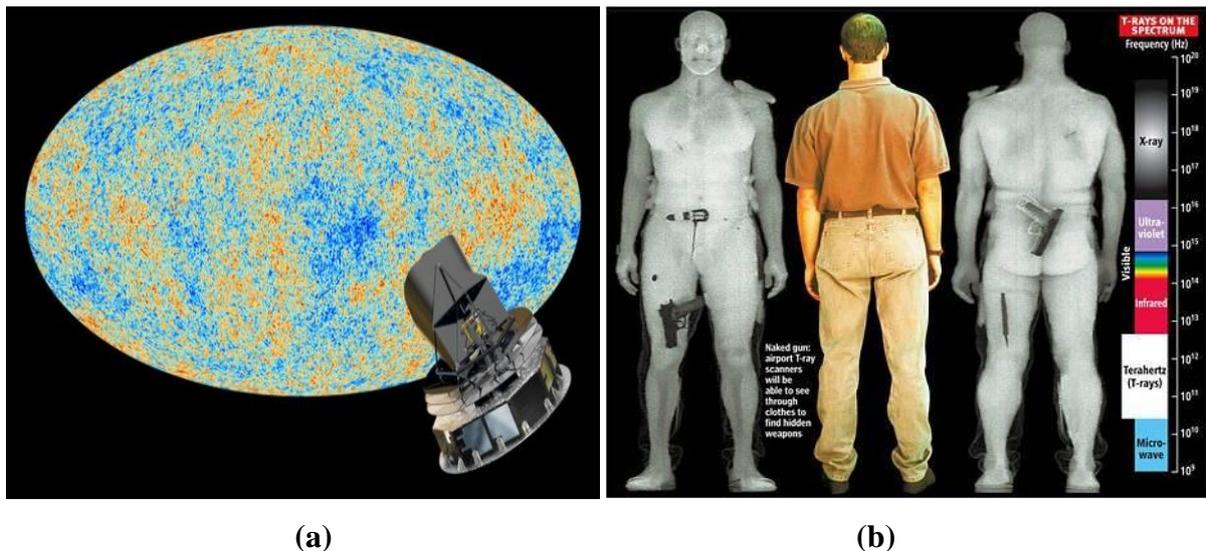
Si le potentiel d'application des fréquences térahertz a été compris depuis longtemps, la difficulté de réaliser des composants dans cette gamme de fréquences (sources, détecteurs, et éléments passifs et/ ou actifs d'un réseau de transmission de l'information) a poussé la communauté scientifique à concentrer ses recherches dans d'autres parties du spectre électromagnétique et en particulier, celles des micro-ondes et de l'optique. Cette absence de développement des technologies térahertz a conduit à la formation de ce que l'on appelle le fossé ou le gap térahertz. Ce gap est, notamment, visible au niveau des composants d'extrémité (sources, détecteurs) comme le montre la **Figure III.5** mais également, au niveau des composants permettant de transporter et de manipuler ces ondes THz (atténuateurs, filtres, guides...).



**Figure III.5 : Illustration du gap térahertz en terme de sources/ dispositifs disponibles pour les domaines de fréquences 0.01 – 1000 THz [Pod09].**

Toutefois, depuis une trentaine d'années, les recherches en matière de technologies THz se sont accélérées avec le développement des premières sources térahertz pour lesquelles on peut distinguer deux grandes approches [Dec04]. La première approche consiste à utiliser les technologies existantes dans le domaine des micro-ondes en essayant d'augmenter simplement la fréquence de fonctionnement des dispositifs. Dans ce cadre, des recherches montrent l'intérêt d'utiliser des tubes électroniques ou des oscillateurs à diodes pour réaliser des sources térahertz. À l'opposé, on trouve une deuxième approche qui consiste à transposer les technologies optiques vers le domaine des fréquences térahertz. Dans ce cas, il a été démontré la possibilité d'utiliser des lasers à cascades quantiques, des lasers à silicium dopés ou encore des photo-mélangeurs pour réaliser des sources térahertz mono-fréquence. À la suite de ces différentes approches, on assiste actuellement au développement d'autres types de composants (détecteurs, guides d'ondes, etc.), reprenant généralement les deux mêmes approches ce qui a abouti à la réalisation des premiers systèmes térahertz [Woj11], autrement-dit des équipements commercialisables en l'état dont le fonctionnement repose sur l'utilisation des ondes THz.

Actuellement, le domaine de la spectroscopie est un facteur déterminant dans le développement des systèmes térahertz à travers le déploiement des méthodes de spectroscopie dans le domaine temporel, à détection hétérodyne ou encore par interféromètre à transformée de Fourier. Ces techniques sont utilisées dans des domaines très variés comme, par exemple, en astronomie, dans le cas très récent du satellite Planck qui embarque des détecteurs THz pour réaliser une cartographie fine de l'Univers observable (**Figure III.6a**).



**Figure III.6 : a. Image du fond diffus cosmologique obtenue par le satellite Planck en utilisant une technologie THz [ESA13] et b. illustration de la technologie d'imagerie THz montrant le principe des scanners corporels THz.**

En dehors des systèmes expérimentaux de laboratoire, l'utilisation large publique des systèmes THz est cantonnée au domaine de la sécurité (notamment, aéroportuaire), par le déploiement des scanners corporels (**Figure III.6b**). Toutefois, ces systèmes restent assez limités car en exploitant seulement la partie basse du domaine térahertz, ils souffrent de problèmes de rapidité de mesures.

À travers cette brève présentation, on peut conclure que le domaine des fréquences THz présente un intérêt pour de nombreuses applications (spectroscopies, systèmes d'imagerie ou encore télécommunications). Malgré cela, ce domaine de fréquences a longtemps été sous-exploité par la communauté scientifique à cause de la difficulté de réaliser des composants THz. Ce n'est que depuis très récemment que l'on assiste à un véritable essor des recherches dans ce domaine des fréquences pour lequel, contrairement à d'autres domaines de fréquences comme celui des micro-ondes, les bandes de fréquences ne sont pas attribuées. Néanmoins, que ce soit pour améliorer les applications existantes ou pour développer les applications à venir (notamment, en matière de télécommunication), il apparaît nécessaire de continuer le développement des technologies et des composants dans le THz. Dans ce cadre, la difficulté réside dans la transposition dans ce domaine de fréquences, des matériaux, des techniques de fabrication et des technologies habituellement utilisés en microélectronique et en optique. Pour palier à ce problème, de nombreuses recherches sont actuellement menées pour trouver des matériaux compatibles avec les technologies et les applications THz.

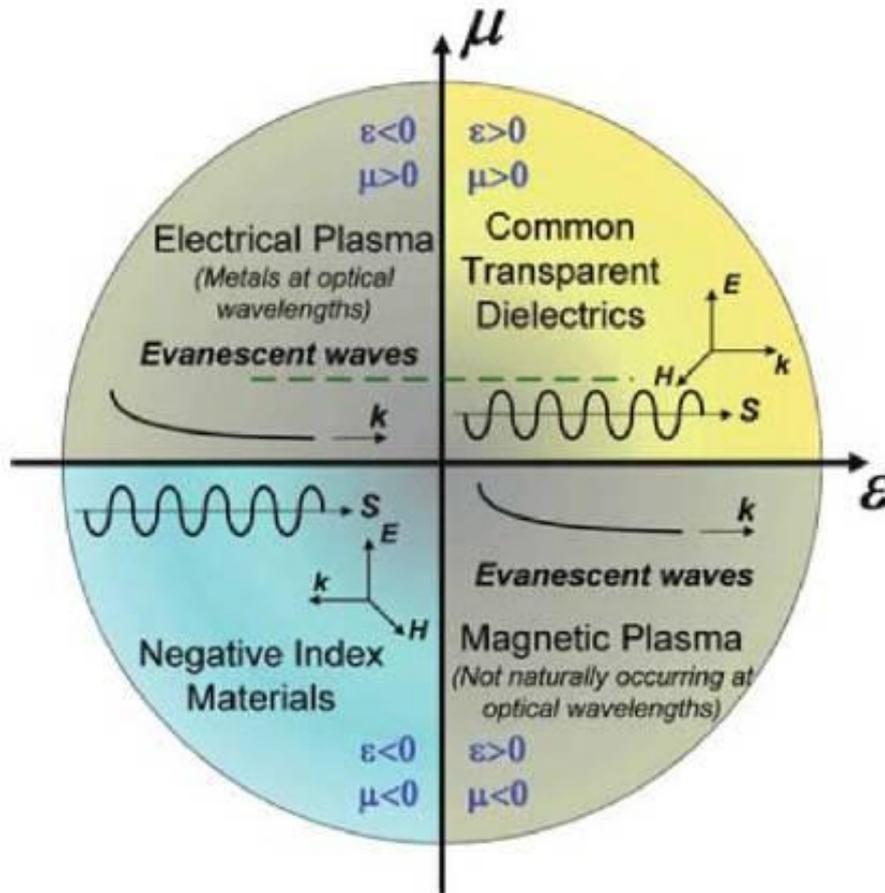
### **III.3. Les métamatériaux pour le domaine THz**

Parmi les solutions envisagées par la communauté scientifique en matière de matériaux compatibles avec les technologies et les applications THz, nous assistons actuellement à l'émergence d'une nouvelle classe de matériaux artificiels composites appelés communément des métamatériaux.

#### **III.3.1. L'intérêt des métamatériaux électromagnétiques**

Lorsque l'on réalise une classification théorique des matériaux en fonction du signe de la valeur de leur permittivité et de leur perméabilité (**Figure III.7**), on s'aperçoit que les

matériaux naturels se regroupent en seulement deux catégories sur les quatre catégories possibles théoriquement.



**Figure III.7 : Classification théorique des matériaux en fonction du signe de la valeur de leur permittivité et de leur perméabilité électriques [Zai11].**

En premier, les matériaux présentant une permittivité et une perméabilité positives correspondent aux cas des matériaux diélectriques. Un deuxième cas est représenté par les plasmas électroniques de métaux, qui présentent une permittivité négative et une perméabilité positive mais seulement aux longueurs d'onde optiques. En revanche, il n'existe pas de matériaux naturels présentant une perméabilité négative ni de matériaux présentant à la fois une permittivité et une perméabilité négatives (matériaux à indices de réfraction négatifs).

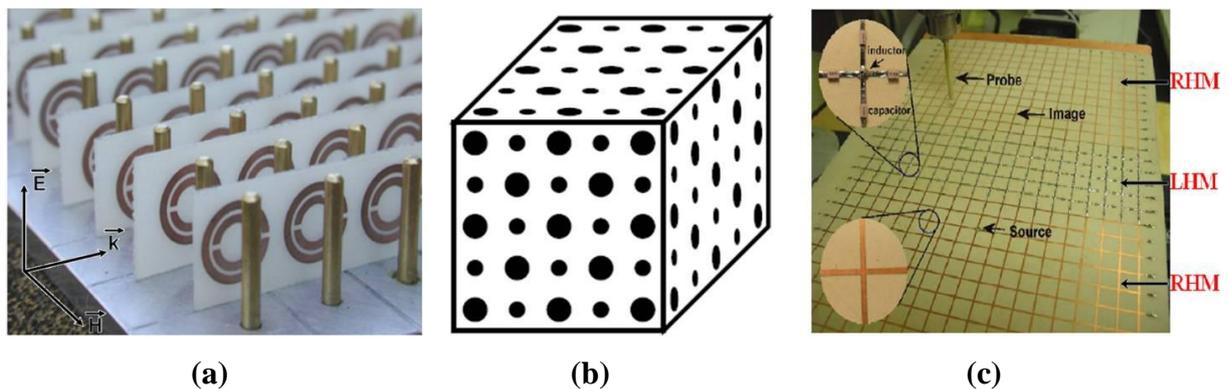
C'est dans ce contexte que le concept des matériaux artificiels composites, que l'on appelle métamatériaux, a été introduit. Ces matériaux artificiels sont constitués d'un arrangement d'inclusions périodiques (métalliques ou diélectriques) sous longueurs d'onde dans un matériau hôte. Cet agencement de la matière donne aux métamatériaux de nouvelles propriétés par rapport aux matériaux d'origine comme une permittivité négative et/ ou une perméabilité négative. Sous certaines conditions, si ces deux caractéristiques sont observées à

la même fréquence, le matériau composite présente alors un indice de réfraction négatif et le métamatériau est de type "main gauche".

Au-delà de l'aspect purement théorique, les métamatériaux possèdent un très grand potentiel d'application pour la réalisation de fonctions exotiques (lentilles parfaites, invisibilité dans une région spatiale délimitée...) ou plus communes (commutateurs, modulateurs, détecteurs, absorbants...), dans des domaines de fréquences où les autres technologies ne sont pas adaptées, notamment, la région du gap THz.

### III.3.2. Les métamatériaux à inclusions métalliques

Selon les données recensées dans la littérature, on peut, aujourd'hui, rassembler les métamatériaux en trois grandes familles [Hou09] : les métamatériaux à inclusions métalliques, les métamatériaux tout diélectriques basés sur l'utilisation d'inclusions à forte permittivité et les lignes de transmission périodiques (Figure III.8).



**Figure III.8 : Exemple de (a) métamatériau à inclusions métalliques, (b) métamatériau tout diélectriques, (c) métamatériau de type ligne de transmission [Hou09].**

Dans la suite nous allons nous intéresser plus particulièrement aux métamatériaux à inclusions métalliques, présentant une permittivité négative mais également une perméabilité négative et un indice de réfraction négatif (sans le besoin d'utiliser un matériau naturellement magnétique).

#### III.3.2.1. Réseaux de fils métalliques

L'histoire des métamatériaux à inclusions métalliques commence, en 1996, lorsque Pendry et al [Pen96], considéré comme le pionnier des métamatériaux, montrent la possibilité

d'obtenir une permittivité négative dans le domaine des hyperfréquences en utilisant un réseau de fils métalliques, qui présente en quelque sorte les caractéristiques d'un plasma dilué.

Parmi les différentes phases de la matière, la phase correspondant aux plasmas est particulièrement intéressante car elle présente naturellement une permittivité négative. On retrouve, notamment, ce phénomène dans les métaux dont l'évolution fréquentielle de la permittivité peut être décrite à l'aide de la formule de Drude (relation **III.1**).

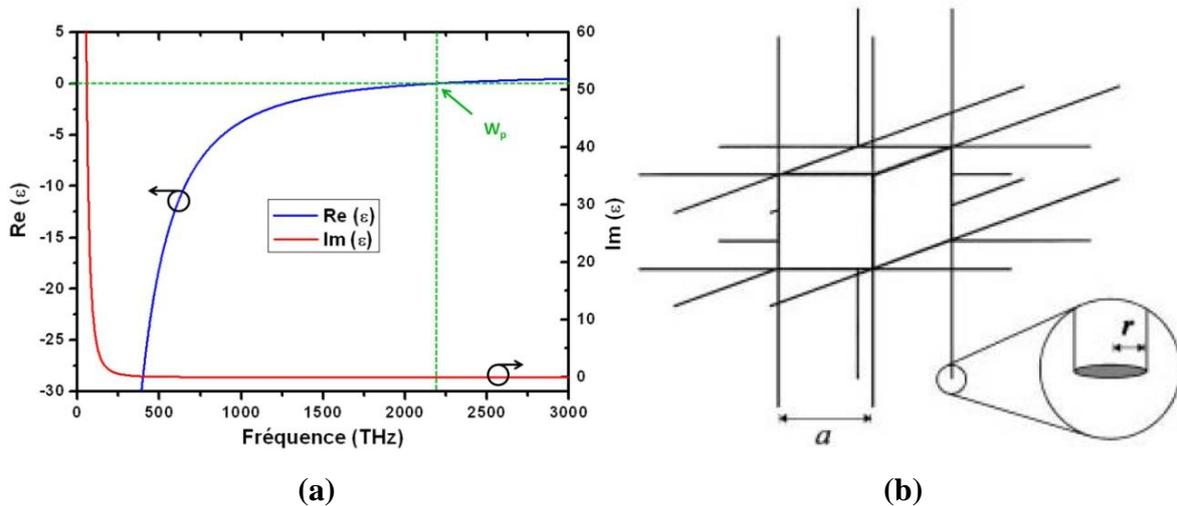
$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i/\tau)} \quad (\text{III.1})$$

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{\varepsilon_0 m}} \quad (\text{III.2}) \quad \text{et} \quad \tau = \frac{m\sigma}{ne^2} \quad (\text{III.3})$$

avec :

- $\omega_p$  : la fréquence plasma électrique ;
- $\tau$  : le temps de relaxation ;
- $n, m$  : la densité électronique et la masse des électrons ;
- $e$  : la charge élémentaire d'un électron ;
- $\varepsilon_0$  : la permittivité du vide ;
- $\sigma$  : la conductivité du métal.

À l'aide de cette relation, on peut alors mettre en évidence l'existence d'une zone de fréquences en dessous de la fréquence plasma pour laquelle, la partie réelle de la permittivité des métaux devient négative, comme on peut le voir sur la **Figure III.9a** dans le cas de l'or. A des fréquences encore plus basses, on observe également une augmentation de la partie imaginaire de la permittivité (**Figure III.9a**), traduisant une augmentation de la conductivité du métal et donc l'installation de pertes métalliques qui compensent les effets de la partie réelle négative. Généralement, les métaux présentent une fréquence plasma tellement élevée (2175 THz pour l'or) qu'il devient alors impossible d'observer une permittivité négative dans le domaine des hyperfréquences.



**Figure III.9 :** (a) Evolution en fonction de la fréquence des parties réelles et imaginaires de la permittivité de l'or ( $\omega_p = 2175$  THz et  $\tau = 80$  fs) [Hou09] et (b) réseaux de fils métalliques proposés par Pendry et al [Pen96].

Pour contourner ce problème, Pendry et al. ont alors proposé d'utiliser un réseau périodique de fils métalliques (**Figure III.9b**). En réduisant le métal sous la forme de fils, ils ont montré que l'on peut ainsi, provoquer des variations de la densité électronique et de la masse effective des électrons, ce qui engendre une diminution très importante de la fréquence plasma de la structure composite ainsi obtenue. Dans le cas de la structure proposée par Pendry qui est réalisée à base d'aluminium, il serait alors possible d'obtenir une fréquence plasma effective de l'ordre de 8,2 GHz (relation **III.1 – III.3**).

$$\omega_p = \frac{2\pi c_0}{a^2 \ln\left(\frac{a}{r}\right)} \quad (\text{III.4}) \quad \text{et} \quad \tau = \frac{\pi r^2 \sigma}{\epsilon_0 a^2 \omega_p^2} \quad (\text{III.5})$$

avec :

$c_0$  : vitesse de la lumière dans le vide ;

$a$  : rayon des fils ;

$p$  : distance entre les fils.

Quelques années après cette hypothèse, Pendry et al. [Pen98] ont alors démontré expérimentalement qu'une structure 3D composée de fils minces présentait des effets ressemblant à un plasma dans la gamme des fréquences micro-ondes.

### III.3.2.2. Structures de type Split Ring Resonator (SRR)

Dans la continuité de leurs recherches, le groupe de Pendry s'est intéressé à la possibilité d'observer une réponse comparable aux réseaux de fils métalliques mais dans le domaine magnétique, autrement-dit à la réalisation de structures présentant une perméabilité effective négative, en utilisant des matériaux à la base non magnétiques.

Dans ce contexte, il a été montré [Pen99] qu'il est possible d'observer ce type de réponse dans des structures où les champs électromagnétiques présentent de fortes inhomogénéités et que l'amplitude de la réponse est proportionnelle à l'importance de ces non-linéarités. Pour observer une permittivité négative assez importante, ils ont utilisé des arrangements de microstructures périodiques présentant des résonances de type LC, sous la forme de résonateurs à anneaux fendus plus connus sous le nom de leur acronyme anglais de SRR, pour "Split Ring Resonator" (Figure III.10a).

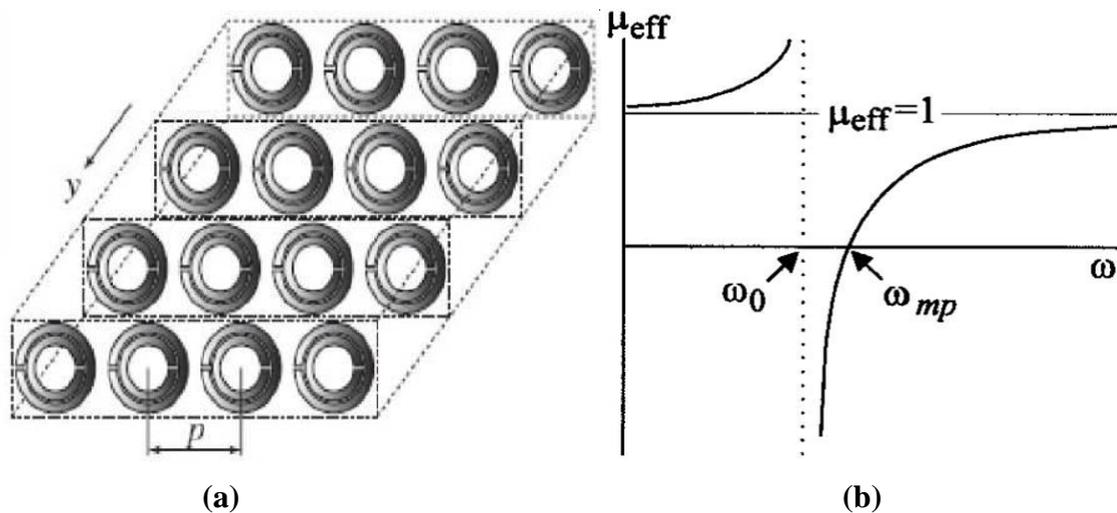


Figure III.10 : (a) Structures de type Split Ring Resonator (SRR) [Hou09], (b) évolution de la partie réelle de la perméabilité caractéristique des SRR [Pen99].

Pour mieux comprendre le comportement de ces structures composites, on peut utiliser le modèle de Lorentz qui permet de déterminer l'évolution fréquentielle de la perméabilité dans des structures présentant des résonances de type LC lorsqu'on excite ces structures avec un champ magnétique orthogonal à la boucle de ces dernières (relation III.6).

$$\mu(\omega) = 1 - \frac{F\omega^2}{\omega \left( \omega + \frac{i}{\tau} \right) - \omega_0^2} \quad (\text{III.6})$$

avec :

F : la fraction de volume de la cellule occupée par les SRR ;

$\tau$  : le temps de relaxation ;

$\omega_0$  : la fréquence de résonance de type LC.

À travers cette équation, on peut alors déterminer une région fréquentielle où la partie réelle de la perméabilité est négative (**Figure III.10b**). Cette région est située entre  $\omega_0$  et  $\omega_{pm}$ , la fréquence plasma magnétique que l'on définit par la relation **III.7**.

$$\omega_{pm} = \frac{\omega_0}{\sqrt{1-F}} \quad (\text{III.7})$$

Dans le cas de la structure présentée dans la **Figure III.10a**, on peut, notamment, écrire  $\omega_0$  et F sous la forme des équations suivantes :

$$\omega_0 = c \sqrt{\frac{3p}{\pi \ln(2wa^3/t)}} \quad (\text{III.8})$$

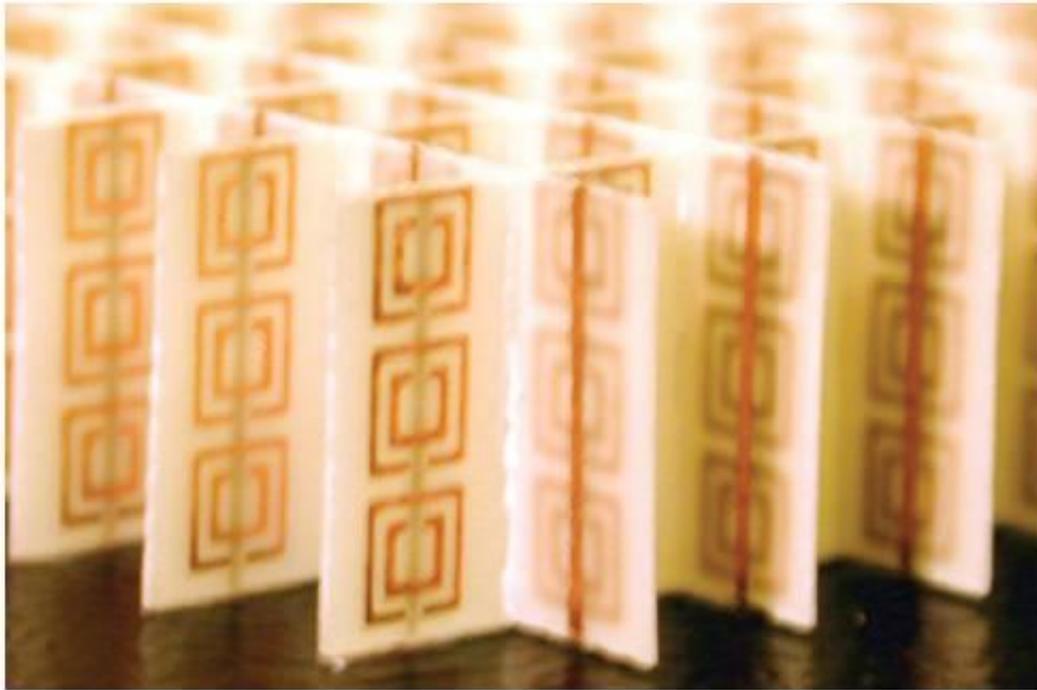
$$F = \pi \left(\frac{a}{p}\right)^2 \quad (\text{III.9})$$

avec :

- a : diamètre extérieur du SRR ;
- p : période des SRR ;
- w : largeur de ligne du SRR ;
- t : épaisseur du SRR.

### III.3.2.3. Métamatériaux "main gauche"

En se basant sur les recherches de Pendry, c'est finalement l'équipe de D.R Smith qui a mis en évidence un indice de réfraction négatif dans une structure doublement négative (présentant simultanément une permittivité et une perméabilité négatives) [**She01**]. Pour cela, ils associèrent dans une même structure les deux types de métamatériaux proposés par Pendry, sous la forme d'une structure 3D composés d'éléments périodiques planaires avec d'un côté, des lignes métalliques et de l'autre côté, des structures de type SRR (**Figure III.11**).



**Figure III.11 : Métamatériau associant deux types de structures présentant simultanément une permittivité et une perméabilité négatives, dans lequel il a été observé un indice de réfraction négatif [She01].**

À travers cette démonstration expérimentale, Smith et al ont ainsi permis de confirmer une hypothèse, présentée par Veselago en 1968 [Ves68], qui supposait qu'un matériau possédant simultanément une permittivité et une perméabilité négative posséderait également des propriétés électromagnétiques opposées par rapport aux matériaux classiques. Ainsi, mis à part un indice de réfraction négatif, ces structures que l'on nomme souvent métamatériaux "main gauche" se caractérisent également par :

- une inversion du trièdre (E, H, k). Lorsqu'une onde plane progressive se propage, le champ électrique E, le champ magnétique H et le vecteur d'onde k, qui définit la direction et le sens de propagation de l'onde, forment ce que l'on appelle le trièdre (E, H, k). Dans le cas où le milieu de propagation présente un indice de réfraction positif, le trièdre formé est qualifié de direct. Au contraire, lorsque le milieu présente un indice de réfraction négatif, le trièdre est indirect autrement dit le front d'onde se déplace en sens inverse de l'énergie. C'est cette propriété qui a donné aux métamatériaux présentant simultanément une permittivité et une perméabilité négative le nom de métamatériaux "main gauche".

- une inversion de l'effet Doppler. Lorsqu'un objet se déplace par rapport à une source électromagnétique ou acoustique qui est immobile, un décalage se forme entre la fréquence à

laquelle le signal est, respectivement, émis par la source et reçu par l'objet. Cette variation de fréquence peut-être décrite par la relation **III.10** :

$$\Delta\omega = \omega_0 \frac{nv}{c_0} \quad (\text{III. 10})$$

avec :

- $\omega_0$  : la pulsation de la source ;
- $v$  : la vitesse de la lumière dans le milieu de propagation ;
- $n$  : l'indice de réfraction du milieu de propagation.

D'après cette relation, on peut déterminer que lorsque l'objet s'approche de la source, la fréquence du signal reçu augmente par rapport à la fréquence d'émission, si l'onde se propage dans un milieu à indice de réfraction positif. Au contraire, si l'onde se propage dans un milieu à indice de réfraction négatif, la fréquence du signal reçu par l'objet diminue lorsque ce dernier s'approche de la source.

- une inversion de l'effet Cherenkov. Lorsqu'une particule chargée pénètre dans un milieu diélectrique avec une vitesse supérieure à la vitesse de la lumière dans ce milieu, cette dernière provoque une onde de choc dont le front d'onde se propage dans une direction qui peut être définie par la relation **III.11** :

$$\cos\theta = \frac{c_0}{nv} \quad (\text{III. 11})$$

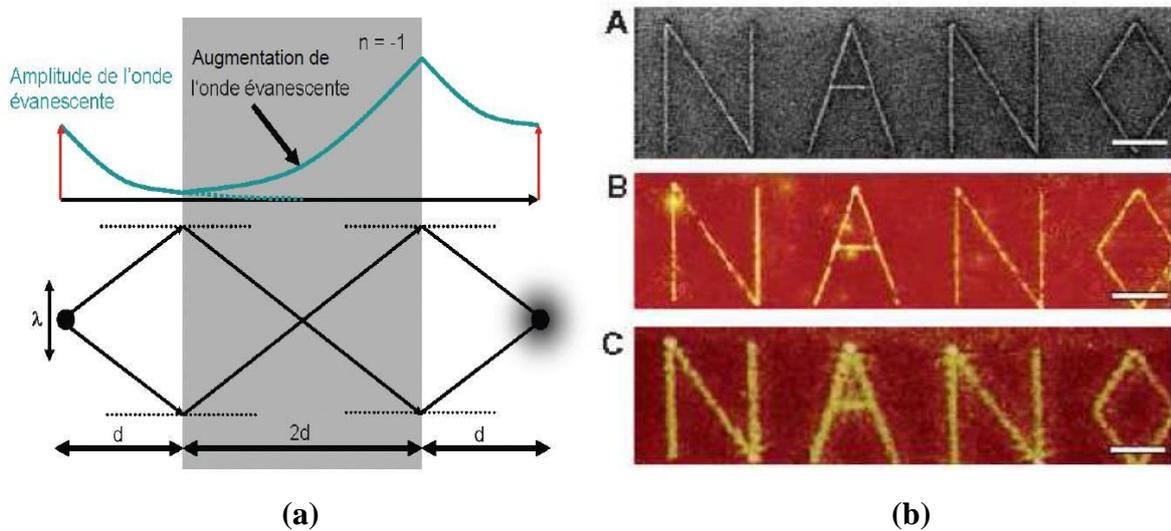
Ainsi, d'après cette relation, la direction de propagation change en fonction du signe de l'indice de réfraction du milieu dans laquelle se propage cette onde.

### **III.3.3. Le champ d'application des métamatériaux**

Comme nous l'avons mentionné auparavant, au-delà de l'aspect purement théorique, les métamatériaux possèdent un grand potentiel d'application, que soit pour des fonctions exotiques ou plus communes et ce dans de nombreux domaines de fréquences.

Une des premières applications des métamatériaux qui revient assez souvent lorsque l'on veut illustrer l'intérêt des métamatériaux est la réalisation d'une lentille parfaite, aussi appelée super-lentille, qui a été proposée par Pendry [**Pen00**].

L'idée de Pendry repose sur l'utilisation de l'indice de réfraction négatif d'un métamatériau "main gauche" ainsi qu'une autre propriété de ce type de métamatériau qui est la possibilité d'amplifier les ondes évanescentes. L'association de ces deux propriétés permettra la réalisation d'une lentille parfaitement plate (**Figure III.12a**) avec la propriété unique de focaliser l'ensemble des composantes de l'objet source dans un plan image unique et ainsi, d'obtenir une image parfaite (**Figure III.12b**).

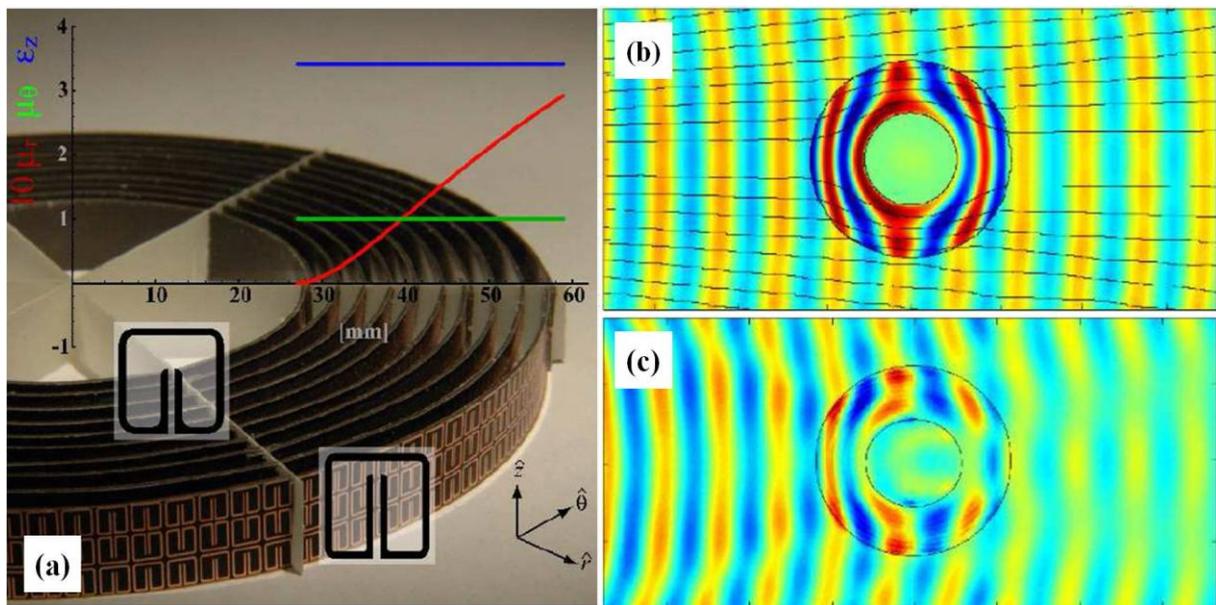


**Figure III.12 : (a) Principe d'amplification des ondes évanescentes et de focalisation par un métamatériau à indice de réfraction négatif, (b) comparaison entre un objet source (A), l'image obtenue avec une lentille plane convergente réalisée avec un métamatériau à indice de réfraction négatif (B) et avec une lentille convergente classique (C) [Met07].**

En pratique, des recherches ont démontré la possibilité de réaliser des lentilles planes convergentes qui présentent une meilleure résolution car elles ne sont plus limitées par les phénomènes de diffraction, contrairement aux lentilles classiques (dont le pouvoir de résolution spatiale est limité par la diffraction à des dimensions d'environ  $\lambda/2$ ). Néanmoins, ces lentilles à base de métamatériaux restent encore limitées par les pertes engendrées par les métamatériaux.

Un deuxième exemple d'application des métamatériaux, certainement un de plus emblématique, concerne le contrôle de la propagation des ondes électromagnétiques et est issue d'une collaboration entre Pendry et Smith [Shu06].

Dans ce cadre, leurs recherches se sont intéressées à la structure présentée sur la **Figure III.13a**, qui est composée de métamatériaux à perméabilité graduelle prenant la forme d'un cylindre. À l'aide de simulations électromagnétiques (**Figure III.13b**), ils ont alors montré que les ondes électromagnétiques incidentes sur la structure globale contournent obligatoirement la zone vide située au centre de cette structure. C'est ainsi, que Pendry et Smith donnèrent naissance au concept de la cape d'invisibilité électromagnétique. En théorie, la structure proposée permet de rendre invisible une zone cylindrique de 2,7 cm de rayon par rapport à une fréquence de 8.5 GHz. Dans la réalité, l'effet d'invisibilité reste limité par les pertes de la structure ainsi, que par sa sensibilité aux différentes polarisations des ondes incidentes (**Figure III.13c**).



**Figure III.13 :** (a) Structure cylindrique de métamatériaux à perméabilité graduelle [Shu06] présentant, en théorie, une zone d'invisibilité électromagnétique à une fréquence de 8.5 GHz comme le montre la simulation en (b) mais qui reste imparfaite en pratique (c).

Plus largement, les métamatériaux représentent une nouvelle alternative pour de nombreuses applications dans le domaine des capteurs, des amplificateurs, des commutateurs, etc. Contrairement à d'autres technologies, la technologie des métamatériaux peut facilement être transposée dans divers domaines du spectre électromagnétique (optique, THz, micro-ondes) mais également à d'autres types d'ondes. Dans ce contexte, on peut trouver des études sur la réalisation de capes d'invisibilité dans le domaine des ondes mécaniques pour protéger

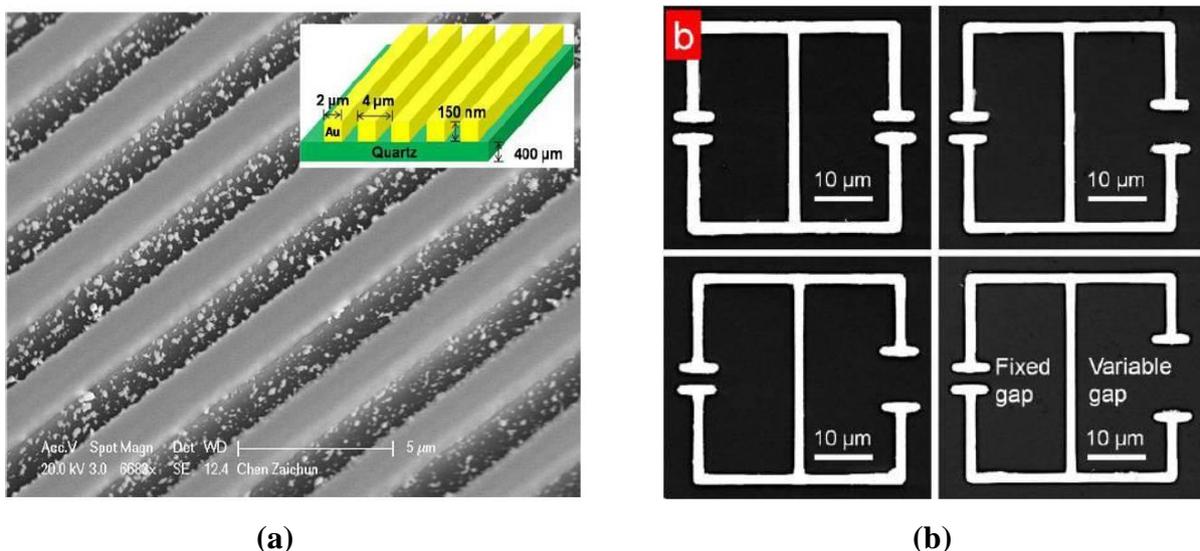
des bâtiments contre des séismes (ondes sismiques), pour réaliser des protections contre les vagues (ondes hydrodynamiques) ou encore contre le bruit (ondes acoustiques).

### III.3.4. Les métamatériaux THz planaires

Comme mentionné auparavant, la notion de "gap THz" est issue de la difficulté d'étendre les technologies matures mises au point pour les domaines de l'optique et des micro-ondes vers le domaine THz et d'autre part, de la difficulté à trouver des matériaux compatibles avec la technologie et les applications THz. Dans ce contexte, les métamatériaux émergent comme des composants de choix, parfaitement adaptés aux demandes du domaine fréquentiel des ondes THz et permettant d'envisager la réalisation de dispositifs capables de contrôler et de manipuler les ondes THz.

#### III.3.4.1. Intérêt des métamatériaux THz planaires

Dans le domaine des THz, il existe, aujourd'hui, différentes approches possibles concernant la réalisation de métamatériaux comme, par exemple, la structure tridimensionnelle de type Fishnet. En l'occurrence, nous avons choisi de nous intéresser aux métamatériaux planaires comme ceux utilisés par Smith et al [She01] dans le domaine des hyperfréquences et dont des exemples sont présentés sur la **Figure III.14**. Ces métamatériaux sont généralement constitués de motifs métalliques déposés sur un substrat planaire.

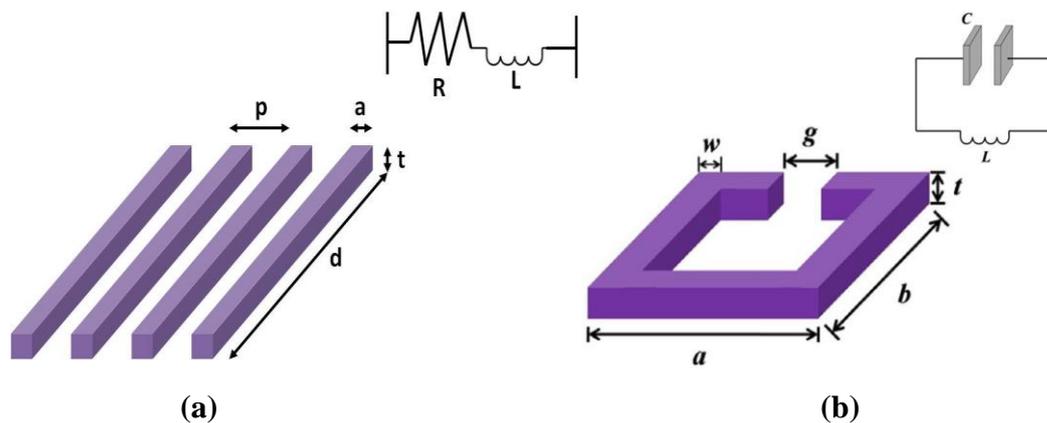


**Figure III.14 : Exemple de métamatériaux planaires 2D avec en (a) une structure de type Wire-Grid et en (b) de structures de type SRR [Zai11].**

L'intérêt de ce type de métamatériaux dans le domaine THz réside, notamment, dans leur potentiel d'applications. En parcourant la littérature, on s'aperçoit que ces structures artificielles peuvent fournir des solutions dans la gamme THz, inaccessibles auparavant (en utilisant des matériaux naturels), pour une large gamme d'applications (filtres [Ulr67], polariseurs [Zai11], absorbants [Tao08], antennes, surfaces sélectives en fréquence, modulateurs haute fréquence, etc.) dans des domaines aussi variés que la défense, l'imagerie biomédicale, le spatial ou les télécommunications. Dans le cadre de nos recherches, le choix pour ces dispositifs a également été motivé par leurs dimensions (cellule unitaire  $\approx 100 \mu\text{m}$  dans la gamme de fréquences 0.1 – 1 THz) compatibles avec les techniques de micro-fabrication que nous utilisons (en particulier, la photolithographie et la gravure par voie humide).

### III.3.4.2. Physique des métamatériaux THz planaires

Comme dans le domaine des hyperfréquences, il est possible d'utiliser le modèle de Drude et le modèle de Lorentz pour déterminer l'évolution respective de la permittivité et de la perméabilité aux fréquences THz. Dans le cas des métamatériaux planaires, afin de concevoir leur structure pour un fonctionnement dans le domaine des fréquences THz, on peut alors remonter aux fréquences caractéristiques des deux structures de bases qui sont présentées sur la **Figure III.15**, à savoir les structures de type Wire-Grid et celles de type SRR.



**Figure III.15** : Schéma d'une cellule unitaire d'un métamatériau et son circuit électrique équivalent dans le cas d'une structure de type Wire-Grid en (a) et de type SRR en (b) [Zai11].

Dans le cas des réseaux de fils métalliques minces, aussi appelés "Wire-Grid", on peut déterminer la fréquence plasma et le temps de collision à l'aide des relations suivantes [Tak10] :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{1}{\epsilon_0 p a L}} \quad (\text{III. 12}) \quad \text{et} \quad \tau = \frac{L}{R} \quad (\text{III.13})$$

avec :

- L : inductance effective par unité de longueur ;
- R : résistance effective par unité de longueur.

Sur le même principe, la fréquence de résonance de la structure de type SRR peut se mettre sous la forme [Zai11] :

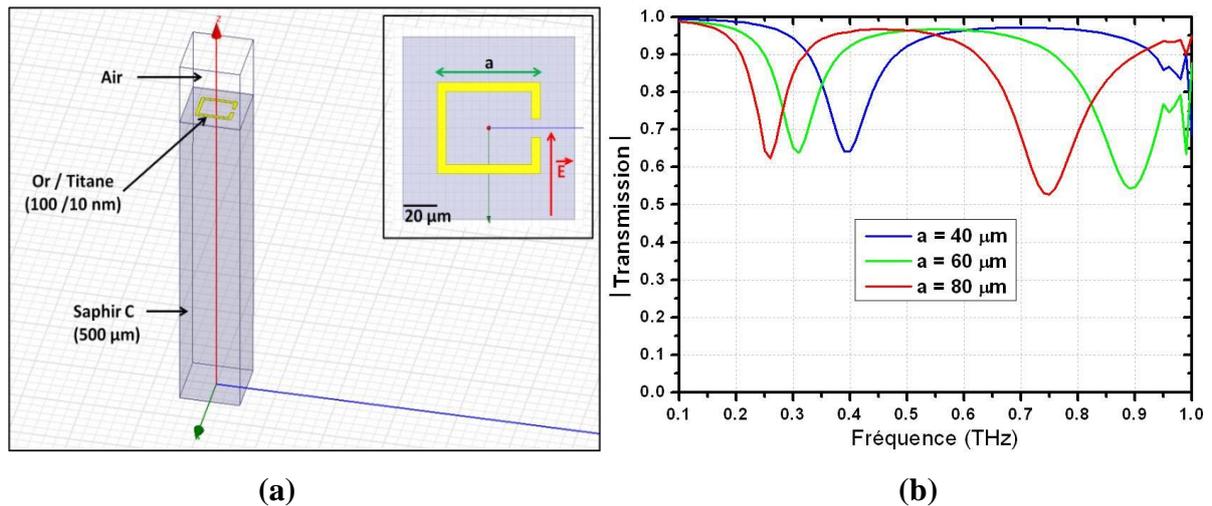
$$f_0 = \frac{1}{2\pi\sqrt{L'C'}} \quad (\text{III.14})$$

$$C' = \frac{\epsilon_{\text{eff}} W t}{4\pi k g} \quad (\text{III. 15}) \quad \text{et} \quad L' = \mu_0 \frac{ab}{t} \quad (\text{III.16})$$

avec :

- $\epsilon_{\text{eff}}$  : permittivité du milieu environnant située entre  $\epsilon_{\text{air}}$  et  $\epsilon_{\text{substrat}}$  ;
- $\mu_0$  : perméabilité du vide ;
- k : constante de Boltzmann.

En utilisant ces deux types de structures ou des structures dérivées, en choisissant correctement leurs dimensions et les matériaux qui les composent (type de métal des motifs et du substrat), il est alors possible d'obtenir un fonctionnement de dispositifs dans la gamme 0.1 – 1 THz. A titre d'exemple, sur la **Figure III.16a**, nous avons représenté un schéma de la cellule unitaire, composée d'un anneau fendu, d'un métamatériau (matrice périodique 2D de la cellule unitaire). En utilisant le logiciel d'éléments finis HFSS avec des conditions de type CCE/ CCM (**Annexe 3**), nous avons réalisé différentes simulations dans lesquelles nous avons fait varier la longueur, notée "a", de l'anneau fendu.



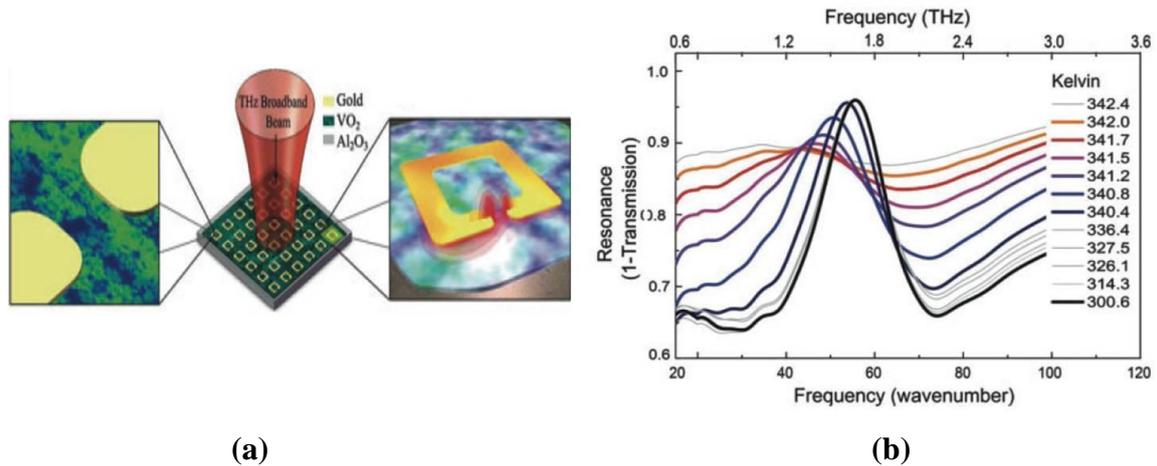
**Figure III.16 : a. Structure d'une cellule unitaire de type anneau fendu d'un métamatériau et b. transmissions THz de ce métamatériau obtenues par simulation pour différentes valeurs de la longueur "a".**

Sur la **Figure III.16b** où nous avons représenté les simulations des transmissions THz de ce composant, nous constatons que la transmission de chacune des structures analysées varie avec la longueur de l'anneau. On observe, notamment, que la fréquence du premier pic de résonance THz augmente lorsque la longueur "a" diminue.

### III.3.4.3. Des métamatériaux THz planaires accordables

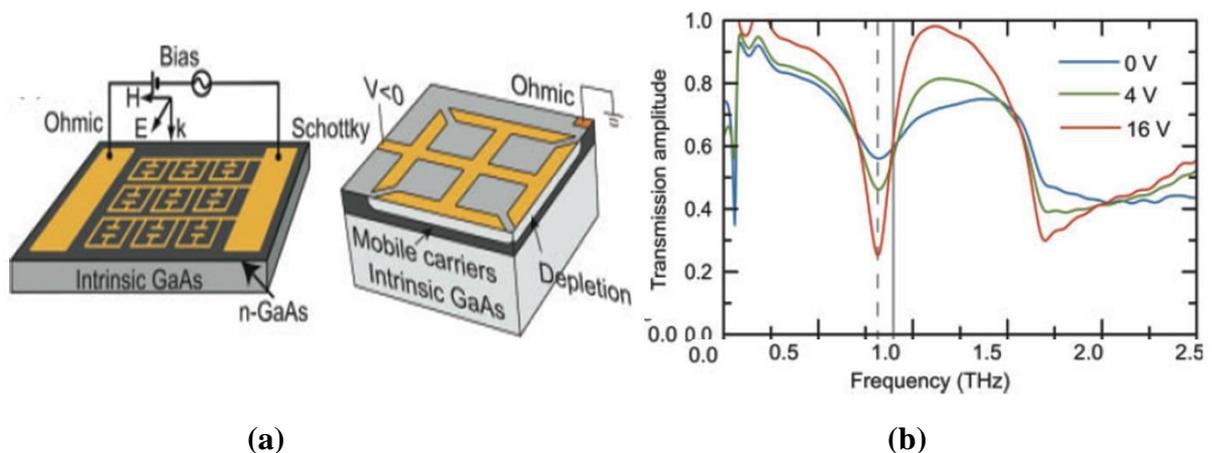
Pour atteindre le plein potentiel des propriétés uniques des métamatériaux, en contrôlant le champ électromagnétique en temps réel, il est souhaitable de les rendre accordables. Dans le domaine des THz, les premières démonstrations de structures reconfigurables ont principalement été basées sur la modification des propriétés électriques de résonateurs de type SRR, en utilisant des motifs hybrides intégrant des diodes à capacité variable, des matériaux ferroélectriques ou supraconducteurs, des cristaux liquides ou des structures microfluidiques ou MEMS [Che11, Tao09].

Un premier exemple, relevant pour nos recherches présentées dans ce manuscrit, est l'étude de Driscoll et al. [Dri08] qui introduit l'idée d'utiliser des résonateurs de type SRR dont la réponse fréquentielle THz est accordable. Cette agilité est obtenue par l'utilisation d'une sous-couche à base d'un matériau à transition de phase (un film de VO<sub>2</sub>) permettant de faire varier la réponse en transmission ou en réflexion du métamatériau, par le biais d'un stimulus thermique (**Figure III.17**).



**Figure III.17 : Métamatériau accordable par commande thermique à base de VO<sub>2</sub> avec une illustration du principe en (a) et la mesure correspondante en (b) [Dri08].**

D'autres études, pertinentes pour le domaine des métamatériaux accordables, mettent en avant la possibilité d'utiliser un substrat de type GaAs où l'accordabilité peut-être déclenchée de façon plus rapide, par photoexcitation ou en utilisant une commande électrique [Che11]. Dans la structure présentée sur la **Figure III.18a**, les SRR d'or et le substrat de GaAs dopé n forment une diode Schottky pour laquelle l'application d'une tension de polarisation permet la formation d'une zone de déplétion des porteurs de charge. Ce phénomène conduit à la modification de la réponse du dispositif, comme observée sur la **Figure III.18b**. En utilisant cette commande électrique, on peut alors imaginer la réalisation de dispositifs THz plus complexes, sous la forme d'une matrice avec des éléments à commande individuelle, pour des applications d'imagerie.



**Figure III.18 : a. Métamatériau accordable électriquement utilisant un substrat de type GaAs et b. sa réponse fréquentielle dans le domaine THz [Che11].**

À travers cette présentation succincte du domaine des métamatériaux, nous avons mis en avant que ces structures artificielles, formées d'inclusions sous longueurs d'onde intégrées dans des matériaux hôtes détiennent des propriétés rares, voire inexistantes, dans les matériaux naturels. Mis à part leur côté exotique et leur intérêt du point de vue de la physique fondamentale, leurs propriétés sont également intéressantes d'un point de vue applicatif, notamment, dans le domaine des ondes THz. La faculté d'adaptation des métamatériaux dans ce domaine de fréquences permet de réaliser des dispositifs pour le contrôle et la manipulation des ondes THz. Dans ce contexte émergent, nos recherches proposent la réalisation de dispositifs à base de métamatériaux hybrides, permettant de contrôler de manière dynamique la propagation des ondes THz pour la réalisation de fonctions spécifiques, comme la commutation et la modulation du signal incident ou le filtrage accordable dans ce domaine de fréquences. La modification de la manière dont les dispositifs interagissent avec le champ électromagnétique (espace libre) sera assurée par l'introduction dans la structure des métamatériaux d'éléments avec des propriétés variables, à savoir des matériaux à transition de phase comme le dioxyde de vanadium, VO<sub>2</sub>.

### **III.4. Caractérisation de films minces de VO<sub>2</sub> aux fréquences THz**

#### **III.4.1. La spectroscopie térahertz dans le domaine temporel**

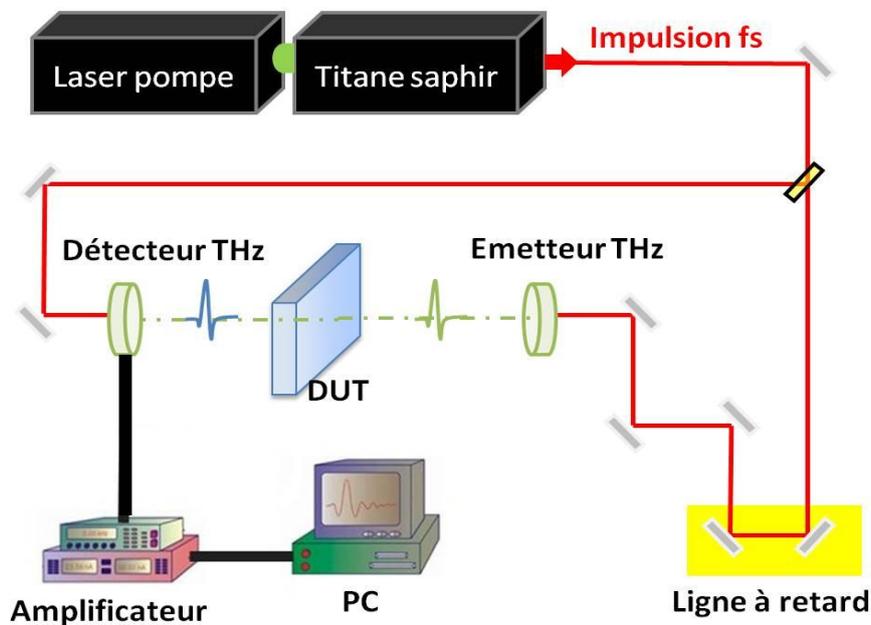
Pour étudier les propriétés de la transition MIT des films minces de VO<sub>2</sub> aux fréquences térahertz, nous avons utilisé un banc de spectroscopie térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS) mis au point par le Dr. Georges Humbert et disponible au département Photonique du laboratoire. Cette méthode est actuellement très employée dans la recherche THz car elle permet de déterminer, assez facilement, l'essentiel des caractéristiques d'un matériau dans une large gamme de ce domaine de fréquences.

##### **III.4.1.1. Principe de la spectroscopie THz-TDS**

La spectroscopie térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS) est une technique de caractérisation de matériaux qui s'appuie sur l'analyse de la transmission et/ ou de la réflexion d'une impulsion d'une durée de quelques centaines de femtosecondes que l'on nomme, généralement, impulsion térahertz [Duv03]. En l'occurrence, pour étudier les propriétés de la transition MIT de films minces de VO<sub>2</sub> déposés sur des substrats de saphir c, nous disposons d'un banc de spectroscopie THz-TDS permettant de réaliser des mesures en transmission.

Dans ce cas, le principe consiste à analyser la réponse en transmission du matériau soumis à une impulsion THz et situé entre une antenne d'émission (source THz) et une antenne de réception (détecteur THz).

Le banc de mesure par spectroscopie THz-TDS (**Figure III.19**) utilisé au laboratoire XLIM a été mis en place au département Photonique par le Dr. G. Humbert dans le cadre de la thèse de Denis Férachou [**Fer12**]. La mesure de l'impulsion THz est rendue possible par l'utilisation de deux antennes photoconductrices, l'une servant d'antenne émettrice (source THz) et l'autre d'antenne de réception (détecteur THz), qui sont toutes les deux constituées de deux lignes métalliques parallèles déposées sur un substrat semi-conducteur d'arséniure de gallium (AsGa) basse température.

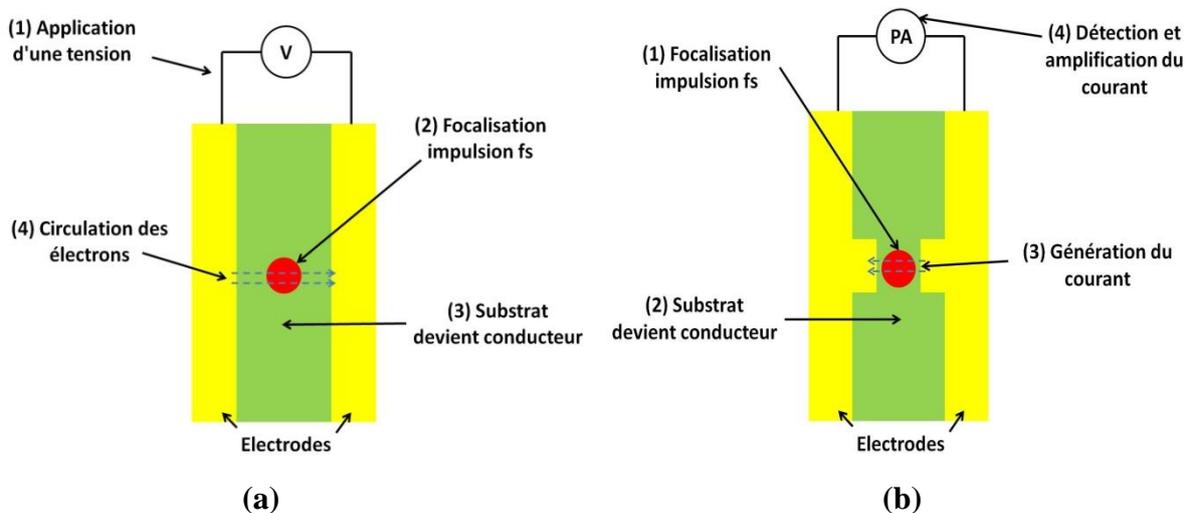


**Figure III.19** : Schéma du banc de spectroscopie THz-TDS utilisé au laboratoire XLIM [**Fer12**].

Le principe de fonctionnement de l'antenne d'émission est illustré sur la **Figure III.20a**. Lorsque l'on applique une tension aux bornes de cette antenne (1), on provoque une accumulation de charges dont il est possible de contrôler la circulation de façon optique. Pour cela, on utilise un laser de type titane saphir pour générer à intervalles de temps réguliers des impulsions rapides (d'une centaine de femtosecondes) que l'on focalise entre les deux armatures métalliques (2). En centrant la longueur d'onde de ces impulsions autour de 800 nm, l'énergie apportée permet de surmonter la bande interdite de 1.4 eV du substrat semi-

conducteur. Celui-ci devient conducteur (3) et provoque un phénomène de transport très rapide des charges accumulées (4). Ce pic de courant produit alors un rayonnement électromagnétique dans la gamme des fréquences THz.

Selon le même principe, la **Figure III.20b** montre le fonctionnement de l'antenne de réception (détecteur). Tout comme l'antenne d'émission, la focalisation d'impulsions du laser (1) provoque la transition du substrat d'un état semi-conducteur vers un état plus conducteur (2). Ensuite, lorsque l'impulsion THz arrive sur ce substrat, le champ électrique de cette impulsion génère un courant (3) qui est proportionnel à son amplitude. Ce courant est alors détecté et amplifié par un préamplificateur de courant (4).



**Figure III.20 : Illustration du fonctionnement des antennes photoconductrices utilisées pour la génération, en (a), et la détection, en (b), des impulsions THz.**

La détection de l'ensemble de l'impulsion THz transmise est, ensuite, assurée d'une part, par la répétition de ce processus de détection et d'autre part, par l'insertion d'une ligne à retard dans le dispositif (en l'occurrence, du côté de l'antenne d'émission). Cette ligne à retard permet ainsi, de créer un décalage temporel entre l'impulsion optique arrivant sur l'émetteur et celle arrivant sur le détecteur. La modification de ce décalage, couplée à la répétition du processus de détection permet alors de reconstruire sur l'antenne détectrice l'allure temporelle du signal THz transmis. Ultérieurement, une simple transformée de Fourier des données temporelles permet de remonter au spectre fréquentiel du signal. Contrairement à d'autres techniques (ex. la spectroscopie FTIR), la méthode THz-TDS permet alors de remonter, en même temps, à l'amplitude et à la phase des signaux THz détectés.

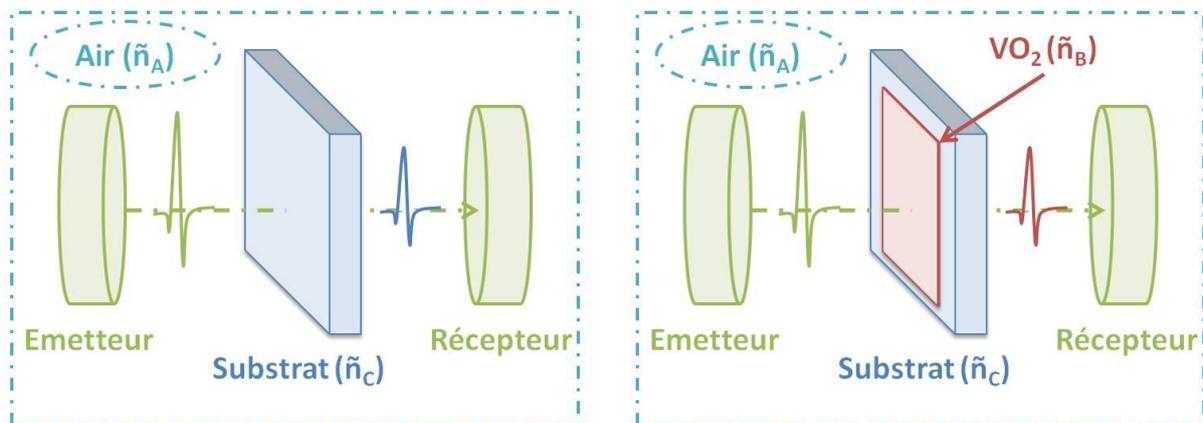
Nous précisons que dans le cas de l'étude de la transmission THz des échantillons de VO<sub>2</sub> qui nécessite des mesures en température, nous avons placé les échantillons sur un élément de chauffage de type Peltier disposant d'un orifice en son centre afin de permettre le passage et la détection de l'impulsion THz.

Concrètement, le protocole de mesure, illustré sur la **Figure III.21**, se déroule de la manière suivante :

- réalisation d'une première mesure de référence sans l'échantillon à caractériser qui permet de déterminer les perturbations produites sur l'impulsion lorsqu'elle ne traverse pas l'échantillon à caractériser ;

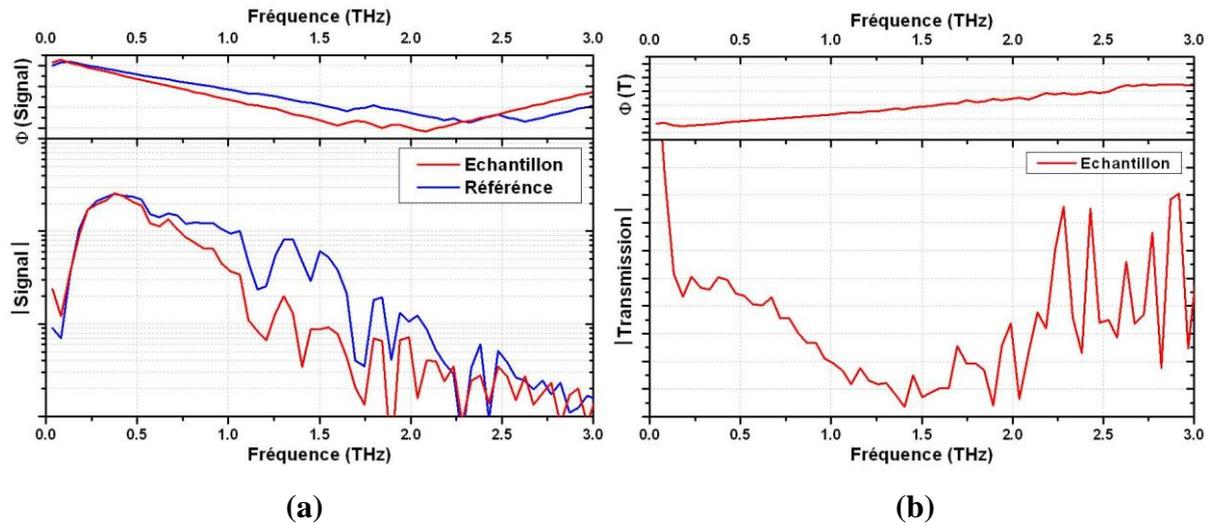
- réalisation d'une deuxième mesure avec l'échantillon à caractériser qui permet de déterminer les perturbations produites sur l'impulsion lorsqu'elle traverse l'échantillon à caractériser.

À l'aide de ces deux mesures, on peut alors étudier l'effet du matériau à caractériser sur la transmission de l'impulsion térahertz, en observant les variations d'amplitude ou le décalage temporel existant entre les deux impulsions mesurées.



**Figure III.21** : Schémas montrant les deux mesures de base de la spectroscopie THz-TDS permettant de déterminer les caractéristiques d'un matériau (en l'occurrence, un film de VO<sub>2</sub>).

Comme mentionné auparavant, à partir du signal temporel enregistré, il est, ensuite, possible de déterminer le spectre fréquentiel en transmission, avec et sans l'échantillon sous test (**Figure III.22a**).



**Figure III.22 : a. Amplitude et phase du signal fréquentiel transmis avec et sans échantillon et b. amplitude et phase de la transmission fréquentielle de l'échantillon ( $T_{\text{échantillon}}$ ).**

Pour cela, on fait appel à des notions de traitement du signal en appliquant une simple transformée de Fourier et plus précisément une FFT (acronyme anglais de "Fast Fourier Transform"), qui nous permet d'écrire ce signal sous la forme d'un nombre complexe avec une amplitude et une phase comme le montre la relation **III.17**.

$$S(w) = |S(w)| \times \exp(-i\phi(S(w))) \quad (\text{III. 17})$$

avec :

- $|S(w)|$  : amplitude du signal transmis ;
- $\phi(S(w))$  : phase du signal transmis.

Enfin, si l'on veut connaître l'influence spécifique du matériau sur la transmission du signal THz, il suffit de remonter au rapport entre le signal THz transmis avec l'échantillon  $S_{\text{échantillon}}$  et le signal transmis sans échantillon  $S_{\text{référence}}$ . Ce rapport correspond à ce que l'on appelle la transmission du matériau  $T_{\text{échantillon}}$  (**Figure III.22b**) et qui peut s'écrire sous la forme de l'équation **III.18**.

$$T_{\text{échantillon}}(w) = \frac{S_{\text{échantillon}}(w)}{S_{\text{référence}}(w)} \quad (\text{III. 18})$$

En donnant non seulement accès à la mesure de l'amplitude mais également à la phase de la transmission, la méthode de spectroscopie THz-TDS nous permet ainsi, de remonter aux différentes constantes de l'échantillon à caractériser (conductivité, permittivité...).

### III.4.1.2. Calcul théorique de la transmission

Mise à part la méthode expérimentale par spectroscopie THz-TDS, il est également possible d'exprimer de manière analytique la transmission du matériau devant un signal THz incident [Han08]. Pour cela, on peut considérer le cas d'une impulsion THz traversant successivement 3 matériaux (A, B et C) chacun caractérisé par son indice de réfraction complexe ( $\tilde{n}_a$ ,  $\tilde{n}_b$  et  $\tilde{n}_c$  avec  $\tilde{n}_b > \tilde{n}_a$  et  $\tilde{n}_c$ ) et son épaisseur ( $L_a$ ,  $L_b$ ,  $L_c$ ) comme le montre la Figure III.23.

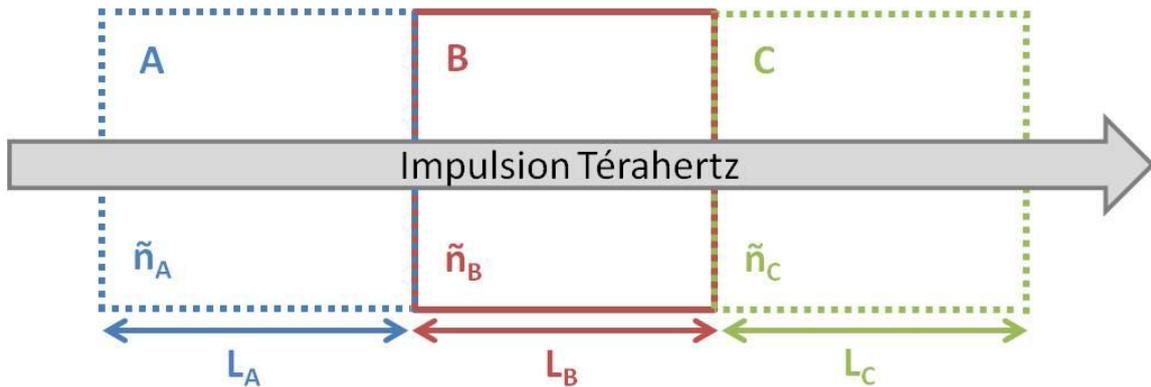


Figure III.23 : Schéma montrant le passage de l'impulsion THz dans trois matériaux successifs A, B et C possédant un indice de réfraction propre ( $\tilde{n}_a$ ,  $\tilde{n}_b$  et  $\tilde{n}_c$  avec  $\tilde{n}_b > \tilde{n}_a$  et  $\tilde{n}_c$ ) et une épaisseur propre ( $L_a$ ,  $L_b$ ,  $L_c$ ).

Dans ce cas, on peut écrire le signal  $S$  transmis entre l'antenne d'émission et l'antenne de réception à l'aide de la relation III.19.

$$S'(w) = E_0(w) \eta(w) D_a(w, L_a) T_{ab}(w) D_b(w, L_b) T_{bc}(w) D_c(w, L_c) FP(w) \quad (\text{III. 19})$$

avec :

- $E_0(w)$  : le signal à la sortie de l'antenne d'émission ;
- $\eta(w)$  : la réflexion interne de chaque matériau. Si nous considérons que les matériaux traversés sont homogènes, cette réflexion est égale à 1.

- $D_a(w, L_a)$  : l'absorption du matériau a, sur sa longueur  $L_a$ , qui est déterminée par l'équation III.20 en définissant  $\tilde{n}_a = n_a - jk_a$ .

$$D_a(w, L_a) = \exp\left(-\frac{j\tilde{n}_a w L_a}{c}\right) \quad (\text{III. 20})$$

-  $T_{ab}(w)$  : la transmission à l'interface entre le matériau a et le matériau b, qui est définie à l'aide de l'équation **III.21**.

$$T_{ab}(w) = \frac{2\tilde{n}_a \cos\theta_i}{\tilde{n}_a \cos\theta_i + \tilde{n}_b \cos\theta_t} \quad (\text{III. 21})$$

Si on considère que la mesure est réalisée en incidence normale, on a alors :  $\cos\theta_i = \cos\theta_t = 1$  et par conséquent, on obtient la relation **III.22**.

$$T_{ab}(w) = \frac{2\tilde{n}_a}{\tilde{n}_a + \tilde{n}_b} \quad (\text{III. 22})$$

-  $FP(w)$  : le terme correspondant aux effets de réflexion Fabry-Pérot, qui peut se mettre sous la forme de l'équation **III.23**.

$$FP(w) = \sum_{k=0}^{+\infty} \{R_{bc}(w) D_b^2(w, l_b) R_{ba}(w)\}^k \quad (\text{III.23})$$

Dans ce terme,  $R_{bc}$  correspond à la réflexion à l'interface du matériau b et du matériau c qui s'écrit à l'aide de la relation **III.24**.

$$R_{bc}(w) = \frac{\tilde{n}_b \cos\theta_i - \tilde{n}_c \cos\theta_t}{\tilde{n}_b \cos\theta_i + \tilde{n}_c \cos\theta_t} \quad (\text{III. 24})$$

Comme pour le terme de transmission  $T$ , si on considère que  $\cos\theta_i = \cos\theta_t = 1$ , on obtient l'équation **III.25**.

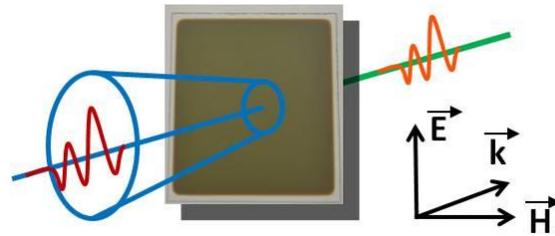
$$R_{bc}(w) = \frac{\tilde{n}_b - \tilde{n}_c}{\tilde{n}_b + \tilde{n}_c} \quad (\text{III.25})$$

En déterminant de manière analytique les valeurs des signaux transmis avec et sans échantillon (relation **III.19**), on peut définir la transmission théorique du matériau à caractériser sous la forme exprimée par l'équation **III.26**. Elle nous permettra alors, en la comparant aux valeurs expérimentales, de calculer les différentes constantes du matériau.

$$T'_{\text{échantillon}}(w) = \frac{S'_{\text{échantillon}}(w)}{S'_{\text{référence}}(w)} \quad (\text{III. 26})$$

### III.4.2. Etude des films minces de VO<sub>2</sub> aux fréquences THz

Dans la suite, nous allons présenter concrètement l'étude par spectroscopie THz-TDS de la transition MIT d'un film mince de VO<sub>2</sub>, de 100 nm d'épaisseur, déposé sur un substrat de saphir c, de 520 μm d'épaisseur, dont le principe des mesures est schématiquement illustré par la **Figure III.24**.

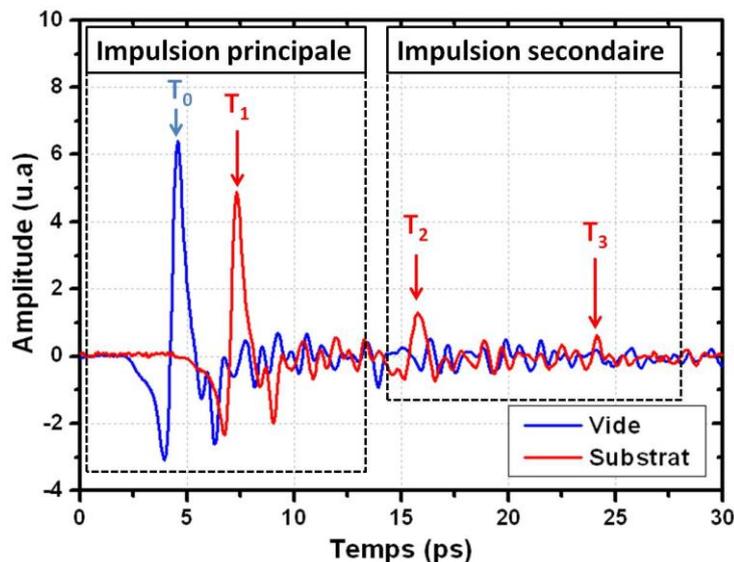


**Figure III.24 : Schéma illustrant le principe des mesures de l'échantillon (VO<sub>2</sub> + substrat) en utilisant la spectroscopie THz-TDS.**

### III.4.2.1. Observations dans le domaine temporel

Avant d'étudier directement les effets de la transition MIT du VO<sub>2</sub> dans le domaine fréquentiel, nous commençons par enregistrer sa réponse dans le domaine temporel.

En comparant une mesure temporelle THz-TDS réalisée à vide (transmission dans l'air) et une mesure réalisée avec un substrat de saphir nu (sans dépôt) (**Figure III.25**), on peut noter que le substrat a un impact non négligeable sur la transmission du signal THz et qu'il est donc important de le prendre en compte dans notre étude.



**Figure III.25 : Mesures THz-TDS dans le domaine temporel réalisées à vide (courbe bleue) et avec un substrat de saphir c de 520 μm d'épaisseur (courbe rouge).**

Le premier élément que l'on peut remarquer est le retard temporel  $T_1 - T_0$  qui existe entre l'instant où l'on observe la première impulsion dans la mesure à vide et la première impulsion observée pour le substrat. Ce retard entre ces deux impulsions principales est causé par la différence de chemin optique introduite par le substrat et peut être exprimé à l'aide de la relation **III.27** [Woj11].

$$T_1 - T_0 = \frac{(\tilde{n}_B - \tilde{n}_A)L_b}{c_0} \quad (\text{III.27})$$

avec :

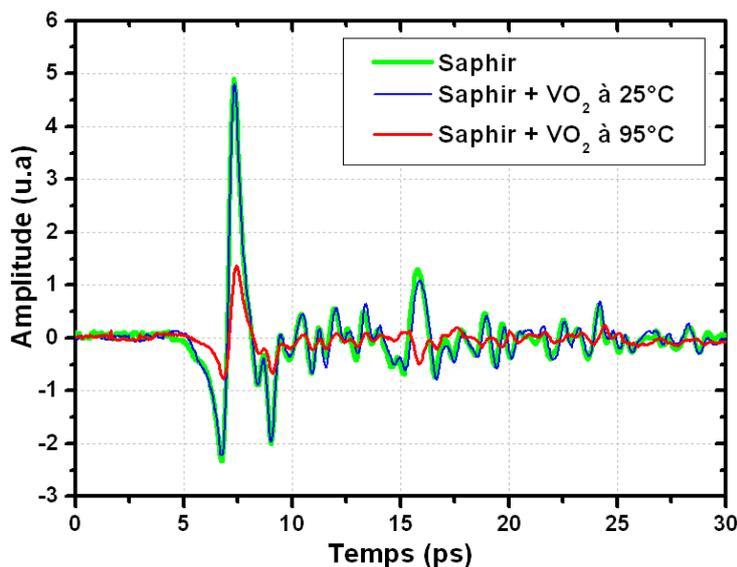
$\tilde{n}_A$  : indice de réfraction complexe de l'air ;

$\tilde{n}_B, L_B$  : indice de réfraction complexe et épaisseur du substrat de saphir.

Le second effet du substrat est de provoquer une diminution de l'amplitude de l'impulsion principale, d'environ 20 %, par rapport à celle enregistrée pour la mesure à vide. Cette différence d'amplitude peut être expliquée par l'atténuation du signal THz par le matériau, qui est directement proportionnelle à son épaisseur.

Le dernier élément que l'on peut observer sur ce graphique est l'apparition d'impulsions secondaires dans la mesure réalisée avec le substrat par rapport à la mesure de référence à vide. Ces impulsions correspondent aux échos de l'impulsion principale, dus aux réflexions secondaires du signal THz sur les surfaces de l'échantillon (effets Fabry-Pérot). Dans le cas où ces échos sont largement séparés de l'impulsion principale, on considère que le substrat de saphir c de 520  $\mu\text{m}$  d'épaisseur est un échantillon optiquement épais.

Sur la **Figure III.26** sont représentées les mesures dans le domaine temporel du saphir c ainsi que de l'échantillon complet (saphir c + film de VO<sub>2</sub>) à 25 et 95°C, qui nous permettent d'étudier la variation avec la température de la transmission THz d'un film de VO<sub>2</sub>, respectivement, à l'état isolant et à l'état métallique.



**Figure III.26** : Mesures THz-TDS dans le domaine temporel du substrat de saphir c de 520  $\mu\text{m}$  d'épaisseur (courbe verte), du film de VO<sub>2</sub> de 100 nm d'épaisseur

**déposé sur un substrat de saphir c de 520 μm d'épaisseur à 25°C (courbe bleue) et à 95°C (courbe rouge).**

On constate, tout d'abord, que le film de VO<sub>2</sub> n'engendre pas l'apparition d'impulsions supplémentaires dans le spectre temporel que se soit à l'état isolant (25°C) ou à l'état métallique (95°C). Cela ne signifie pas que le matériau ne présente pas d'effets de type Fabry-Pérot mais que les échos secondaires produits sont confondus/ inclus dans l'impulsion principale de l'ensemble substrat + film. À ce titre, on considère que le film de VO<sub>2</sub> est un matériau optiquement mince. Cela se confirme, lorsque l'on détermine le rapport entre l'épaisseur du film ( $\approx 100$  nm) et la longueur d'onde à 1 THz (300 μm) qui est par conséquent, de l'ordre de  $\lambda/3000$ .

Ensuite, on note que la mesure réalisée avec le film de VO<sub>2</sub> à 25°C ne diffère que très peu de celle du substrat seul montrant qu'à cette température, le film de VO<sub>2</sub> à l'état isolant n'a que très peu d'influence sur la transmission de l'impulsion THz. Au contraire, à 95°C, lorsque le VO<sub>2</sub> est à l'état métallique, la mesure temporelle THz-TDS montre des variations beaucoup plus importantes au niveau de l'amplitude du signal. On constate que l'amplitude de l'impulsion principale a largement diminué et que le deuxième écho a totalement disparu. Ce phénomène traduit une diminution de l'aptitude du matériau à transmettre le signal térahertz. On peut également observer une diminution de l'amplitude du premier écho mais l'élément intéressant dans cet écho est qu'il présente une amplitude négative, ce qui met en évidence un changement de phase du signal transmis.

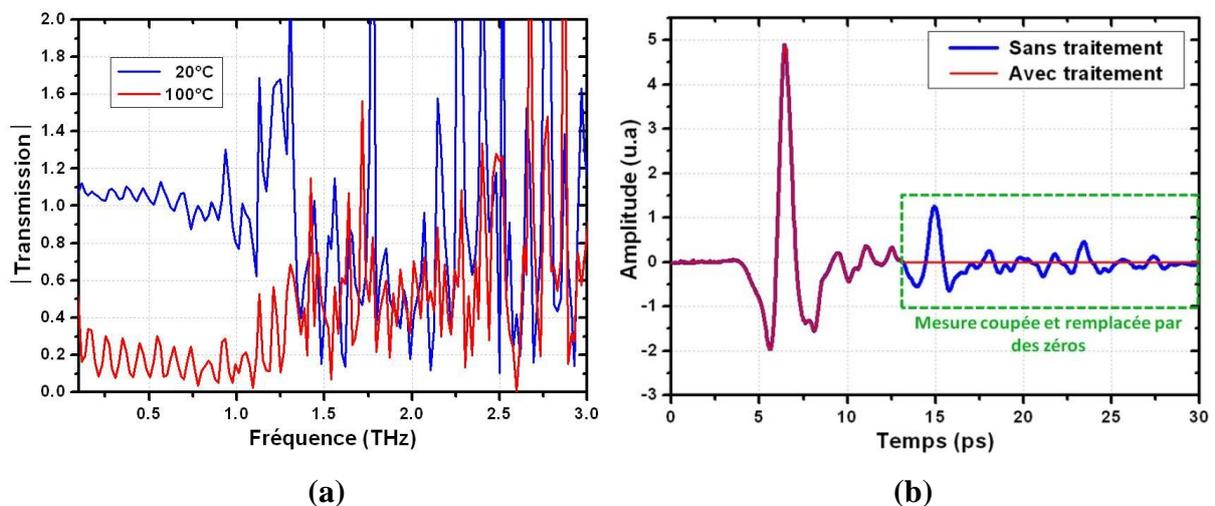
À travers ces premiers éléments (variations d'amplitude, changement de phase du signal temporel transmis) observés directement dans le domaine temporel, on peut donc affirmer avec certitude que la transition MIT des films de VO<sub>2</sub> modifie la propagation des impulsions THz et en l'occurrence, qu'elle induit un effet notable sur leur transmission.

#### **III.4.2.2. Transposition dans le domaine fréquentiel THz**

Après s'être intéressé au domaine temporel, on peut maintenant transposer ces résultats préliminaires dans le domaine fréquentiel (en utilisant le traitement des données temporelles par transformée de Fourier – FFT) et étudier plus en détail l'effet de la transition MIT sur la modification de la transmission THz, comme l'ont fait d'autres équipes de recherche en utilisant également la spectroscopie THz-TDS [Jep06]. Nous allons, notamment, nous concentrer sur les variations en amplitude induites par le matériau VO<sub>2</sub> lors de la transition isolant-métal.

La **Figure III.27a** montre l'amplitude de la transmission du film de VO<sub>2</sub> déterminée à partir des données brutes (sans traitement particulier) et sur l'ensemble de la plage maximale théorique (0.1 – 3 THz) que l'on peut généralement atteindre avec la spectroscopie THz-TDS.

On constate sur les courbes de la **Figure III.27a** que les résultats ne sont pas exploitables en l'état sur l'ensemble de la plage de fréquences présentée (0.1 – 3 THz). Au-dessus d'environ 1 THz, les mesures sont trop bruitées en raison des conditions de mesures (notamment, la présence de l'humidité ambiante) et du substrat de saphir qui absorbent les ondes situées au-delà de 1 THz. Ainsi, pour la suite de notre étude, nous allons focaliser notre attention sur la bande de fréquences 0.1 – 1 THz.

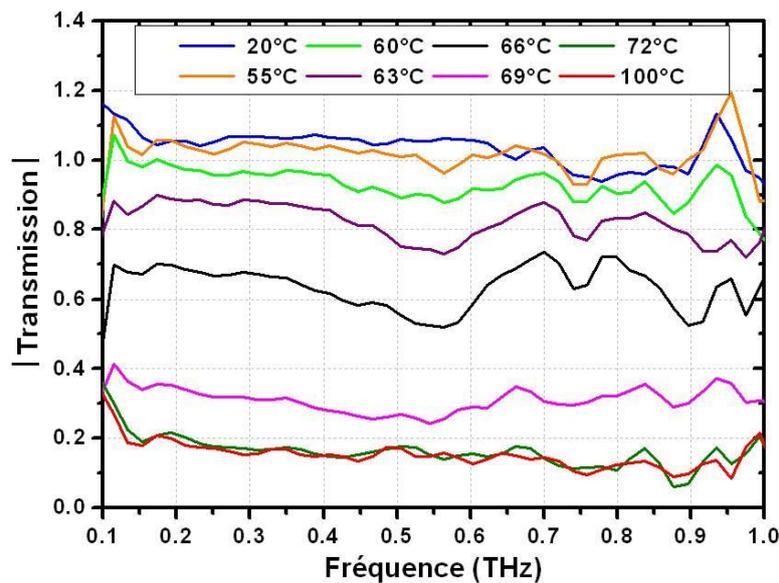


**Figure III.27 : a. Mesures de transmission THz obtenues par FFT à partir des données temporelles sans traitement sur la bande de fréquences 0 – 3 THz, du film de VO<sub>2</sub> de 100 nm d'épaisseur, réalisées à 20°C (courbe bleue) et à 100°C (courbe rouge) et b. graphique expliquant le traitement de données de la mesure temporelle du substrat (courbe bleue sans traitement) et (courbe rouge avec traitement) afin d'améliorer le traitement fréquentiel des données.**

Néanmoins, on peut remarquer que même dans cette partie du spectre, la mesure est perturbée par un phénomène d'oscillations lié à l'effet Fabry-Pérot du substrat. Ne provenant pas directement du film de VO<sub>2</sub>, nous avons choisi de négliger ce phénomène en effectuant un traitement informatique des mesures dans le domaine temporel. Pour cela, comme montré sur la **Figure III.27b**, nous avons, tout d'abord, "coupé" la mesure juste avant l'apparition du premier écho. Ensuite, afin de lisser les courbes obtenues, nous avons choisi d'utiliser une méthode souvent rencontrée dans la littérature qui consiste à remplacer les données supprimées par des zéros artificiels.

En utilisant cette technique de traitement (sans altération des données principales en amplitude), nous pouvons plus facilement mettre en évidence l'effet de la transition MIT du VO<sub>2</sub> sur l'amplitude des signaux THz transmis. Ainsi, sur la **Figure III.28** sont représentées les courbes de la transmission THz d'un film de VO<sub>2</sub> pour différentes températures, comprises entre 20 et 100°C.

À température ambiante (20°C), la transmission est très élevée sur toute la bande de fréquences THz étudiée, caractéristique d'un état isolant du matériau. Pour de nombreux points de fréquences, on peut même constater que la transmission est supérieure à 1 mais cela est lié aux imprécisions des mesures réalisées. Mises à part les conditions de mesures (fluctuation de l'énergie du laser, humidité présente dans l'air), une partie de ces imprécisions sont probablement causées par les différences d'épaisseur entre le substrat de référence et le substrat sur lequel est déposé le film de VO<sub>2</sub> dont les effets sont accentués par la faible épaisseur de ce dernier, en comparaison de l'épaisseur des substrats.

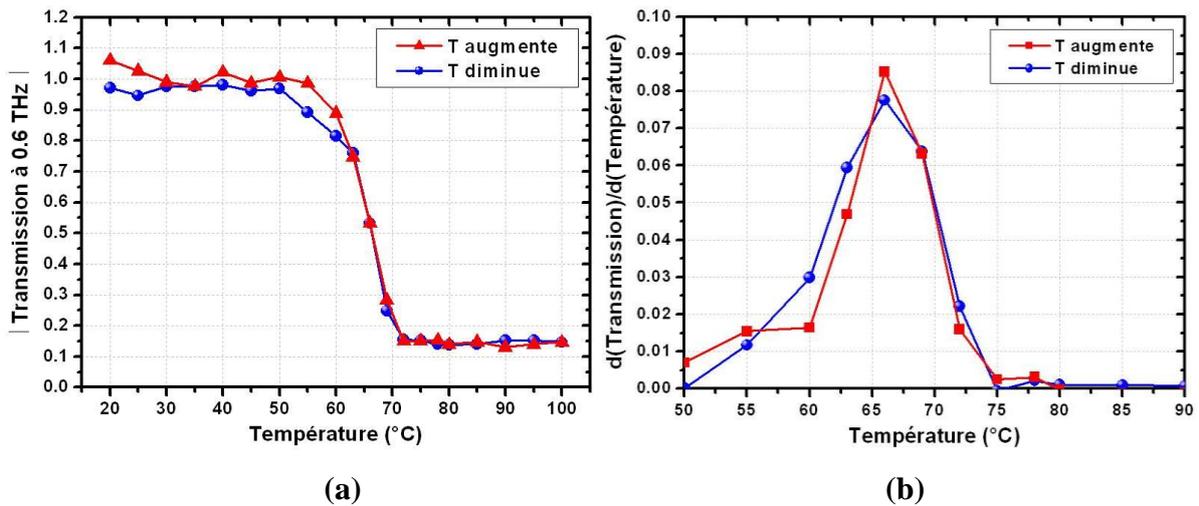


**Figure III.28 : L'évolution avec la température de l'amplitude de la transmission THz d'un film de VO<sub>2</sub> de 100 nm d'épaisseur déposé sur un substrat de saphir c de 520 µm d'épaisseur.**

En revanche, à 95°C, ce problème ne s'observe plus car la transmission du film de VO<sub>2</sub> est beaucoup plus faible et ne dépasse pas 20 %, sur l'ensemble de la plage de fréquences considérée, soit une diminution de l'ordre de 80 % entre l'état isolant et l'état métallique. À cette température, le film de VO<sub>2</sub> étant à l'état métallique, il doit, en réalité, réfléchir ou absorber une grande partie des ondes THz ce qui explique cette diminution de l'amplitude de la transmission THz. En observant l'évolution de la transmission entre ces deux températures

extrêmes, on peut également remarquer que la variation en amplitude du signal THz transmis se produit essentiellement entre 55 et 72°C où l'on observe, respectivement, une transmission proche de celle à 20°C et à 100°C.

Pour étudier le phénomène d'hystérésis de la transition MIT du VO<sub>2</sub> dans cette gamme de fréquences, nous avons tracé sur la **Figure III.29a** une courbe qui montre l'évolution de l'amplitude de la transmission à 0.6 THz durant un cycle de montée-descente en température de l'échantillon. En observant cette courbe, lorsque la température augmente (courbe rouge), on retrouve une transmission (entre 20 et 55°C) qui est très légèrement supérieure à 1 et qui montre, en plus, une évolution assez instable ce qui confirme une certaine imprécision des mesures lorsque le film de VO<sub>2</sub> est à l'état isolant (fortement transparent). À l'opposé, lorsque l'on étudie la plage de température située au-dessus de 70°C (où le film de VO<sub>2</sub> présente un caractère métallique), ces problèmes d'imprécision ne s'observent plus, avec une transmission qui est assez faible mais visiblement constante.

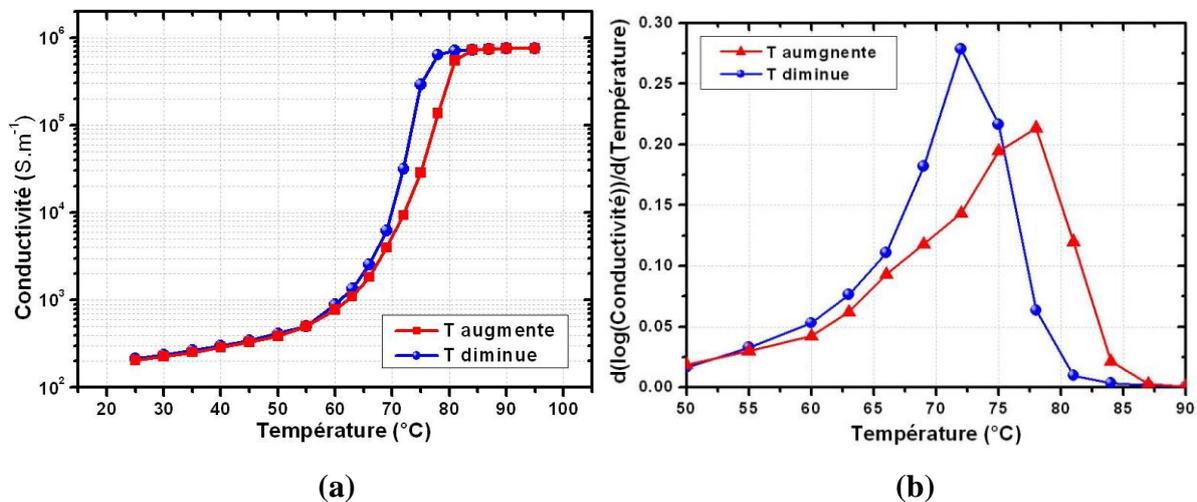


**Figure III.29 : a. Evolution en température de l'amplitude de la transmission THz à 0.6 THz pour un film de VO<sub>2</sub> déposé sur saphir c, respectivement, de 100 nm et 520 µm d'épaisseur, et b. variation du gradient de la transmission THz avec la température.**

Un élément auquel on peut s'intéresser sur la **Figure III.29a** est la température où se produit la transition de l'état isolant vers l'état métallique qui semble être située autour de 65°C. Or, lorsque la température diminue, les données montrent que la transition inverse se produit à la même température, ce qui indiquerait une absence de phénomène d'hystérésis. Cela se confirme lorsque l'on trace les variations de transmission autour de chaque

température (courbes sur la **Figure III.29b**) où l'on constate que la température présentant une variation maximale de transmission (que l'on peut considérer comme la température de transition MIT) est de l'ordre de 66°C lors de la montée et de la descente en température.

Pour le même échantillon, nous avons mesuré l'évolution avec la température de sa conductivité DC en utilisant la technique de mesure par quatre pointes (courbes sur la **Figure III.30a** et **b**). Pour ce type de mesure, nous trouvons une température de transition MIT supérieure à 70°C ainsi que la présence évidente d'un cycle hystérésis. Néanmoins, la largeur de ce dernier semble moins importante que pour d'autres échantillons ce qui pourrait expliquer que dans le domaine THz, on n'observe pas de cycle d'hystérésis.



**Figure III.30 : a. Evolution avec la température de la conductivité DC d'un film de VO<sub>2</sub> (100 nm) déposé sur saphir c (520 μm) et b. variation de conductivité autour de chaque température.**

Par conséquent, nous retenons, pour le domaine des fréquences THz, une diminution de la température de transition MIT ainsi que la disparition du cycle d'hystérésis. Ces observations restent, toutefois, à confirmer par des mesures additionnelles sur une population plus grande d'échantillons et en respectant le même protocole de mesure (conditions et temps de mesure, type d'élément Peltier, etc.).

#### III.4.2.3. Conductivité THz des films minces de VO<sub>2</sub>

Tout comme dans le domaine DC, les différentes variations de la transmission de l'échantillon que l'on peut observer dans le domaine THz, lors de la transition MIT, peuvent

s'expliquer par une simple variation avec la température de la conductivité du film de VO<sub>2</sub> dans ce domaine de fréquences.

Dans ce contexte, nous avons voulu déterminer la conductivité THz des films de VO<sub>2</sub>, qui nous sera utile dans la suite de nos recherches. Pour cela, nous avons choisi d'utiliser l'équation **III.28** qui a souvent été employée pour l'étude de films métalliques aux fréquences THz [**Lam08**, **Wal07**] mais également dans le cas de films de VO<sub>2</sub> [**Zhu12**, **Coc10**].

$$T_{\text{film}}(\omega) = \frac{\tilde{n}_{\text{air}} + \tilde{n}_{\text{substrat}}}{\tilde{n}_{\text{air}} + \tilde{n}_{\text{substrat}} + \sigma_{\text{film}}(\omega)L_{\text{film}}Z_0} \quad (\text{III. 28})$$

avec :

$\tilde{n}_{\text{air}}$  : indice de réfraction de l'air ;

$\tilde{n}_{\text{substrat}}$  : indice de réfraction du substrat ;

$L_{\text{film}}$  : épaisseur du film ;

$Z_0$  : impédance du vide (376,75 Ω).

Dans cette relation, le membre de gauche ( $T_{\text{film}}$ ) correspond tout simplement à la transmission déterminée de façon expérimentale (relation **III.18**) alors que le membre de droite est une simplification des relations **III.19** – **III.26** qui permet de déterminer la transmission théorique du film.

Pour calculer la conductivité THz des couches de VO<sub>2</sub>, il nous faut, tout d'abord, déterminer l'indice de réfraction du saphir  $c$  qui intervient dans la relation **III.28**. Dans ce cadre, on peut utiliser les relations **III.29** et **III.30** qui permettent de déterminer, respectivement, la partie réelle ( $n_{\text{substrat}}$ ) et la partie imaginaire ( $k_{\text{substrat}}$ ) de l'indice de réfraction du substrat, dont le détail du calcul est présenté dans l'**Annexe 4**.

$$n_{\text{substrat}}(\omega) = \frac{\phi(T_{\text{substrat}}(\omega))}{\omega L_{\text{substrat}}} + 1 \quad (\text{III. 29})$$

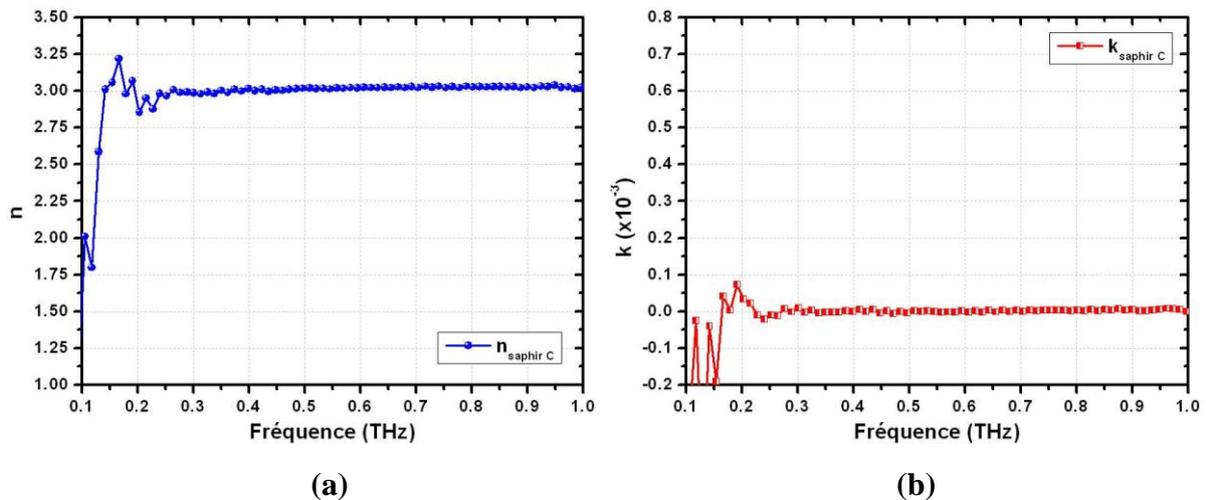
$$k_{\text{substrat}}(\omega) = \frac{-c}{\omega L_{\text{substrat}}} \ln \left( \frac{(1 + n_{\text{substrat}}(\omega))^2}{4n_{\text{substrat}}(\omega)} |T_{\text{substrat}}(\omega)| \right) \quad (\text{III. 30})$$

avec :

$L_{\text{substrat}}$  : l'épaisseur du substrat ;

$|T_{\text{substrat}}(\omega)|$  et  $\phi(T_{\text{substrat}}(\omega))$  qui sont, respectivement, l'amplitude et la phase de la transmission du substrat mesurées à l'aide de la spectroscopie THz-TDS.

Sur la **Figure III.31** sont ainsi représentées la partie réelle et la partie imaginaire de l'indice de réfraction d'un substrat de saphir c de 520  $\mu\text{m}$ . Avant tout, on constate que la partie réelle est largement supérieure à sa partie imaginaire ( $k_{\text{saphir}}$ ) avec des valeurs qui sont situées, respectivement, autour de 3 et en dessous de  $10^{-3}$ . Par conséquent, ces résultats confirment que le substrat de saphir c étudié est un matériau fortement transparent dans le domaine de mesure en plus d'être un matériau optiquement épais (échos séparés de l'impulsion principale). Ces conditions nous permettent d'utiliser aisément les relations **III.29** et **III.30**. Nous pouvons également considérer que l'indice de réfraction complexe du saphir c ( $\tilde{n}_{\text{saphir}}$ ) est purement réel et donc égal à sa partie réelle,  $n_{\text{saphir}}$ .



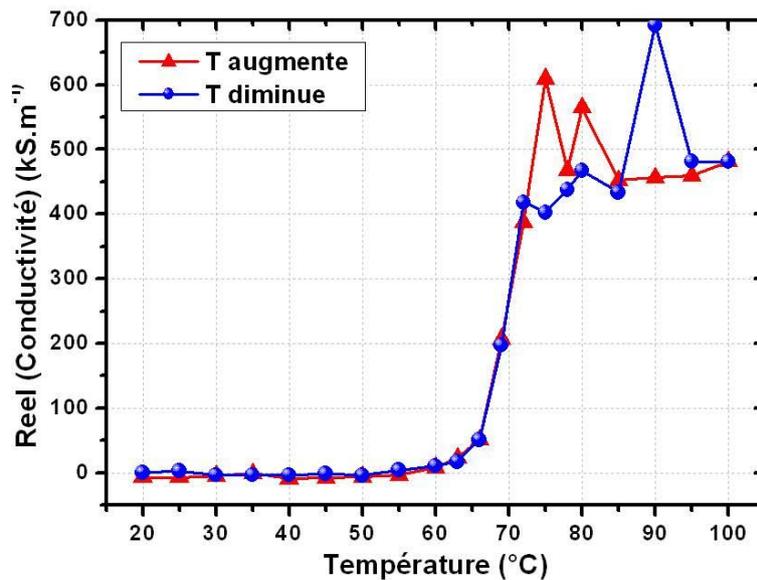
**Figure III.31 : Indice de réfraction complexe d'un substrat du saphir c de 520  $\mu\text{m}$  avec en (a) la partie réelle  $n_{\text{saphir}}$  et en (b) la partie imaginaire  $k_{\text{saphir}}$ .**

Ainsi, si l'on observe l'évolution de  $n_{\text{saphir}}$  sur la plage de fréquences étudiée, on constate que cet indice reste quasiment constant autour de 3 au dessus de 0.20 THz. En comparant cette valeur à la littérature, on s'aperçoit qu'elle est cohérente avec l'indice de réfraction du saphir c dans le domaine de l'optique ( $n = 1.75$ ) et des micro-ondes ( $n = 3.2$ ). De plus, ce résultat est aussi en accord avec les valeurs proposées par une autre équipe de recherche [Kim11]. Dans la zone située en-dessous de 0.20 THz, on observe des variations plus incertaines qui sont causées par les erreurs de précision des mesures THz-TDS.

En intégrant dans la relation **III.28** cette valeur d'indice de réfraction du substrat de saphir, nous pouvons, ensuite, remonter aux valeurs de conductivité du film de VO<sub>2</sub> pour chaque fréquence et température. Ainsi, à titre d'exemple, sur la **Figure III.32** est tracée

l'évolution avec la température de la partie réelle de la conductivité du film de VO<sub>2</sub> à la fréquence de 0.6 THz, lors d'un cycle de montée-descente en température.

Nous observons qu'entre 20°C et 55°C, la conductivité calculée montre parfois des valeurs négatives. Ce problème est la conséquence de l'imprécision relative des mesures THz réalisées. De plus, il nous faut rappeler que la relation **III.28**, utilisée pour déterminer la conductivité du film, est spécifique aux films métalliques. Or, à ces températures, le film de VO<sub>2</sub> est à l'état isolant ce qui augmente encore plus l'incertitude des valeurs obtenues. Par conséquent, si nous voulons déterminer une valeur de conductivité plus précise à l'état isolant, il nous faudrait utiliser des relations plus complexes, spécifiques aux films isolants. Toutefois, étant donné le faible impact du film de VO<sub>2</sub> à l'état isolant sur les ondes THz incidentes, nous avons préféré nous concentrer sur la détermination de la conductivité à l'état métallique pour laquelle la relation **III.28** est plus adaptée, comme nous l'avons montré dans l'**Annexe 4**. Néanmoins, même à l'état métallique du VO<sub>2</sub>, les valeurs de conductivité relevées à 0.6 THz présentent des variations assez importantes car les erreurs de mesures restent présentes.



**Figure III.32 : Evolution de la partie réelle de la conductivité THz, à 0.6 THz, d'un film de VO<sub>2</sub> de 100 nm déposé sur un substrat de saphir c de 520 μm lors d'un cycle de montée-descente en température.**

Ainsi, que se soit pour l'état isolant ou l'état métallique du VO<sub>2</sub>, il nous faut considérer ces valeurs comme une première approximation nous permettant d'une part, d'observer l'évolution de la conductivité THz en fonction de la température et d'autre part, d'estimer les valeurs moyennes de conductivité du matériau. Ainsi, sur la **Figure III.32**, on peut noter que la transition MIT s'accompagne d'une variation assez importante de la conductivité THz

expliquant les variations de transmission. De plus, si on compare les valeurs de conductivité THz (480 kS.m<sup>-1</sup> à 95°C) aux valeurs obtenues dans le domaine DC (750 kS.m<sup>-1</sup> à 95°C), on note une diminution de la conductivité lorsque la fréquence augmente ce qui semble cohérent avec des observations antérieures présentées dans la littérature [Coc10].

En résumé de cette étude sur les caractéristiques des films minces de VO<sub>2</sub> aux fréquences THz, réalisée en utilisant la spectroscopie THz-TDS, nous avons mis en évidence le phénomène de transition MIT du matériau VO<sub>2</sub> dans le domaine THz. Ce phénomène provoque des variations assez importantes au niveau de l'amplitude de la transmission du signal THz incident au matériau. Plus précisément, le passage de l'état isolant vers l'état métallique du film de VO<sub>2</sub> s'accompagne d'une forte diminution de l'amplitude de la transmission qui passe d'une transmission quasi-parfaite, à température ambiante, à une transmission de l'ordre de 20 %, pour des températures supérieures à la température de transition MIT. Il nous faut préciser que les effets de la transition MIT dans la bande de fréquences étudiée (0.1 – 1 THz) s'observent à une température de 66°C alors que les effets sur la conductivité DC s'observent à une température supérieure à 70°C. En nous donnant accès aux informations sur l'amplitude et sur la phase de la transmission, la spectroscopie THz-TDS nous permet également, de remonter à la conductivité des films minces de VO<sub>2</sub>. Même si les valeurs obtenues restent approximatives en raison des erreurs de mesures, cela nous permet de confirmer que les variations de transmission THz sont une conséquence du changement de conductivité THz du film lors de sa transition MIT. En conclusion de cette étude, on pourrait donc utiliser le matériau VO<sub>2</sub> à l'état brut pour la réalisation d'atténuateurs de signaux THz. Toutefois, pour des composants avec un comportement plus complexe, le matériau VO<sub>2</sub> sera co-intégré avec la structure de base métallique d'un dispositif de type métamatériau.

### **III.5. Etude de métamatériaux THz planaires intégrant du VO<sub>2</sub>**

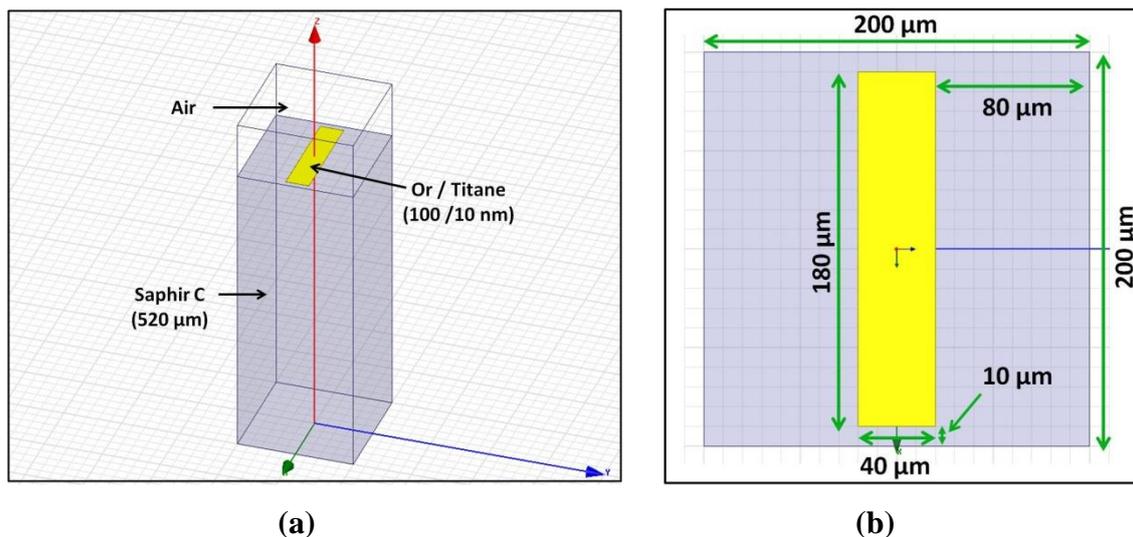
Comme mentionné auparavant, les fonctions d'agilité que nous visons sont basées sur l'intégration, dans la structure de composants THz, du matériau VO<sub>2</sub> présentant une transition de phase réversible isolant-métal (MIT). Ainsi, nous avons conçu et réalisé des métamatériaux accordables dans le domaine THz intégrant une couche mince (ou des motifs de dioxyde de vanadium) dont les propriétés électriques varient lors de sa transition isolant-métal initiée en modifiant *la température* ou par *l'application d'une tension*. Nous avons étudié plusieurs

types de topologie pour la structure de ces dispositifs : composants de type Cut-Wire ou intégration hybride avec des résonateurs LC. Leur conception, leur réalisation et leurs propriétés accordables dans le domaine THz seront détaillées dans les sections suivantes.

### III.5.1. Métamatériaux THz de type "Cut-Wire-Grid"

La première structure de type métamatériau que nous proposons d'étudier est un métamatériau planaire de type Cut-Wire-Grid, dont la cellule unitaire est représentée sur la **Figure III.33**.

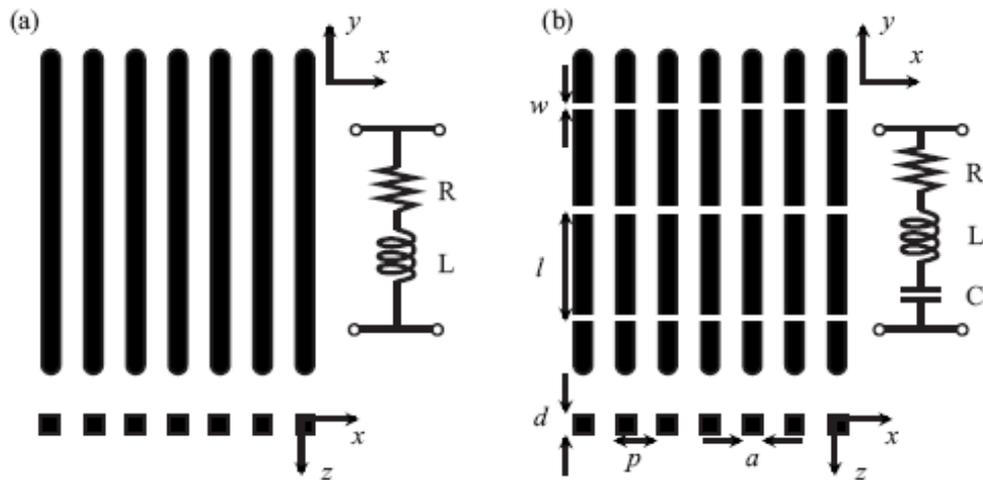
Tout comme pour les métamatériaux Wire-Grid, cette structure est composée de lignes métalliques parallèles et périodiques qui sont déposées sur un substrat. En revanche, contrairement aux métamatériaux de type Wire-Grid classiques, les lignes formant les structures de type Cut-Wire-Grid sont coupées de façon périodique par des gaps d'air de dimensions constantes.



**Figure III.33 : Cellule unitaire du métamatériau de type Cut-Wire-Grid proposé avec une vue 3D en (a) et une vue de dessus en (b).**

Comme nous l'avons mentionné auparavant, les caractéristiques de la réponse des métamatériaux et, notamment, leur fréquence de fonctionnement, sont fonction des dimensions des structures réalisées. De manière générale, les dimensions des fils, leur espacement et la dimension des coupures peuvent varier entre la dizaine et les centaines de microns, en fonction de la bande de fréquences THz ciblée. En l'occurrence, pour un fonctionnement à 0.3 THz, les dimensions de la cellule unitaire ont été fixées à 200 x 200 µm<sup>2</sup>, la largeur des lignes métalliques est de 40 µm et les gaps d'air mesurent 20 µm.

En parcourant la littérature dans le domaine et, en particulier, l'étude de Takano et al. [Tak10], nous avons remarqué le potentiel d'utilisation pour ce type de structure Cut-Wire-Grid. Nous pouvons avant tout rappeler que les métamatériaux de type Wire-Grid, comme celui illustré sur la **Figure III.34a**, sont composés par un agencement périodique de fils métalliques fins continus (grille). Cet agencement permet d'obtenir une fréquence plasma plus faible, en l'occurrence, dans le domaine THz et par conséquent, l'observation d'une permittivité négative pour le composant global.

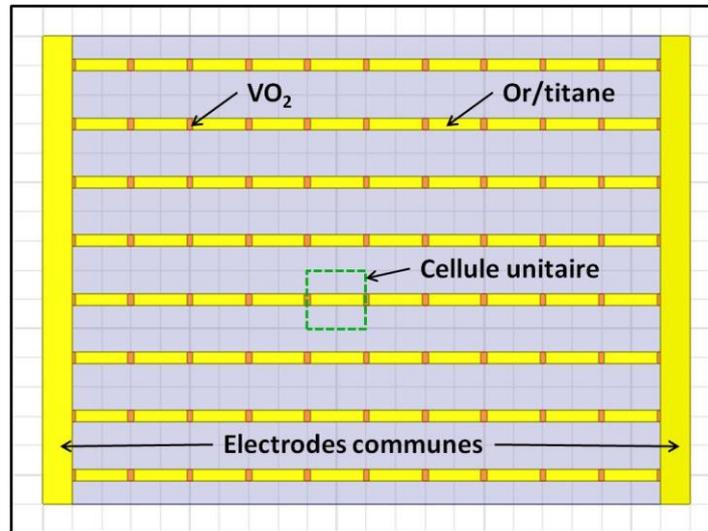


**Figure III.34.** Diagramme d'une structure de métamatériaux de type grille (a) et de type grille coupée (b) avec la représentation des circuits équivalents [Tak10].

L'insertion de coupures périodiques dans cette structure, comme pour les métamatériaux de type Cut-Wire-Grid (**Figure III.34b**), permet d'introduire un effet capacitif dans le métamatériau, effet qui modifie drastiquement sa réponse électromagnétique. Cet effet qui s'apparente à une transition abrupte d'un état métallique vers un état isolant pour des fréquences inférieures à la fréquence de résonance  $1/2\pi(LC)^{1/2}$  permet alors d'observer, dans le métamatériau "Cut-Wire-Grid", une permittivité positive en-dessous de la fréquence de résonance. De façon plus concrète, en passant d'un métamatériau "Wire-Grid" à un métamatériau "Cut-Wire-Grid", on passe d'une structure polarisante à une structure résonante.

Dans ce contexte, nos recherches visent à initier ce changement radical d'une manière dynamique (et continue) en insérant des motifs de VO<sub>2</sub> dans les gaps d'air. Ce concept d'intégration est illustré sur la **Figure III.35**. Ainsi, lorsque le VO<sub>2</sub> est à l'état semi-conducteur (isolant), les gaps des structures de type Cut-Wire-Grid remplis par le VO<sub>2</sub> sont transparents devant le signal THz. Par contre, en faisant transiter le VO<sub>2</sub> vers son état

métallique, les gaps sont perçus comme fermés par le signal THz incident et le métamatériau fonctionne comme un polariseur. Le signal THz est ainsi modulé par le changement de phase du matériau VO<sub>2</sub>.

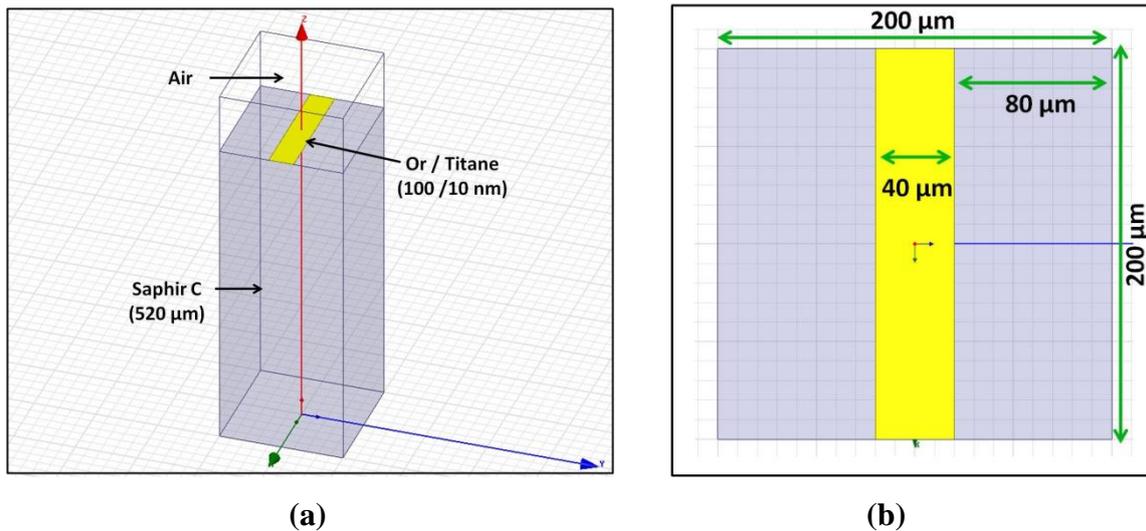


**Figure III.35 : Vue schématique du dessus d'un métamatériau de type Cut-Wire-Grid où les deux électrodes communes permettent d'appliquer une tension aux bornes du dispositif et ainsi, de déclencher électriquement la transition MIT des motifs de VO<sub>2</sub>.**

Dans un premier temps, on peut imaginer initier cette modulation de signal THz par un déclenchement thermique de la transition MIT. Mais, par la suite, en reliant les différentes lignes métalliques qui constituent le métamatériau par deux électrodes communes (comme le montre la **Figure III.35**), on pourra envisager d'utiliser une commande électrique pour déclencher la transformation isolant-métal des motifs de VO<sub>2</sub>.

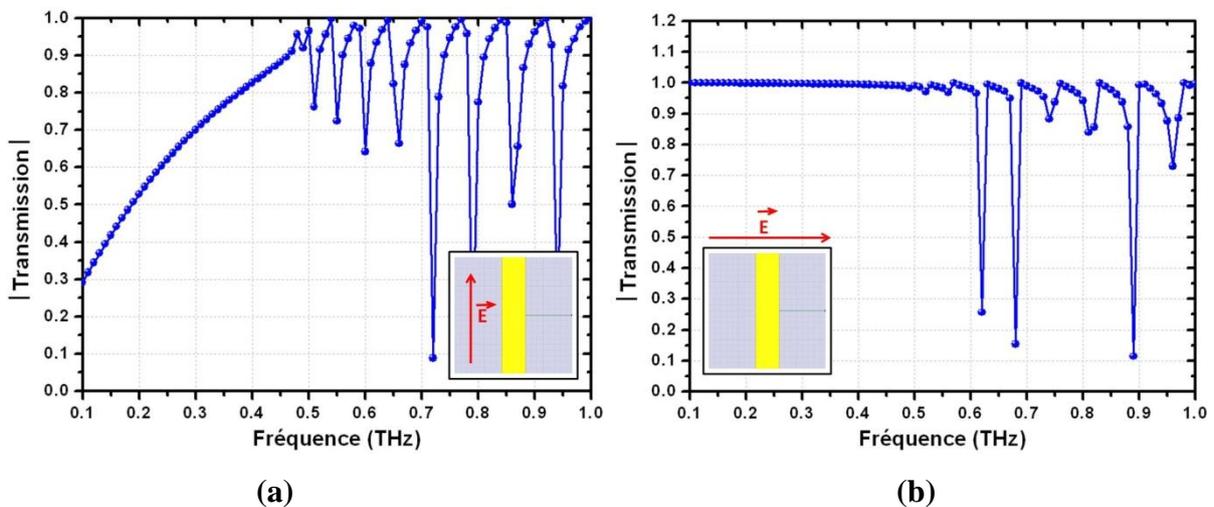
### III.5.1.1. Simulations électromagnétiques des métamatériaux Cut-Wire-Grid

Dans un premier temps, nous avons étudié la différence de réponse THz entre le métamatériau Cut-Wire-Grid proposé dans le paragraphe précédent et une structure d'un métamatériau de type Wire-Grid équivalente qui est représentée sur la **Figure III.36**. Pour cela, nous avons réalisé des simulations électromagnétiques à l'aide du logiciel HFSS dans lequel la périodicité de la structure est définie par des conditions de type CCE/ CCM (Court Circuit Electrique/ Court-circuit magnétique, cf. **Annexe 3**). De plus, on peut préciser que la propagation s'effectue de façon orthogonale au plan du métamatériau et que le champ électrique est orienté soit de façon parallèle soit de façon perpendiculaire aux lignes métalliques.



**Figure III.36 : Cellule unitaire d'un métamatériau de type Wire-Grid équivalent au métamatériau de type Cut-Wire-Grid décrit précédemment, avec une vue 3D en (a) et une vue de dessus en (b).**

Tout d'abord, les réponses simulées en transmission THz du métamatériau constitué de lignes métalliques continues (type Wire-Grid) sont présentées sur la **Figure III.37**.

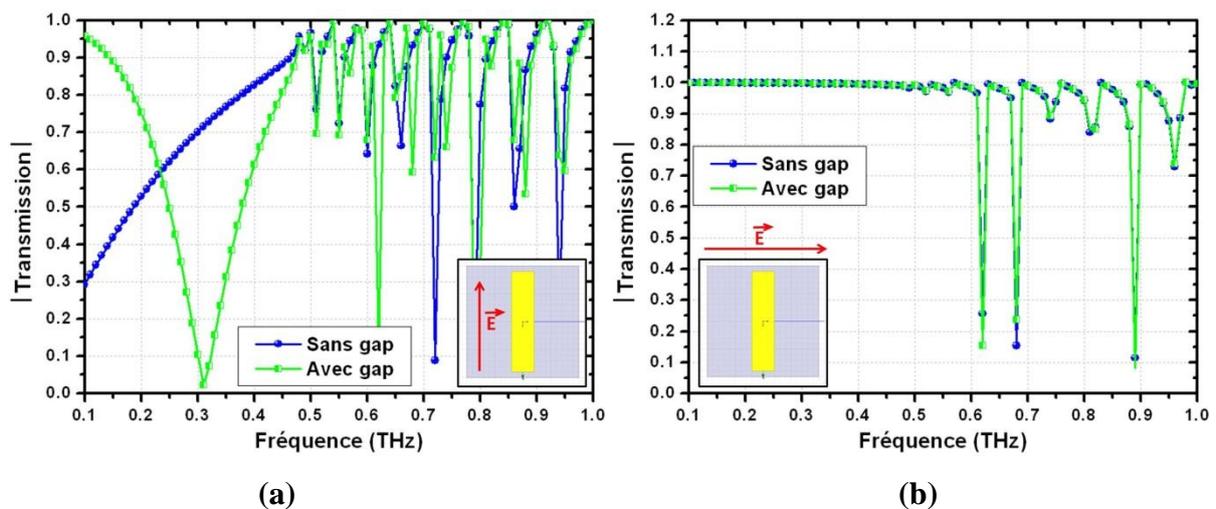


**Figure III.37 : Réponses en transmission obtenues par simulation électromagnétique du métamatériau de type "Wire-Grid" pour une polarisation du champ électrique parallèle (a) et perpendiculaire (b) à l'axe des lignes.**

Nous observons qu'à 0.10 THz, la transmission du dispositif est relativement faible (30 %) lorsque le champ électrique est parallèle à l'axe des lignes métalliques mais au contraire, lorsque le champ électrique est perpendiculaire à l'axe de ces lignes, la transmission est beaucoup plus élevée, approchant le maximum de transmission. Avec l'augmentation de la

fréquence, la transmission pour la polarisation perpendiculaire reste constante tandis que la transmission pour la polarisation parallèle augmente progressivement jusqu'à environ 0.50 THz. À partir de cette fréquence, on observe l'apparition de lobes de résonance qui doivent correspondre à la fréquence où la partie réelle de la permittivité du métamatériau devient positive, (autrement-dit à la fréquence plasma du dispositif). Au-dessus de cette fréquence de 0.5 THz, il faut alors considérer le métamatériau comme un diélectrique, ce qui explique la présence de ces lobes de résonance périodiques. En dessous de cette fréquence de 0.5 THz, le réseau de lignes peut être vu comme un polariseur dont les effets augmentent lorsque la fréquence diminue (et s'éloigne ainsi, de la fréquence plasma).

De la même manière, nous avons étudié l'effet produit par l'introduction des gaps d'air dans la structure du métamatériau Wire-Grid d'origine. Ainsi, sur la **Figure III.38**, nous avons rajouté les réponses fréquentielles THz d'un métamatériau avec une structure de type Cut-Wire-Grid, réalisée en introduisant des coupures périodiques de 20  $\mu\text{m}$ , espacées de 200  $\mu\text{m}$ , dans les lignes continues de la structure Wire-Grid (**Figure III.36**).

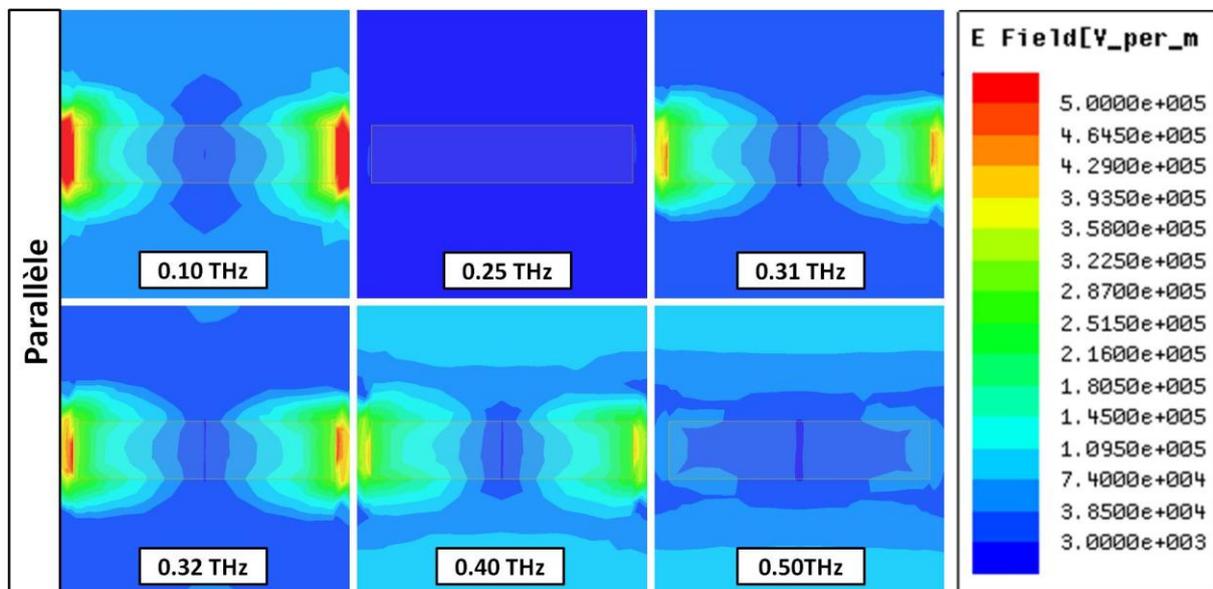


**Figure III.38 : Comparaison entre les réponses en transmission obtenues par simulation électromagnétique du métamatériau "Wire-Grid" (courbes bleues) et du métamatériau "Cut-Wire-Grid" (courbes vertes) pour une polarisation du champ électrique parallèle (a) et perpendiculaire (b) à l'axe des lignes.**

En comparant les transmissions des deux métamatériaux, on s'aperçoit que la transmission correspondant au métamatériau Cut-Wire-Grid est marquée par la présence d'un fort pic d'absorption centré à une fréquence de 0.31 THz, où la transmission devient pratiquement nulle, dans le cas de la polarisation parallèle. Ce pic correspond à une résonance

de type LC (somme des effets selfiques et capacitifs résultant, respectivement, des lignes métalliques et des gaps d'air). En revanche, pour la polarisation perpendiculaire, la transmission du métamatériau reste identique à celle du métamatériau à lignes continues. En réalité, il doit également être possible d'observer l'apparition d'un pic de résonance pour cette polarisation que ce soit pour la structure présentant des gaps d'air ou la structure d'origine. Mais les dimensions de la structure suivant cette direction du champ électrique font que cet effet se produit en dehors du domaine de fréquences examiné.

Pour conclure cette étude sur les différences entre la structure à gap d'air et la structure à lignes continues, on peut s'intéresser à la distribution (en fonction de la fréquence) de l'amplitude du champ électrique, dans une cellule unitaire du métamatériau de type "Cut-Wire-Grid", en se concentrant sur la polarisation parallèle (**Figure III.39**). De plus, nous nous focalisons plus particulièrement dans la zone de fréquences située en dessous 0.5 THz puisque cette fréquence correspond à la fréquence plasma des deux structures au-dessus de laquelle, elles acquièrent, toutes les deux, le comportement d'un diélectrique avec des phénomènes de résonance périodiques.



**Figure III.39 : Distribution du champ électrique dans une cellule unitaire du métamatériau de type "Cut-Wire-Grid" pour différentes fréquences et une polarisation parallèle de l'onde électrique incidente.**

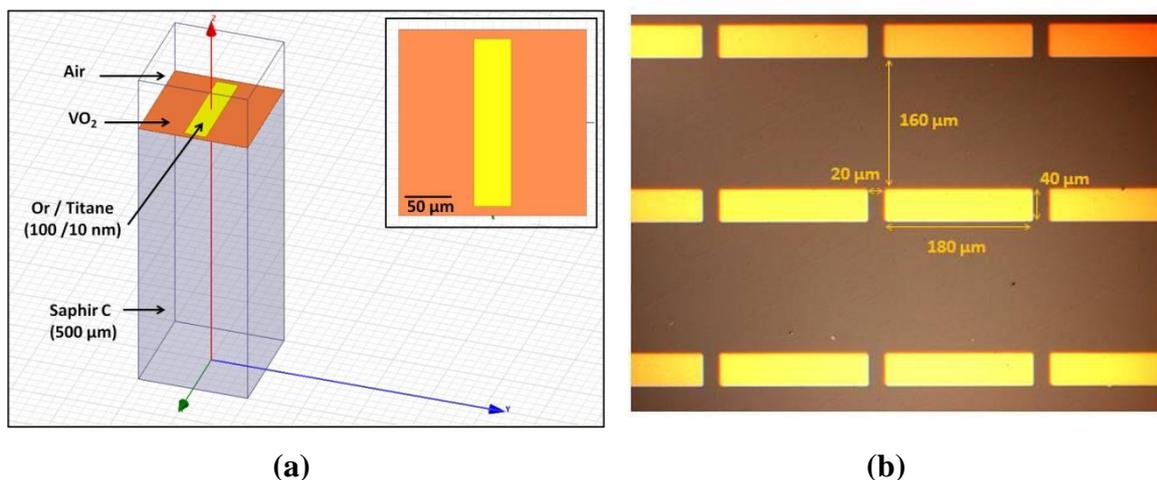
L'observation de la distribution du champ électrique nous permet de visualiser l'effet de résonance de la structure que l'on repère par l'augmentation du champ électrique dans les gaps d'air. On observe que ces effets de résonance sont présents à pratiquement toutes les

fréquences autour de la résonance ( $\sim 0.3$  THz) alors que la longueur d'onde (autour de 0.9 mm) est beaucoup plus grande que la longueur du gap ( $20 \mu\text{m}$ ). D'après Takano et al [Tak10], ce comportement pourrait être à rapprocher de celui d'un guide d'onde métallique à plans parallèles.

Ces observations sur la distribution du champ électrique dans la structure montrant une forte concentration du champ électrique dans les gaps sous-longueur d'onde permettent ainsi, d'envisager des applications extrêmement intéressantes des métamatériaux "Cut-Wire-Grid" comme, par exemple, la réalisation de capteurs très sensibles ou de composants pour l'imagerie THz à forte résolution.

### III.5.1.2. Réalisation et caractérisation d'un métamatériau à structure de type Cut-Wire-Grid intégrant un film mince de VO<sub>2</sub>

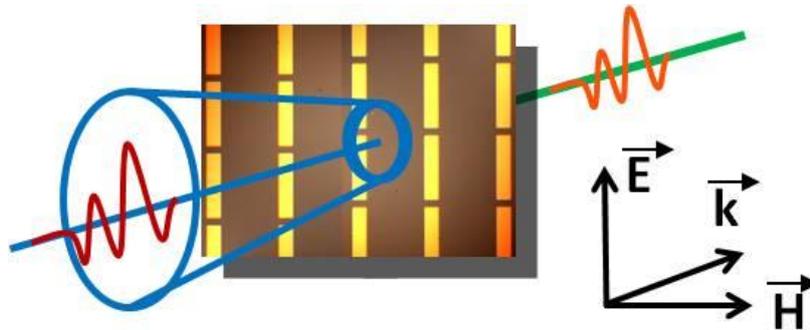
Comme première étape de réalisation de métamatériaux THz accordables, nous avons réalisé un métamatériau à structure Cut-Wire-Grid (présenté auparavant) intégrant une couche mince de VO<sub>2</sub>. La structure complète de ce métamatériau est indiquée sur la **Figure III.40** : les éléments métalliques sous-longueur d'onde ont été déposés sur un substrat de saphir c recouvert, auparavant, d'un film de VO<sub>2</sub>. Ce film de VO<sub>2</sub>, dont nous avons préalablement étudié les propriétés aux fréquences THz, présente une conductivité moyenne, à 0.6 THz, de l'ordre de  $430 \text{ kS}\cdot\text{m}^{-1}$  pour l'état métallique.



**Figure III.40 : Structure d'un métamatériau hybride de type "Cut-Wire-Grid" réalisé sur un substrat de saphir c recouvert d'un film de VO<sub>2</sub> : a. schéma en 3D de la cellule unitaire et b. vue du dessus du dispositif fabriqué.**

Dans le détail, la phase de fabrication de ce composant commence par le dépôt par ablation laser réactive d'une couche mince de dioxyde de vanadium, d'environ 100 nm d'épaisseur, sur un substrat de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> de type c, de 520 µm d'épaisseur. Enfin, les éléments métalliques (composés d'une couche d'accrochage de titane de 10 nm et d'une couche d'or de 100 nm) sont obtenus, en salle blanche, par des techniques de micro-fabrication classiques (lithographie et lift-off).

Après cette phase de fabrication, des mesures de transmission sont effectuées dans la bande de fréquences 0.1 – 1 THz en utilisant la spectroscopie THz-TDS. Lors de ces mesures, l'implémentation de l'échantillon (positionné sur un élément chauffant Peltier percé en son centre) est schématiquement représentée sur la **Figure III.41**.

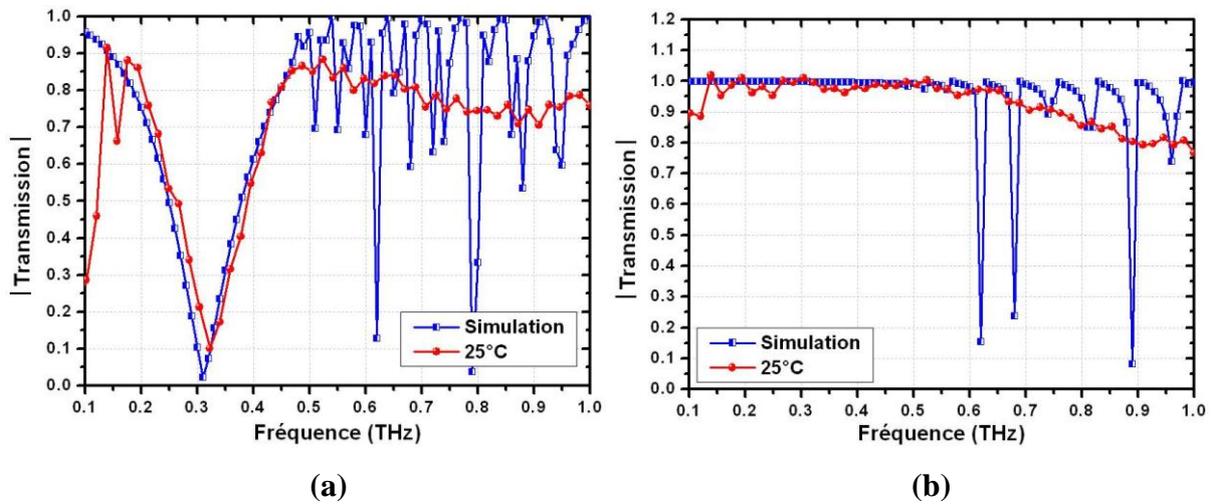


**Figure III.41 : Schéma montrant la position de l'échantillon par rapport au passage de l'impulsion THz dans le banc de spectroscopie THz-TDS.**

Nous avons mesuré, pour les deux polarisations de l'onde THz incidente, la transmission du métamatériau à température ambiante (25°C) (**Figure III.42**) et nous avons comparé ces résultats avec les simulations réalisées pour ce composant.

À cette température, pour laquelle le film de VO<sub>2</sub> est à l'état isolant et transparent devant l'onde THz incidente, on retrouve un bon accord entre les transmissions mesurées et celles issues des simulations réalisées avec HFSS. On observe, en particulier, la présence du pic d'absorption pour la polarisation parallèle et une transmission élevée et relativement constante pour la polarisation perpendiculaire. Néanmoins, le pic de résonance mesuré présente un léger décalage vers des fréquences plus élevées et semble en même temps être moins important, puisque la transmission ne descend pas en dessous de 10 %. Cette différence peut s'expliquer par la présence du film de VO<sub>2</sub> (dans les structures mesurées) qui n'est pas pris en compte dans les simulations mais également par des variations au niveau des

dimensions réelles des structures réalisées et des propriétés des matériaux utilisés pour sa réalisation (or, saphir,...).



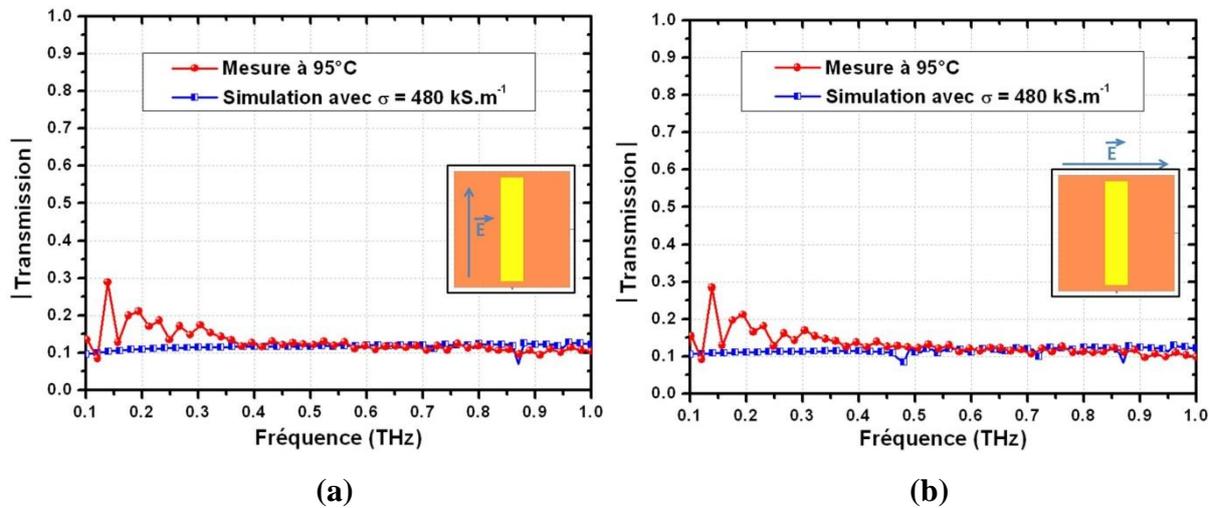
**Figure III.42 : Comparaison entre les transmissions mesurées à 25°C (courbes rouges) et les simulations correspondantes (où la couche de VO<sub>2</sub> n'est pas modélisée) (courbes bleues) du métamatériau hybride "Cut-Wire-Grid" pour une polarisation parallèle (a) et une polarisation perpendiculaire (b) de l'onde incidente.**

On constate également qu'au-dessus de 0.5 THz, les transmissions mesurées présentent un caractère légèrement plus bruité que dans la plage de fréquences 0.2 – 0.5 THz. Ce phénomène pourrait correspondre aux lobes de résonance présents en simulation mais dont l'amplitude serait atténuée par le traitement appliqué aux mesures. À l'opposé, en-dessous de 0.2 THz, les mesures présentent un caractère plus bruité qu'en simulation mais cela résulte certainement de l'étalonnage du banc THz.

Finalement, on remarque qu'à l'état isolant, le film de VO<sub>2</sub> a une faible influence sur la réponse globale du métamatériau. Cette observation est cohérente avec les résultats précédents qui montraient que dans cet état, les films minces de VO<sub>2</sub> sont fortement transparents devant les ondes incidentes THz.

Sur le même principe, nous avons, également, réalisé des mesures du composant chauffé à 95°C. Les résultats de ces mesures de transmission THz sont montrés sur la **Figure III.43**, en comparaison avec les résultats de simulation. Pour les deux états de polarisation, nous observons une transmission assez faible, autour de 10 %, qui diminue légèrement lorsque la fréquence augmente. Ces résultats prévisibles confirment le comportement caractéristique à l'état métallique du film de VO<sub>2</sub> dans lequel se trouve le matériau au-dessus

de sa température de transition MIT. Dans ce cas, la couche de VO<sub>2</sub>, déposée sur toute la surface du dispositif, bloque fortement les ondes THz incidentes.



**Figure III.43 : Comparaison entre les transmissions mesurées, à 95°C, et issues des simulations (pour lesquelles le film de VO<sub>2</sub> est défini par une couche conductrice de 480 kS.m<sup>-1</sup>) pour un métamatériau hybride de type "Cut-Wire-Grid" en polarisation parallèle (a) et en polarisation perpendiculaire (b) de l'onde incidente.**

De plus, on peut remarquer que les simulations réalisées en prenant en compte le film de VO<sub>2</sub> à l'état métallique concordent avec les mesures. Ainsi, la conductivité utilisée pour modéliser le film de VO<sub>2</sub> à l'état métallique correspond assez bien à la réalité.

L'intégration d'un film de VO<sub>2</sub> dans la structure d'un métamatériau simple de type Cut-Wire-Grid permet donc d'offrir, sous l'effet d'une commande thermique, un caractère accordable à ce métamatériau THz planaire. Ainsi, pour la polarisation parallèle de l'onde THz incidente, lors de la montée progressive en température du composant (et l'enclenchement de la transition MIT de la sous-couche de VO<sub>2</sub>), la réponse fréquentielle de la structure évolue progressivement entre une réponse de type filtre stop-bande et une réponse typique d'un atténuateur de transmission. Ce changement progressif de la réponse de la structure s'observe sur la **Figure III.44** où nous avons représenté les résultats de simulations dans lesquelles nous avons fait varier la conductivité du film de VO<sub>2</sub> reproduisant ainsi, une variation de la température. On constate alors que lorsque la conductivité du film de VO<sub>2</sub> augmente, sous l'effet de la transition MIT initiée thermiquement, la réponse de la structure passe progressivement de celle d'un polariseur, pour des conductivités faibles, vers une réponse caractéristique d'un atténuateur, pour des conductivités plus élevées.

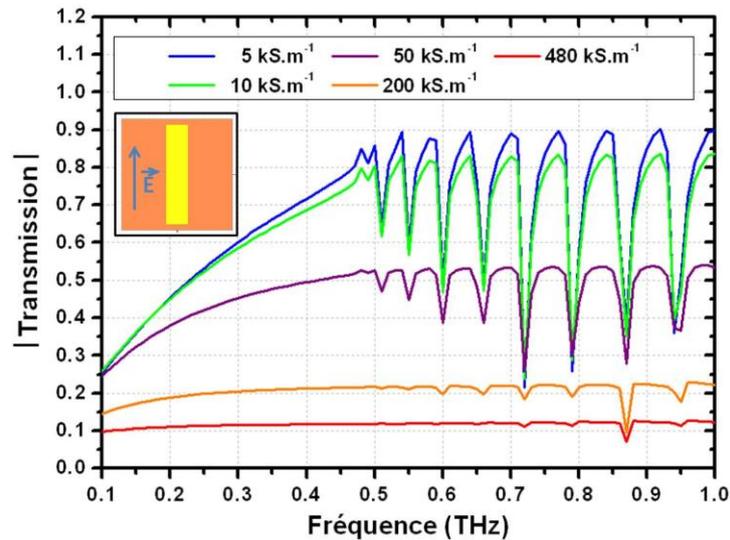


Figure III.44 : Transmissions THz obtenues par simulation du métamatériau hybride "Cut-Wire-Grid" pour différentes valeurs de conductivité du film de VO<sub>2</sub>, en polarisation parallèle.

### III.5.1.3. Métamatériau Cut-Wire-Grid intégrant des motifs de VO<sub>2</sub>

Dans la structure précédente, si l'accordabilité peut-être déclenchée de façon thermique, il est, en revanche, plus difficile d'envisager l'utilisation d'une commande en tension pour provoquer la transition MIT du film de VO<sub>2</sub>. Dans ce contexte, nous avons donc fabriqué une seconde structure qui est présentée sur la **Figure III.45** dans laquelle le film de VO<sub>2</sub> est réduit à la forme de motifs localisés dans les différents gaps d'air du métamatériau Cut-Wire-Grid.

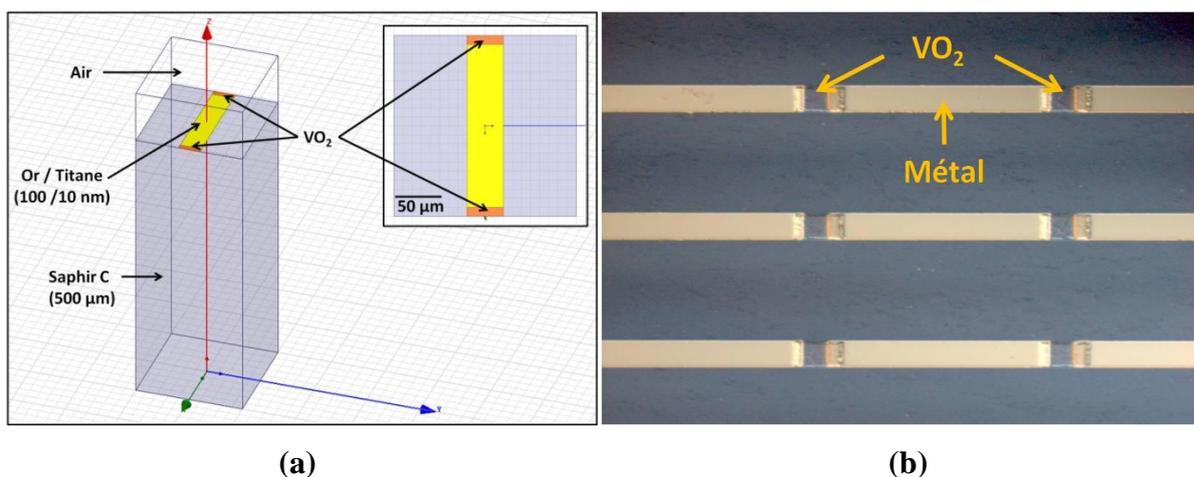
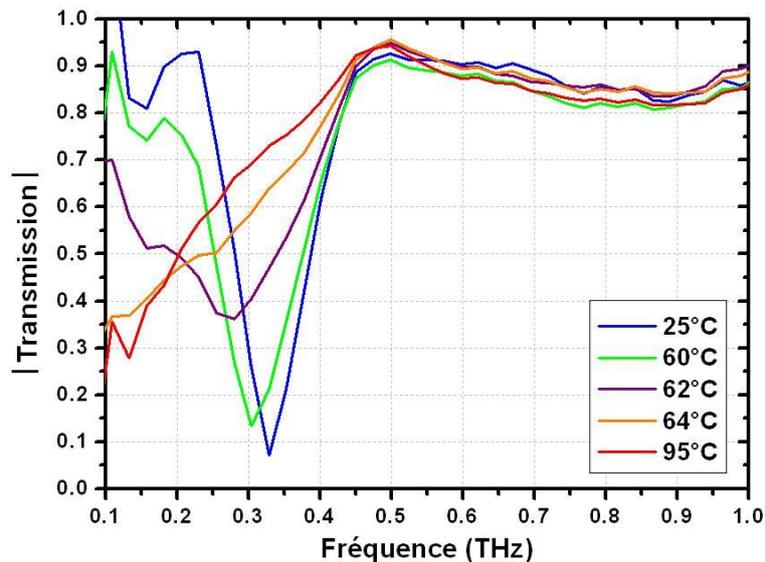


Figure III.45 : Structure du métamatériau de type "Cut-Wire-Grid" réalisé sur un substrat de saphir c pour lequel des motifs de VO<sub>2</sub> sont intégrés dans les coupures

**des lignes métalliques : a. schéma de la cellule unitaire du dispositif et b. vue du dessus du dispositif fabriqué.**

La fabrication de cette nouvelle structure suit, globalement, les mêmes étapes que celles suivies pour le métamatériau précédent à base de films minces de VO<sub>2</sub> à une différence près : une étape de gravure par voie humide est réalisée pour structurer les motifs de VO<sub>2</sub>, juste avant le dépôt des films métalliques.

Avant d'étudier le comportement de la structure en utilisant l'enclenchement électrique de la transition MIT des motifs de VO<sub>2</sub>, nous avons mesuré l'évolution de la transmission THz du métamatériau réalisé en fonction de la température et en se concentrant sur la polarisation parallèle. Ainsi, sur la **Figure III.46** sont regroupées les courbes de transmissions THz mesurées pour différentes températures, entre 25°C et 95°C.



**Figure III.46 : Transmissions THz mesurées à différentes températures pour le métamatériau de type "Cut-Wire-Grid" avec des motifs de VO<sub>2</sub> intégrés dans les coupures des lignes, dans le cas de la polarisation parallèle.**

Pour des températures allant de 25°C à 60°C, on observe à nouveau le comportement du filtre stop-bande présenté par la structure précédente, confirmant qu'à l'état isolant, les motifs de VO<sub>2</sub> n'ont que très peu d'influence sur la réponse du métamatériau. Puis, à partir de 60°C, le pic de résonance commence à s'estomper, confirmant le début de la transition MIT des motifs de VO<sub>2</sub>. Celle-ci provoque une augmentation de la conductivité des motifs entraînant une diminution du champ électrique concentré dans les gaps des structures Cut-Wire-Grid. En parallèle, on observe également un décalage de ce pic de résonance qui peut

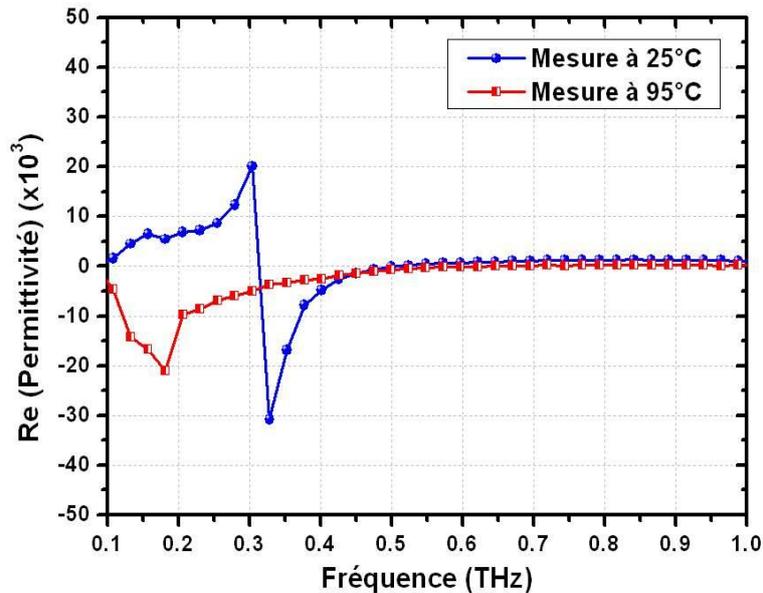
être causé par une augmentation de la permittivité du motif (cf. chapitre II), ce qui entraîne une augmentation de sa capacité et donc une diminution de la fréquence de résonance dans la réponse du métamatériau. Ces variations progressives avec la température font qu'à partir de 64°C, le pic de résonance n'est plus du tout visible. On retrouve alors le comportement du métamatériau de type Wire-Grid (lignes non coupées) présentant les caractéristiques d'un polariseur (**Figure III.37**). On peut donc imaginer que pour la polarisation perpendiculaire du champ électrique incident, la réponse en transmission doit également correspondre à celle de cette structure de type Wire-Grid et par conséquent, rester sensiblement la même pour toute la gamme de températures. Enfin, on peut rajouter qu'entre 64°C et 95°C, la réponse de la structure ne varie plus de façon importante ce qui laisse penser que la transition MIT est quasiment terminée à 64°C.

Comme pour la configuration précédente, l'utilisation de motifs localisés de VO<sub>2</sub> permet donc d'obtenir des variations de la réponse du dispositif par rapport au comportement de base du métamatériau (sans inclusions de VO<sub>2</sub>). Si dans la configuration précédente (intégration d'un film continu de VO<sub>2</sub>), on pouvait considérer la réponse du dispositif comme une simple superposition de la réponse du métamatériau de base et du film de VO<sub>2</sub>, dans cette nouvelle configuration (motifs localisés de VO<sub>2</sub>), la transition MIT peut permettre le passage d'un type de métamatériau (Cut-Wire-Grid) à un autre (Wire-Grid).

En raison de sa structure filaire et de la direction de propagation de l'onde incidente qui ne permet pas d'activer de réponse magnétique, on peut considérer que le métamatériau ne présente pas d'activité magnétique ( $\mu = 1$ ). Dans ce cas, il devient possible d'appliquer les relations utilisées pour le calcul de la conductivité du film de VO<sub>2</sub> afin de déterminer les différentes constantes de ce métamatériau. En l'occurrence, sur la **Figure III.47**, nous avons reporté l'évolution, à deux températures, de la partie réelle de la permittivité complexe du métamatériau de type "Cut-Wire-Grid" avec motifs de VO<sub>2</sub> à l'état isolant et à l'état métallique.

Tout d'abord, pour l'état isolant des motifs de VO<sub>2</sub>, on note la présence d'une forte non-linéarité entre 0.30 et 0.33 THz qui coïncide avec la résonance du métamatériau. Dans la gamme de fréquences située au-dessus de cette non-linéarité, on observe une partie réelle qui est négative et augmente avec la fréquence. On retrouve ainsi, les caractéristiques d'un effet plasma qui reste présent jusqu'à 0.50 THz et que l'on peut expliquer par la présence du réseau de lignes métalliques. À partir de cette fréquence, la partie réelle devient positive et le

métamatériau acquiert donc le comportement d'un diélectrique. Cette fréquence de 0.50 THz où le métamatériau change de comportement correspond donc bien à la fréquence plasma de ce dernier. En observant la zone située en dessous de 0.3 THz, on peut également observer que la partie réelle redevient positive malgré le fait que l'on soit à une fréquence inférieure à la fréquence plasma du réseau de lignes métalliques. Ce défaut de comportement est causé par la présence des motifs de VO<sub>2</sub> à l'état isolant qui introduisent un comportement diélectrique en dessous de la fréquence de résonance.

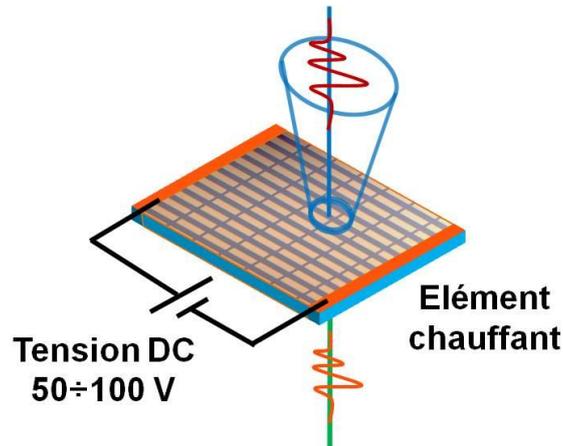


**Figure III.47 : Calcul de la partie réelle de la permittivité complexe du métamatériau "Cut-Wire-Grid" intégrant des motifs de VO<sub>2</sub> pour l'état isolant (25°C) et pour l'état métallique (95°C).**

Ensuite, pour l'état métallique, on constate que la non-linéarité s'est décalée vers une zone de fréquences plus basses, de l'ordre de 0.18 THz. Au-dessus de cette fréquence, on retrouve le comportement observé auparavant avec la présence d'un effet plasma jusqu'à 0.5 THz, fréquence à laquelle la structure acquiert les caractéristiques d'un matériau diélectrique. En revanche, en dessous de 0.18 THz, la partie réelle de la permittivité reste négative, contrairement au comportement à l'état isolant. C'est pour cette raison que l'on n'observe plus le phénomène de résonance sur la transmission du métamatériau.

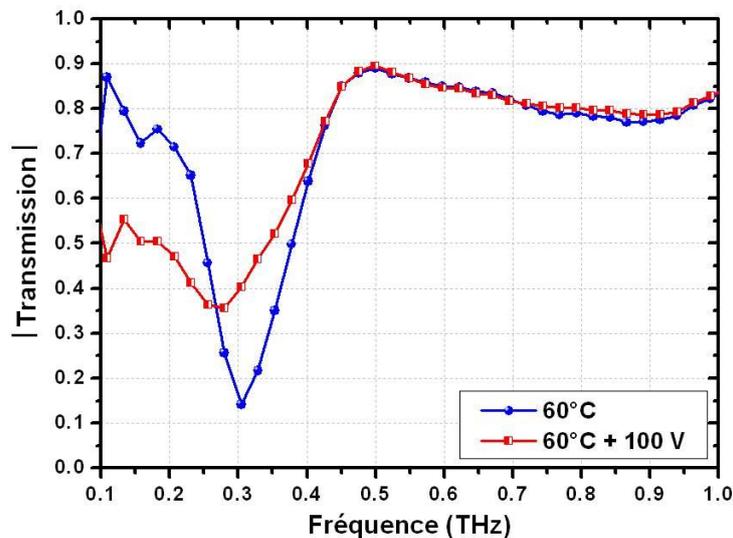
Après avoir étudié l'effet de la température sur la réponse du métamatériau à base de motifs de VO<sub>2</sub>, nous avons étudié la possibilité de déclencher la transition MIT des motifs de VO<sub>2</sub> en utilisant une commande en tension. Pour cela, nous nous sommes placés à une température de 60°C, située juste en dessous de la température de transition MIT, et nous

avons appliqué au dispositif différentes tensions de commande, à l'aide des électrodes latérales reliant les motifs de VO<sub>2</sub>, comme l'illustre la **Figure III.48**.



**Figure III.48** : Schéma montrant le métamatériau auquel on applique différentes tensions de commande par l'intermédiaire des électrodes latérales.

Sur la **Figure III.49** sont représentées les courbes de transmission THz du dispositif, maintenu à 60°C, sans l'application de commande électrique (courbe bleue) et avec une tension de 100 V appliquée sur les électrodes de commande (courbe rouge).

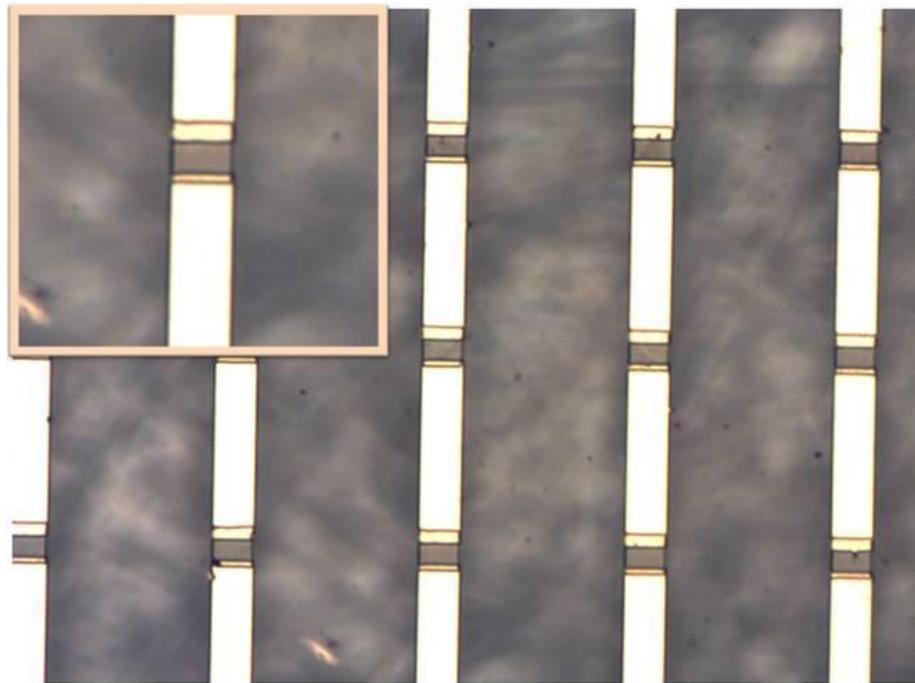


**Figure III.49** : Transmissions THz mesurées, à 60°C, sans et avec tension appliquée (100 V) du métamatériau "Cut-Wire-Grid" (avec des motifs de VO<sub>2</sub> intégrés dans les coupures des lignes) dans le cas de la polarisation parallèle de l'onde incidente.

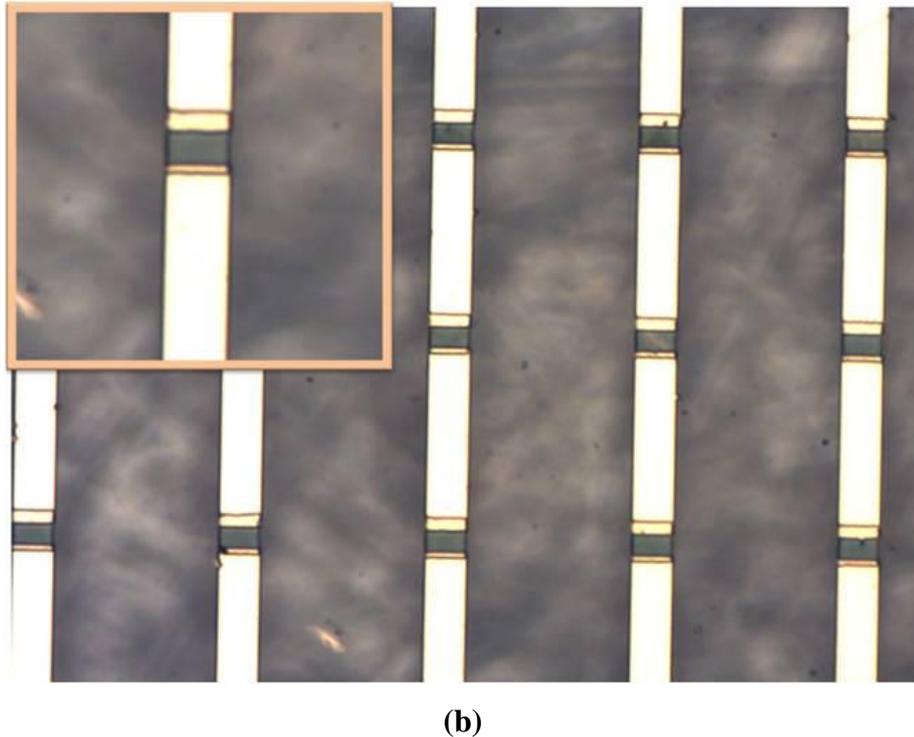
Comme observé sur la **Figure III.46**, à 60°C, on retrouve le comportement d'un filtre stop-bande (les motifs de VO<sub>2</sub> sont encore à l'état isolant pour cette température). Mais en appliquant une tension d'environ 100 V aux bornes des électrodes du dispositif, sa réponse montre une évolution assez significative vers un comportement de métamatériau de type

Wire-Grid. Même si le pic de résonance n'a pas totalement disparu, en observant la forme et le décalage de ce pic, on peut envisager une évolution complète vers une réponse caractéristique d'une structure Wire-Grid pour des tensions appliquées supérieures à 100 V (limitation imposée, dans notre cas, par le système d'actionnement électrique utilisé). Tout comme dans le cas des dispositifs 2T étudiés dans le chapitre II, on peut estimer que la transition MIT des motifs de VO<sub>2</sub> est déclenchée par l'effet Joule produit lors de l'application de la tension de commande (et le passage d'un fort courant) aux bornes du métamatériau.

Sur la **Figure III.50**, nous avons représenté des images obtenues par microscopie optique d'une partie du métamatériau, à 60°C, sans (**Figure III.50a**) et avec l'application d'une tension de 100 V (**Figure III.50b**). Nous observons que les motifs de VO<sub>2</sub> changent de couleur lors de l'application de la tension de commande. Cette variation de couleur qui correspond au changement d'état des motifs de VO<sub>2</sub> confirme ainsi, que la variation de réponse en transmission du dispositif est la conséquence du déclenchement de la transition MIT sous l'effet d'une commande en tension.



(a)



**Figure III.50** : Images obtenues par microscopie optique, à 60°C, du métamatériau "Cut-Wire-Grid" intégrant des motifs de VO<sub>2</sub>, avec un zoom sur un motif (en insert), sans polarisation DC (a) et avec l'application d'une tension de 100 V aux électrodes de commande (b).

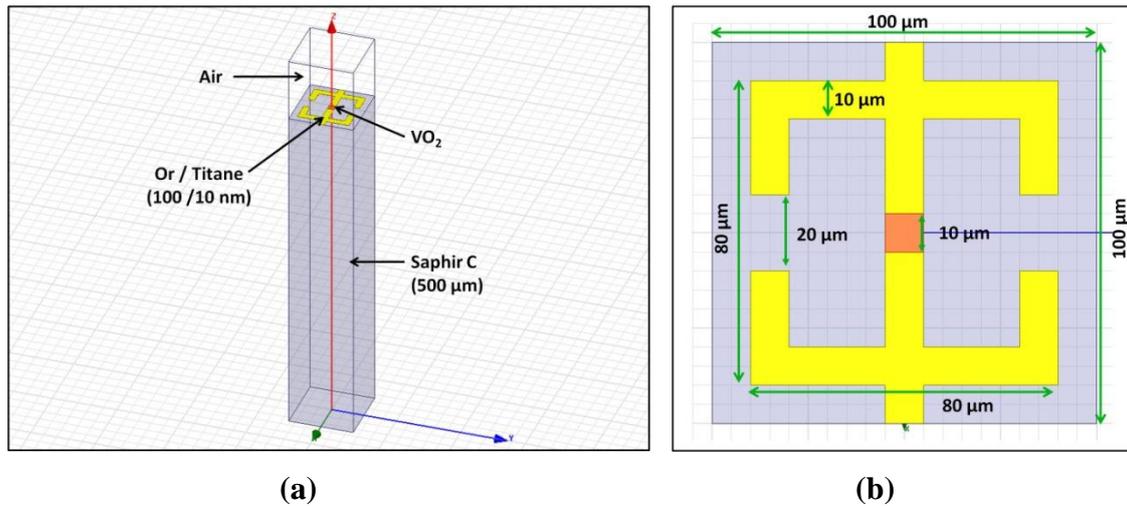
En conclusion, nous avons démontré la possibilité d'implémenter une commande électrique en tension pour déclencher un processus thermique dans le métamatériau et ainsi, provoquer une variation assez significative de la réponse THz de ce dernier. L'utilisation d'une commande en tension (déclenchant la transition MIT du VO<sub>2</sub>) permet alors de faire varier d'une manière plus souple la réponse en transmission du métamatériau.

### III.5.2. Structure d'un métamatériau hybride à base de VO<sub>2</sub>

Dans la suite de nos réalisations précédentes, nous présentons dans cette partie l'étude par spectroscopie THz d'un métamatériau hybride THz accordable, basé sur l'intégration de motifs de films de VO<sub>2</sub> dans des résonateurs métalliques périodiques plus complexes. Le principe d'accordabilité du métamatériau hybride est également basé sur la modification des fréquences individuelles des résonateurs, lors du changement de phase MIT (par la température ou par stimulation électrique) des motifs de VO<sub>2</sub> intégrés.

La **Figure III.51** montre le concept du métamatériau hybride proposé. Sa cellule unitaire est formée de deux anneaux en forme de C accolés dos à dos au centre desquels est

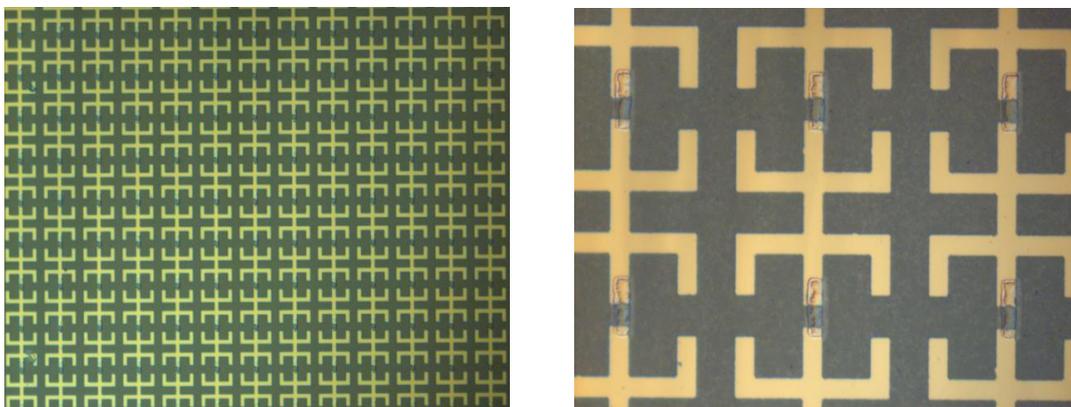
inséré un motif de VO<sub>2</sub>. L'électrode qui parcourt la cellule de haut en bas permet quant à elle de relier électriquement les motifs de la structure en perspective d'un actionnement électrique.



**Figure III.51 : Cellule unitaire d'un métamatériau hybride intégrant un motif de VO<sub>2</sub> : a. vue 3D et b. vue de dessus de la cellule unitaire.**

Par rapport aux structures précédentes, ce type de métamatériau que l'on désignera, par la suite, sous le terme de "métamatériau hybride", possède une structure qui doit permettre de multiplier les résonances dans sa réponse THz. De plus, les dimensions de la cellule ont été réduites par un facteur deux afin d'augmenter la fréquence plasma du métamatériau et ainsi, avoir une plage de fréquences exploitable plus importante.

Concernant la fabrication de ce métamatériau hybride à base de motifs de VO<sub>2</sub>, nous pouvons préciser qu'elle suit les mêmes étapes que le métamatériau de type "Cut-Wire-Grid" à base de motifs de VO<sub>2</sub> étudié auparavant. Sur la **Figure III.52** sont ainsi représentées des images obtenues par microscopie optique du dispositif réalisé.



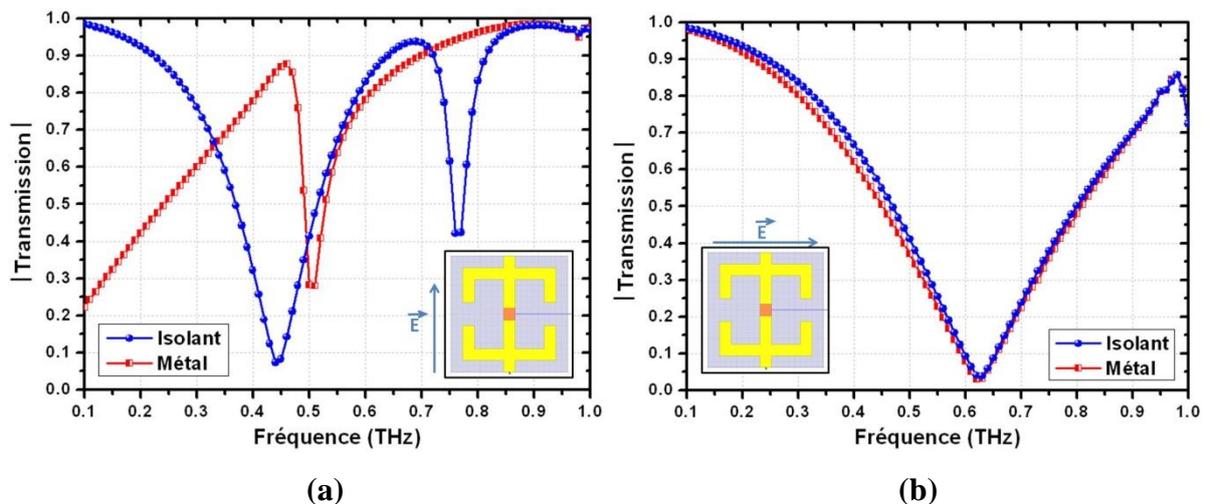
**Figure III.52 : Images par microscopie optique du métamatériau hybride réalisé.**

Comme auparavant les mesures de transmission THz du composant sont quant à elles effectuées par spectroscopie THz-TDS sur la plage 0.1 – 1 THz en installant le métamatériau sur un élément de chauffage Peltier percé en son centre.

### III.5.2.1. Comportement électromagnétique du métamatériau hybride

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés au comportement de ce métamatériau hybride en fonction de l'état du motif de VO<sub>2</sub> lors de sa transition MIT activée de manière thermique. Pour les simulations électromagnétiques du composant, nous considérons le cas idéal où l'on définit le motif de VO<sub>2</sub> par un gap d'air lorsqu'il est isolant et par un motif d'or lorsqu'il est à l'état métallique.

La **Figure III.53** montre les réponses simulées en transmission THz du métamatériau pour les deux états du motif de VO<sub>2</sub> (isolant et métallique) dans les deux types de polarisation.



**Figure III.53 : Transmissions THz obtenues par simulation du métamatériau hybride proposé sur la Figure III.39 (le motif de VO<sub>2</sub> étant matérialisé par un gap d'air à l'état isolant et par un motif d'or à l'état métallique) : pour une polarisation du champ électrique parallèle, en (a), et perpendiculaire, en (b), à l'axe des lignes.**

Avant tout, on note que la transmission n'est plus affectée par le phénomène d'oscillations observé dans le cas des structures de type Cut-Wire. On peut juste observer un léger décrochage entre 0.95 THz et 1.0 THz qui doit correspondre au début de ce phénomène et donc à la fréquence plasma de la structure. Ainsi, en divisant les dimensions de la cellule unitaire par un facteur deux, nous avons multiplié la valeur de sa fréquence plasma par la

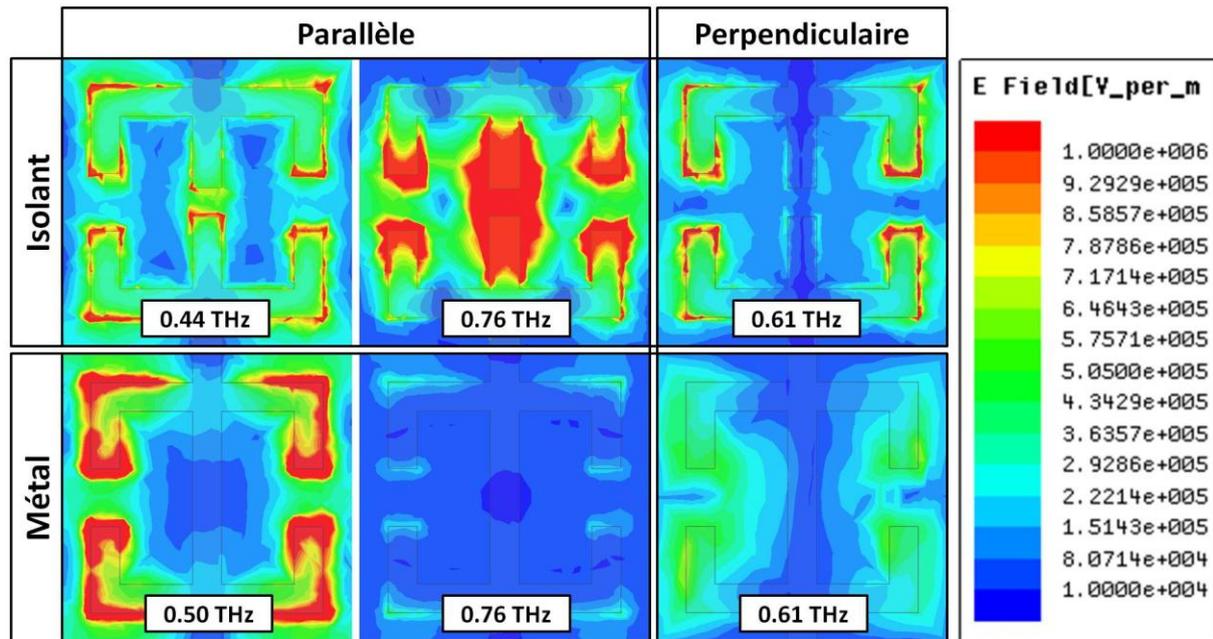
même constante, ce qui nous permet d'utiliser l'ensemble de la plage de fréquences située entre 0.1 et 1 THz.

Si on s'intéresse, ensuite, au cas où le champ électrique incident est orienté parallèlement à l'axe des lignes, on constate qu'il y a une réelle évolution de la transmission du métamatériau en fonction de l'état du motif de VO<sub>2</sub>. Lorsque le motif est à l'état isolant, la transmission présente deux pics de résonance : un premier pic assez large situé à 0.44 THz, fréquence pour laquelle la transmission est inférieure à 10 %, et un second pic beaucoup plus étroit centré à environ 0.76 THz, fréquence pour laquelle la transmission est beaucoup plus élevée ( $\approx 40\%$ ). Lorsque le motif de VO<sub>2</sub> est à l'état métallique, on n'observe plus qu'un seul pic de résonance assez étroit, situé à 0.5 THz, fréquence pour laquelle la transmission est de 30 %. En revanche, dans ce cas, on constate que la transmission dans la plage de fréquences située en dessous de 0.45 THz présente une évolution proportionnelle à la fréquence (transmission qui diminue lorsque la fréquence diminue), rappelant l'effet polariseur observé sur la structure du métamatériau étudié précédemment.

Enfin, si on étudie le cas de la polarisation perpendiculaire, on constate que, comme pour la structure précédente, l'état du motif de VO<sub>2</sub> n'a pas d'impact majeur sur la réponse de la structure.

Pour mieux comprendre la réponse en transmission du métamatériau pour les deux états du motif de VO<sub>2</sub>, nous avons représenté, sur la **Figure III.54**, la distribution du champ électrique s'installant dans la structure à plusieurs fréquences, pour les deux états du motif de VO<sub>2</sub>, dans les deux types de polarisation de l'onde incidente.

Pour l'état isolant, on constate que le confinement du champ électrique est relativement différent en fonction de la résonance considérée. En polarisation parallèle, le pic de résonance situé à 0.44 THz correspond à une concentration du champ électrique au niveau des ramifications et du gap central dans les mêmes proportions. Le pic de résonance situé à 0.76 THz est quant à lui lié à un très fort confinement du champ électrique dans le gap central et, dans une moindre proportion, dans les gaps extérieurs. En polarisation perpendiculaire, la résonance à 0.61 THz est décrite par une légère augmentation du champ électrique dans les ramifications du métamatériau.



**Figure III.54 : Distribution du champ électrique dans la cellule unitaire du métamatériau hybride pour différentes fréquences (polarisation parallèle à 0.44 THz, 0.50 THz et 0.76 THz et polarisation perpendiculaire à 0.61 THz).**

A présent, si l'on s'intéresse à la distribution du champ à l'état métallique, on retrouve, dans le cas de la polarisation perpendiculaire, une répartition du champ électrique à 0.61 THz sensiblement identique à celle observée à la même fréquence pour l'état isolant avec une concentration du champ électrique dans les ramifications. Concernant la polarisation parallèle, pour le pic de résonance situé à 0.50 THz, on note une importante concentration du champ électrique dans les ramifications rappelant celle observée à 0.44 THz pour l'état isolant, ce qui peut indiquer un mode de résonance identique. Enfin, à 0.76 THz, on constate que le champ électrique est relativement uniforme et assez faible.

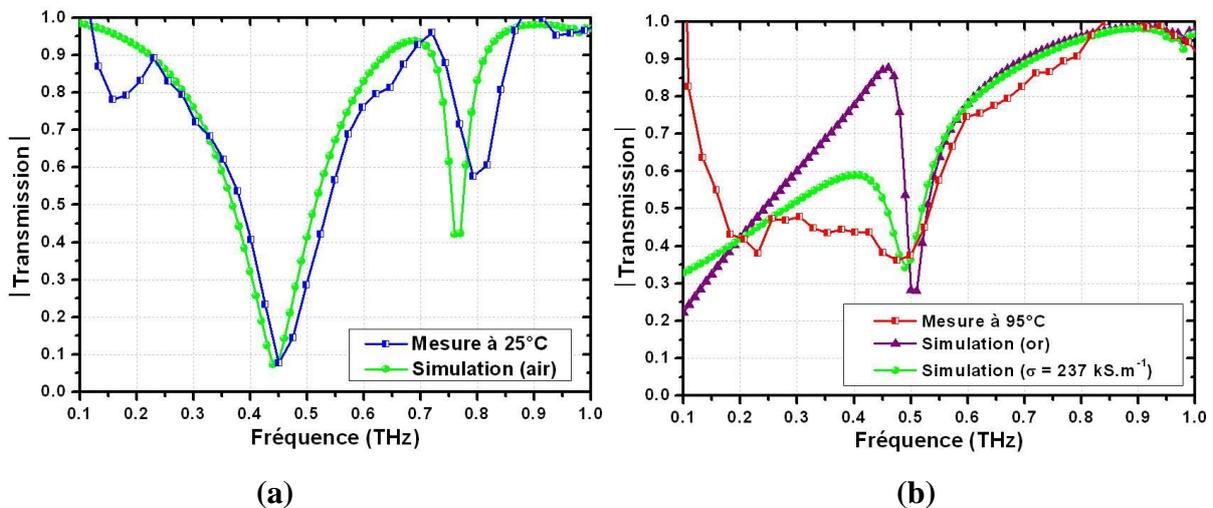
### **III.5.2.2. Métamatériau hybride : mise en évidence du caractère accordable**

En suivant le même protocole que dans le cas des métamatériaux précédemment étudiés, nous avons caractérisé le métamatériau hybride fabriqué. Les motifs de VO<sub>2</sub> intégrés ont été réalisés à partir d'un film mince présentant une conductivité moyenne d'environ 237 kS.m<sup>-1</sup> à 0.6 THz pour l'état métallique.

Nous avons, tout d'abord, étudié la transmission THz du métamatériau réalisé pour les températures de 25 et 95°C, en se concentrant sur la polarisation parallèle pour laquelle les

simulations montrent un comportement accordable. Sur la **Figure III.55** sont ainsi représentées les courbes de transmissions mesurées qui sont comparées à celles issues des simulations électromagnétiques.

Les mesures effectuées à température ambiante (25°C) montrent que l'évolution fréquentielle de la transmission mesurée est assez proche de celle obtenue par simulation. La seule différence notable concerne le deuxième pic de résonance (0.76 THz sur les courbes de simulation) qui est décalé en fréquence et présente une transmission à la résonance plus élevée. En revanche, ces variations ne s'observent pas (ou sont présentes de façon très modérée) sur le premier pic de résonance (à 0.44 THz). Or, comme nous l'avons observé sur la **Figure III.54**, le second pic de résonance (autour de 0.76 THz) est lié à une forte concentration du champ électrique dans le gap d'air où l'on insère le motif de VO<sub>2</sub>. Ainsi, les caractéristiques des motifs du VO<sub>2</sub> semblent donc avoir un effet déterminant sur la position et l'ampleur de ce pic de résonance. Plus précisément, la conductivité à l'état isolant, les dimensions et la position des motifs du VO<sub>2</sub> dans les gaps d'air peuvent expliquer le léger décalage de la position mesurée de ce pic d'absorption par rapport aux simulations.

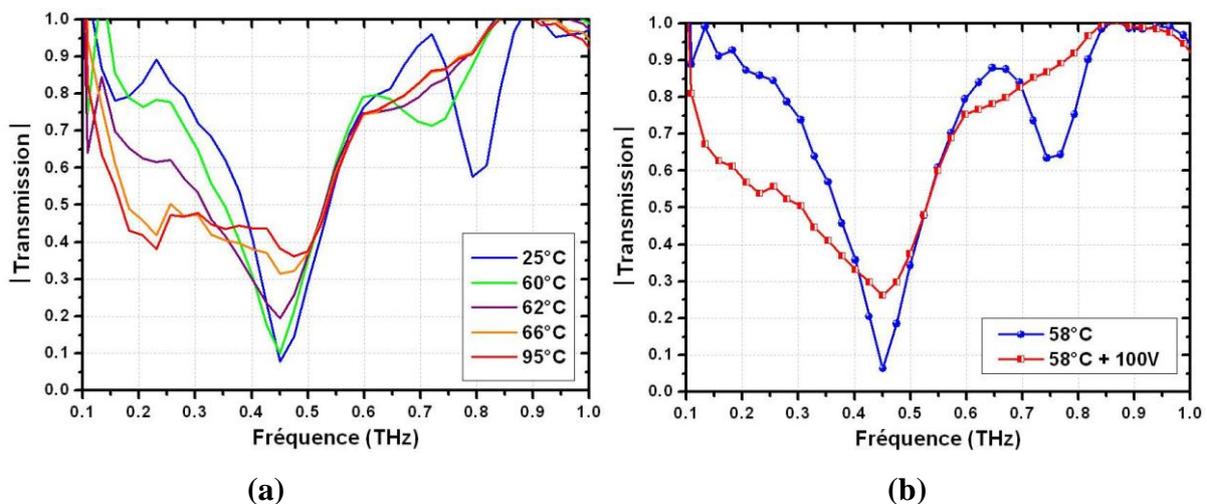


**Figure III.55 : Comparaison des transmissions mesurées et des résultats de simulations, à 25°C (a) et à 95°C (b), du métamatériau hybride dans le cas de la polarisation parallèle de l'onde incidente.**

Pour les mesures réalisées à 95°C, où les motifs de VO<sub>2</sub> sont à l'état métallique, l'allure des courbes de transmission du métamatériau évolue de façon significative (disparition de la résonance à 0.76 THz), mettant en évidence le principe d'accordabilité de cette structure sous l'effet d'une commande thermique. Néanmoins, en s'intéressant à la zone de fréquences située en dessous de 0.5 THz, on s'aperçoit que la transmission mesurée est

relativement différente de la transmission issue des résultats de simulation où le matériau VO<sub>2</sub> à l'état métallique est modélisé par de l'or). Cette différence est provoquée par le motif de VO<sub>2</sub> qui ne possède pas à l'état métallique une conductivité aussi forte que celle de l'or. Une nouvelle simulation qui prend en compte la valeur réelle de la conductivité THz du film de VO<sub>2</sub> à l'état métallique (237 kS.m<sup>-1</sup>) permet d'obtenir une courbe de transmission (courbe verte sur la **Figure III.55**) beaucoup plus proche de celle observée en mesure, même si le résultat reste perfectible.

En effectuant des mesures de transmission THz pour des températures intermédiaires entre 25°C et 95°C (**Figure III.56a**), nous constatons que la zone de transition MIT débute à une température légèrement inférieure à celle du métamatériau précédent, à 60°C. A partir de ce constat, en se positionnant à une température initiale de 58°C, il nous a alors été possible d'obtenir une variation de réponse de la structure hybride en appliquant une tension aux bornes des électrodes latérales du métamatériau, comme le montre la **Figure III.55b**. Nous observons que la réponse obtenue, lors de l'application d'une tension de 100 V, s'approche de celle observée à 95°C.



**Figure III.56 : a. Résultats des transmissions THz mesurées, dans le cas d'une polarisation parallèle de l'onde THz incidente, pour différentes températures du métamatériau hybride et b. à 58°C, sans et avec une tension de 100 V appliquée sur les électrodes latérales du dispositif.**

Pour conclure cette étude, nous avons montré la possibilité de réaliser des métamatériaux THz planaires avec des structures complexes qui présentent des réponses

accordables, en utilisant les effets de la transition MIT de films minces de VO<sub>2</sub>, qui est déclenchée thermiquement ou avec une commande électrique (chauffage par effet Joule). Même si les variations observées indiquent que la transition MIT résulte d'un processus par effet Joule, l'activation électrique n'en reste pas moins intéressante car elle peut permettre de faire varier d'une manière plus souple la réponse en transmission du métamatériau hybride. Elle permet également d'envisager un déclenchement de la transition MIT localisée (sur certains motifs de VO<sub>2</sub>) et ainsi, imaginer la réalisation de composants à réponse spatiale variable dans un arrangement matriciel. Les différentes structures que nous avons fabriquées et étudiées nous permettent de penser qu'il est possible d'obtenir des réponses sur commande sur l'ensemble de la plage de fréquences considérée mais aussi, d'améliorer les conditions dans lesquelles le déclenchement électrique peut être implémenté.

### **III.6. Conclusion**

Au cours de ce troisième chapitre, nous avons évoqué l'intérêt du domaine des fréquences THz, domaine émergent à fort potentiel applicatif, et des technologies associées. Aujourd'hui encore, les problématiques liées au gap THz sont encore loin d'être solutionnées et de nouvelles recherches sont nécessaires afin d'améliorer les technologies existantes et de développer de nouvelles applications, notamment, dans le domaine des télécommunications.

Une classe de dispositifs adaptés pour le fonctionnement dans le domaine THz est constituée par les structures de type métamatériaux qui sont des structures artificielles présentant des inclusions sous longueur d'onde. Depuis quelques années, les métamatériaux font l'objet d'une attention grandissante de la part de la communauté scientifique à cause de leurs propriétés remarquables (permittivités, perméabilités ou indices de réfraction négatifs) permettant d'imaginer de nombreuses applications avancées (lentilles planes convergentes à haute résolution, "capes d'invisibilité" dans divers domaines spectrales, etc.). Pour le domaine des fréquences THz, nous nous sommes plus particulièrement intéressés au cas des métamatériaux planaires. Notre choix pour les métamatériaux THz planaires a été motivé par plusieurs raisons : leur facilité d'adaptation par rapport à d'autres technologies, leurs dimensions qui sont accessibles à l'aide des techniques de micro-fabrication peu onéreuses et la possibilité de les utiliser pour réaliser des composants permettant de contrôler et manipuler les ondes THz. Afin d'obtenir une fonction accordable dans la réponse fréquentielle de ces matériaux artificiels, il apparaît alors très intéressant d'utiliser, dans leur fabrication, des

matériaux dont les propriétés électriques et/ ou optiques peuvent être modifiées sous l'action de divers stimuli externes.

Dans la perspective de réaliser des dispositifs THz accordables et plus particulièrement, des métamatériaux THz planaires accordables, nous nous sommes naturellement dirigé vers l'étude des propriétés THz de la transition MIT des films minces de VO<sub>2</sub> dont nous avons déjà mis en évidence le caractère large bande dans le premier chapitre de ce manuscrit. En utilisant la spectroscopie THz-TDS, il nous a alors été possible de mettre en évidence d'importantes variations de la transmission du film aux fréquences THz lors de la transition MIT. Ces variations se matérialisent par une diminution de l'ordre de 80 % de la transmission THz entre l'état isolant et l'état métallique du matériau VO<sub>2</sub> en couche mince. En utilisant les informations de transmission THz en amplitude mais également en phase, nous avons mis en relation ces variations de transmission avec les variations de la conductivité THz du film de VO<sub>2</sub> lors de sa transition MIT.

Dans ce contexte, nous avons alors conçu et réalisé des métamatériaux accordables dans le domaine THz en intégrant dans leur structure une couche mince ou des motifs localisés de dioxyde de vanadium. D'un côté, l'intégration du VO<sub>2</sub> sous forme de film mince nous a permis de confirmer le caractère accordable de la structure par une commande thermique. Lors de la transition MIT, la réponse du dispositif évolue progressivement de la réponse d'un filtre stop bande à une réponse typique d'un atténuateur de transmission. D'un autre côté, en intégrant des motifs localisés de VO<sub>2</sub>, nous avons démontré le caractère accordable du métamatériau, en utilisant une commande électrique, en plus des stimuli thermiques. La mise en œuvre de la commande électrique a été rendue possible en utilisant la structure des métamatériaux "Cut-Wire-Grid" et des électrodes globales d'actionnement électrique. Dans cette configuration, on peut également préciser que la transition MIT permet de faire varier les réponses des dispositifs avec des comportements plus complexes.

Néanmoins, le fait que l'on soit obligé de se placer à proximité de la température de transition MIT et d'utiliser des tensions assez élevées pourrait représenter un frein à l'utilisation de cette solution. De ce fait, dans la suite de ce manuscrit, nous envisageons la conception de dispositifs métamatériaux hybrides THz avec des fonctions accordables qui peuvent être réalisées à des températures plus proches de la température ambiante ou en appliquant des tensions d'actionnement moins élevées.

## Références Chapitre III

- [Che11] H.-T. Chen, J.F. O'Hara, A.K. Azad, A.J. Taylor ; "Manipulation of terahertz radiation using metamaterials" ; *Laser & Photonics Reviews*, 5 (4), 513–533, (2011).
- [Coc10] T.L. Cocker, L.V. Titova, S. Fourmaux, H.-C. Bandulet, D. Brassard, J.-C. Kieffer, M.A. El Khakani, F. Hegmann ; "Terahertz conductivity of the metal-insulator transition in a nanogranular VO<sub>2</sub> film" ; *Applied Physics Letters*, 97 (22), 221905, (2010).
- [Dav02] A.G. Davies, E.H. Linfield, M.B. Johnston ; "The development of terahertz sources and their applications" ; *Physics in medicine and biology*, 47 (21), 3679–89, (2002).
- [Dec04] T. Decoopman ; "Multiplificateurs de fréquences et métamatériaux en technologie fineline" ; Thèse : Micro-ondes et Micro-technologies ; Université des sciences et technologies de Lille, (2004).
- [Dri08] T. Driscoll, S. Palit, M.M. Qazilbash, M. Brehm, F. Keilmann, B.-G. Chae, S.-J. Yun, H.-T. Kim, S.Y. Cho, N.M. Jokerst ; " Dynamic tuning of an infrared hybrid-metamaterial resonance using vanadium dioxide" ; *Applied Physics Letters*, 93 (2), (2008).
- [Duv03] P.L. Duvillaret, F. Garet, J. Coutaz ; "Caractérisation de matériaux et autres applications de la spectroscopie térahertz dans le domaine temporel" ; *Revue de l'Électricité et de l'Électronique*, 1, 1–6, (2003).
- [ESA13] ESA, D. Ducros ; "Planck and the Cosmic microwave background" ; [http://spaceimages.esa.int/Images/2013/03/Planck\\_and\\_the\\_Cosmic\\_microwave\\_background](http://spaceimages.esa.int/Images/2013/03/Planck_and_the_Cosmic_microwave_background), (2013).
- [Fer12] D. Férachou ; "Application des fibres creuses à cristal photonique pour la réalisation de résonateurs micro-ondes et de guides d'onde térahertz" ; Thèse : Électronique des Hautes Fréquences, Photonique et Systèmes ; Université de Limoges, (2012).
- [Han08] J. Han ; "Probing negative refractive index of metamaterials by terahertz time-domain spectroscopy" ; *Optics express*, 16 (2), 1354–64, (2008).

- [Hou09] G. Houzet ; "Déphasage composite accordable et routage spatial par la technologie des métamatériaux" ; Thèse : Micro-ondes et Micro-technologies ; Université des sciences et technologies de Lille, (2009).
- [Jep06] P.U. Jepsen, B.M. Fisher, A. Thoman, H. Helm, J.Y. Sue, R. Lopez, R.F. Haglund Jr. ; "Metal-insulator phase transition in a VO<sub>2</sub> thin film observed with terahertz spectroscopy" ; Physical review B, 74 (5), 205103, (2006).
- [Ket12] C. Ketchazo ; "Imagerie dans le domaine Térahertz : Considérations radiométriques pour l'imagerie en mode passif" ; Thèse : Optique et Radiofréquences ; Université de Grenoble, (2012).
- [Lam08] N. Laman, D. Grischkowsky ; "Terahertz conductivity of thin metal films" ; Applied Physics Letters, 93 (5), 051105, (2008).
- [Met07] "Métamatériaux, matériaux à bandes interdites électromagnétiques (BIE) : potentialité des plasmas" ; Séminaire 3EP, (2007).
- [Pea06] Pearson Education, Inc, publishing as Addison-Wesley (1996).
- [Pen96] J. Pendry, A. Holden, W. Stewart, I. Youngs ; "Extremely low frequency plasmons in metallic mesostructures" ; Physical review letters, 76 (25), 4773–4776, (1996).
- [Pen98] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, W. J. Stewart ; "Low frequency plasmons in thin wire structures," ; J. Phys. Condens. Matter, 10, 4785–4809, (1998).
- [Pen99] J.B. Pendry, A.J. Holden, D.J. Robbins, W.J. Stewart ; "Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena" ; IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 47 (11), 2075–2084, (1999).
- [Pen00] J.B. Pendry ; "Negative Refraction Makes a Perfect Lens" ; Physical review letters, 85 (18), 3966–3969, (2000).
- [Pod09] A. Podzorov ; "Spectroscopie et imagerie térahertz des systèmes d'intérêt biologique" ; Thèse : Physique ; Ecole Polytechnique, (2009).

- [Sch06] D. Schurig, J.J. Mock, B.J. Justice, S.A. Cummer, J.B. Pendry, A.F. Starr, D.R. Smith ; "Metamaterial Electromagnetic Cloak at Microwave Frequencies" ; Science, 314 (5801), 977–980, (2006).
- [She01] R.A. Shelby, D.R. Smith, S. Schultz ; "Experimental verification of a negative index of refraction" ; Science, 292 (5514), 77–9, (2001).
- [Tak10] K. Takano, K. Shibuya, K. Akiyama, T. Nagashima, F. Miyamaru, M. Hangyo ; "A metal-to-insulator transition in cut-wire-grid metamaterials in the terahertz region" ; Journal of Applied Physics, 107 (2), 024907, (2010).
- [Tao08] H. Tao, N.I. Landy, C.M. Bingham, X. Zhang, R.D. Averitt, W.J. Padilla ; "A metamaterial absorber for the terahertz regime : Design, fabrication and characterization" ; Optics Express, 16 (10), 1494–1496. (2008).
- [Tao09] H. Tao, A. Strikwerda, K. Fan, W. Padilla, X. Zhang, R. Averitt ; "Reconfigurable Terahertz Metamaterials" ; Physical Review Letters, 103 (14), 147401, (2009).
- [Ulr67] R. Ulrich ; "Far-infrared properties of metallic mesh and its complementary structure" ; Infrared Physics, 7 (1), 37–55, (1967).
- [Ves68] V. Veselago ; "The electrodynamics of substances with simultaneous negative values of  $\epsilon$  and  $\mu$ " ; Soviet Physics Uspekhi, 10 (4), 509-514, (1968).
- [Wal07] M. Walther, D. Cooke, C. Sherstan, M. Hajar, M. Freeman, F. Hegmann ; "Terahertz conductivity of thin gold films at the metal-insulator percolation transition" ; Physical Review B, 76 (12), 125408, (2007).
- [Woj11] A. Wojdyla ; "Polarisation des impulsions térahertz et développement de l'imagerie par réflexion interne totale pour l'étude d'objets d'intérêt biologique" ; Thèse : Physique ; Ecole Polytechnique, (2011).
- [Zai11] C. Zaichun ; "2D and 3D terahertz metamaterials : design, fabrication and characterization" ; Thèse ; National University of Singapore, (2011).

[Zhu12] Y. Zhu, Y. Zhao, M. Holtz, Z. Fan, A.A. Bernussi ; "Effect of substrate orientation on terahertz optical transmission through VO<sub>2</sub> thin films and application to functional antireflection coatings" ; Journal of the Optical Society of America B, 29 (9), 2373, (2012).



## **Chapitre IV : Perspectives pour les métamatériaux THz accordables à base de VO<sub>2</sub>**



## **IV.1. Introduction**

Dans le troisième chapitre, nous avons démontré qu'il est possible d'utiliser les propriétés de films minces de VO<sub>2</sub> pour réaliser des composants accordables dans la gamme des fréquences THz en intégrant ces films dans des métamatériaux planaires. De plus, nous avons également montré que dans le cas où les films de VO<sub>2</sub> sont réduits sous la forme de motifs, on peut envisager d'utiliser une commande électrique pour déclencher la variation de réponse de la structure, en plus des stimuli thermiques.

Dans la suite de ces résultats, nous voulons mettre en avant plusieurs perspectives sur la réalisation de métamatériaux THz accordables à base de VO<sub>2</sub>. C'est dans ce contexte que s'inscrit le quatrième chapitre de ce manuscrit qui est divisé en deux parties assez distinctes. Il nous faut préciser que pour les nouveaux concepts introduits, nous n'avons pas pu réaliser toutes les mesures en raison de l'indisponibilité du banc de spectroscopie THz-TDS. En premier, nous concentrons nos efforts sur les métamatériaux THz accordables électriquement en montrant qu'il est possible de les faire fonctionner plus proche de la température ambiante. Nous montrons également l'utilisation d'une commande électrique pour des métamatériaux hybrides de type SRR. En second, nous nous intéressons à la problématique de métamatériaux constitués uniquement d'inclusions/ de motifs de VO<sub>2</sub> et les quelques solutions envisagées pour progresser sur ce sujet.

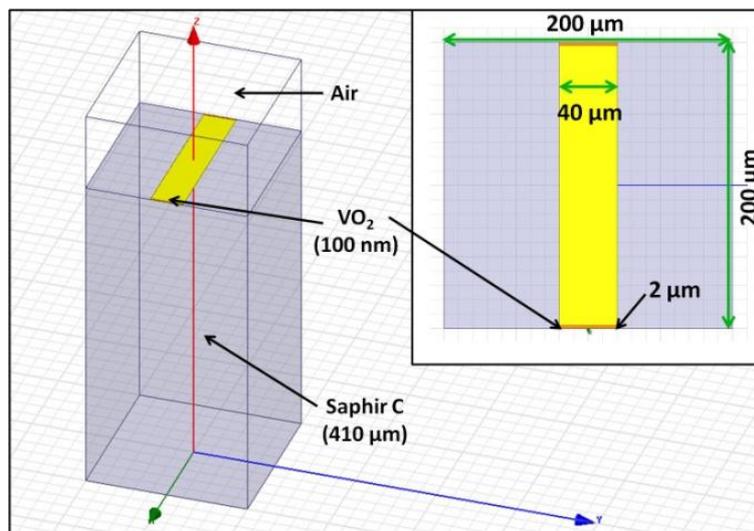
## **IV.2. Perspectives pour les métamatériaux THz accordables électriquement**

Auparavant, nous avons montré la possibilité de réaliser des métamatériaux THz accordables électriquement à base de VO<sub>2</sub> en utilisant des métamatériaux hybrides de type "Cut-Wire-Grid". A présent, nous allons nous intéresser à une amélioration de ces métamatériaux permettant le déclenchement de la variation de réponse de la structure à une tension plus basse ou à une température plus proche de la température ambiante. De plus, nous mettons en évidence la possibilité d'utiliser des motifs de VO<sub>2</sub> dans des métamatériaux de type SRR (Split Ring Resonators) afin de leur donner un comportement accordable. Tout comme pour les métamatériaux de type "Cut-Wire-Grid", nous montrons qu'il est aussi possible d'introduire une accordabilité électrique en insérant des électrodes d'alimentation sans que celles-ci ne modifient fortement la réponse du métamatériau de base.

### IV.2.1. Amélioration de l'accordabilité en tension des métamatériaux "Cut-Wire-Grid"

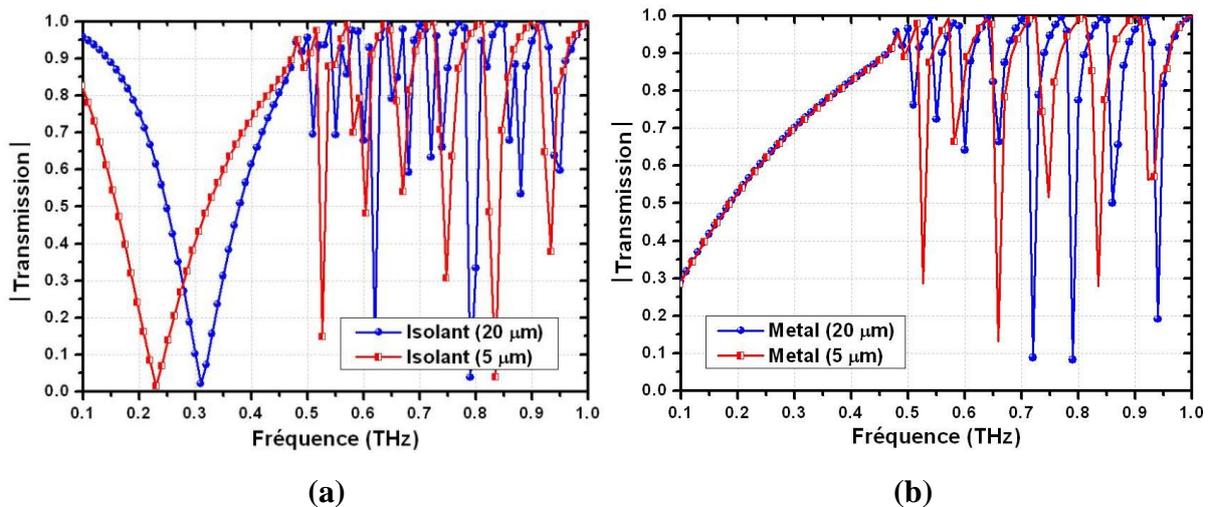
Pour déclencher électriquement la variation de réponse des métamatériaux "Cut-Wire-Grid", il a été nécessaire d'utiliser une tension assez élevée (100 V) et de se placer à une température assez proche de la température de transition. Ainsi, notre premier objectif a été de réaliser des structures accordables à des tensions plus basses ou à des températures plus proches de la température ambiante.

Comme nous l'avons montré à travers le second chapitre de ce manuscrit, le processus à l'origine de la transition MIT des motifs de VO<sub>2</sub>, lors de l'application d'une tension aux bornes de ces derniers, s'apparente à un effet thermique (chauffage par effet Joule). Ainsi, si nous voulons déclencher électriquement la variation de réponse des métamatériaux intégrant des motifs de VO<sub>2</sub> à une température plus proche de la température ambiante, il nous faut tout simplement accentuer les effets thermiques dans les motifs de VO<sub>2</sub>. Parmi les différentes solutions possibles, la plus simple consiste à utiliser des motifs de VO<sub>2</sub> de longueurs de plus en plus petites. Nous avons ainsi conçu un nouveau métamatériau de type "Cut-Wire-Grid", qui est présenté sur la **Figure IV.1**. Dans cette structure, nous avons fixé la longueur des motifs de VO<sub>2</sub> à 4  $\mu\text{m}$ , autrement-dit les motifs de VO<sub>2</sub> intégrés sont 5 fois moins longs que les motifs utilisés dans le métamatériau "Cut-Wire-Grid" proposé dans le chapitre III.



**Figure IV.1 : Cellule unitaire d'un métamatériau de type "Cut-Wire-Grid" intégrant des motifs de VO<sub>2</sub> de 4  $\mu\text{m}$  de longueur.**

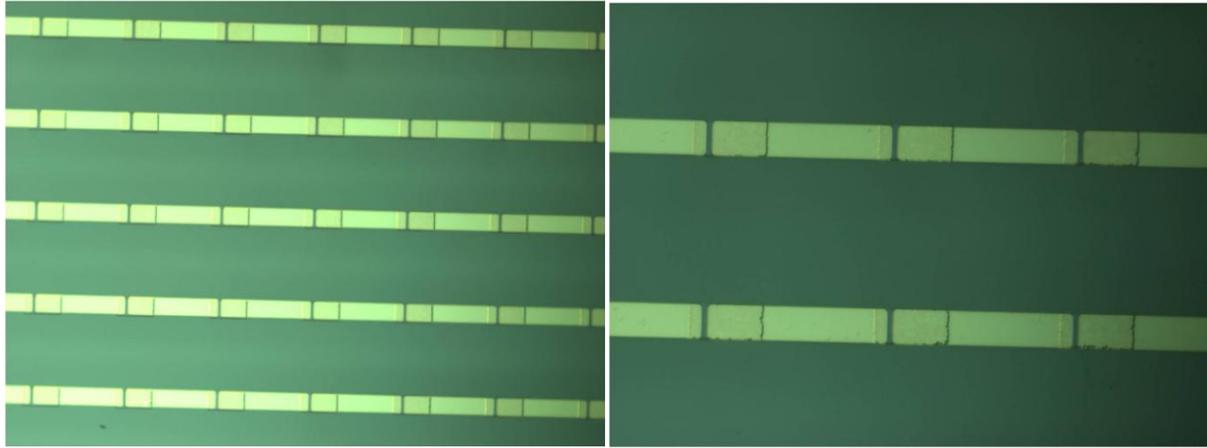
Afin d'étudier l'impact d'une diminution de la longueur des motifs sur la réponse du dispositif, nous avons réalisé des simulations électromagnétiques de cette structure pour les deux états du motif de VO<sub>2</sub>. Sur la **Figure IV.2** nous avons ainsi reporté les transmissions THz obtenues par simulation pour le métamatériau présentant des motifs de 4  $\mu\text{m}$  et celui présentant des motifs de 20  $\mu\text{m}$ . On constate que la diminution de la longueur des motifs n'engendre pas d'important changement dans le phénomène d'accordabilité en lui-même. On retrouve le passage d'un comportement de type filtre stop-bande, lorsque le motif de VO<sub>2</sub> est à l'état isolant, vers une réponse de type polariseur, lorsque le motif passe à l'état métallique.



**Figure IV.2 : Comparaison des transmissions THz obtenues par simulation du métamatériau "Cut-Wire-Grid" intégrant des motifs de VO<sub>2</sub> de 4  $\mu\text{m}$  de longueur avec celles du métamatériau "Cut-Wire-Grid" intégrant des motifs de 20  $\mu\text{m}$ , pour l'état isolant en (a) et l'état métallique en (b), dans le cas où la polarisation de l'onde incidente est parallèle aux lignes métalliques.**

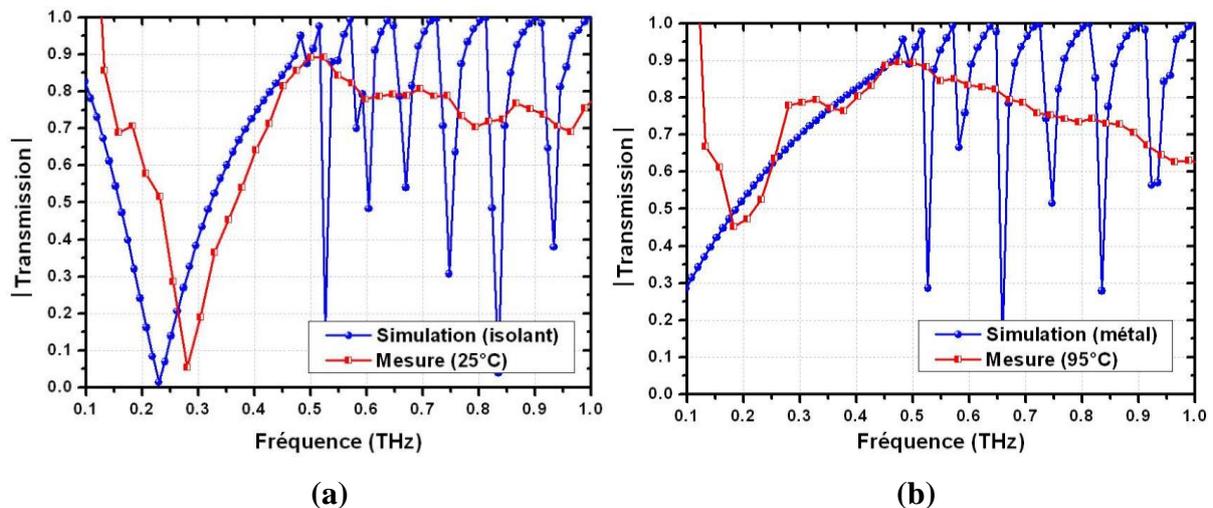
Néanmoins, on note qu'à l'état isolant, en diminuant la longueur des motifs de VO<sub>2</sub>, la résonance se décale vers une fréquence moins élevée. Cette variation est causée par une augmentation de la capacité du dispositif qui est inversement proportionnelle à la fréquence de résonance. Mais cette variation pourrait être compensée en faisant varier l'inductance du métamatériau, autrement-dit la largeur des lignes.

En utilisant les techniques de micro-fabrication déjà décrites auparavant ainsi que dans l'**Annexe 2**, nous avons, ensuite, procédé à la fabrication du métamatériau "Cut-Wire-Grid" dont des images obtenues par microscopie optique sont présentées sur la **Figure IV.3**.



**Figure IV.3 : Images obtenues par microscopie optique du métamatériau "Cut-Wire-Grid" intégrant des motifs de VO<sub>2</sub> de 4  $\mu\text{m}$  de longueur.**

Après cette phase de fabrication, nous avons procédé à une série de mesures sur le métamatériau réalisé en utilisant la spectroscopie THz-TDS. Sur la **Figure IV.4**, les transmissions mesurées pour les deux états du motif de VO<sub>2</sub> sont ainsi, représentées et comparées aux transmissions obtenues par simulation.



**Figure IV.4 : Comparaison entre les transmissions THz obtenues par simulation et celles mesurées du métamatériau "Cut-Wire-Grid" avec des motifs de VO<sub>2</sub> de 4  $\mu\text{m}$ , pour l'état isolant (25°C), en (a), et l'état métallique (95°C), en (b), dans le cas où la polarisation est parallèle à l'axe des lignes métalliques.**

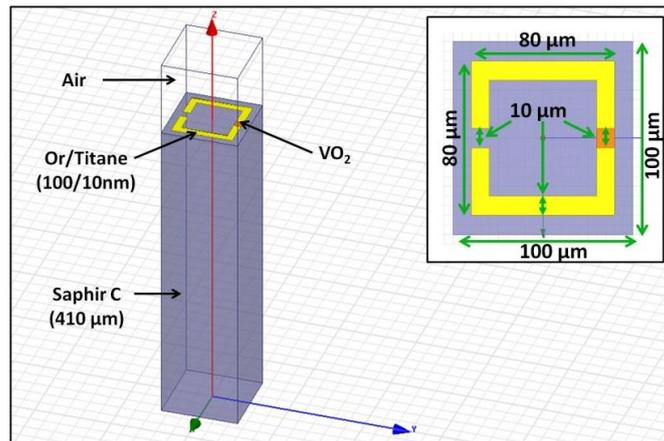
En comparant, tout d'abord, les mesures à 25°C et à 95°C, on peut noter que la réponse du métamatériau reste fortement sensible à l'état des motifs de VO<sub>2</sub> malgré la diminution d'un facteur 5 de la proportion de VO<sub>2</sub> présente dans le métamatériau global. Ensuite, si l'on

s'intéresse plus particulièrement à l'état isolant des motifs de VO<sub>2</sub>, on remarque que la fréquence de résonance mesurée est décalée vers des fréquences plus élevées. Cette différence de comportement est causée par un problème de gravure qui a conduit à la formation de motifs de VO<sub>2</sub> de longueurs plus importantes. On constate, néanmoins, que la fréquence de résonance du nouveau métamatériau (0.28 THz) est inférieure à celle du métamatériau possédant un gap de 20 μm (> 0.3 THz) ce qui devrait donc conduire à un déclenchement électrique de la variation de réponse à une température plus proche de l'ambiante par rapport à la structure d'origine. Enfin, à l'état métallique, on constate que la réponse du métamatériau réalisé est encore éloignée des simulations. Nous supposons que cette différence est à la fois liée aux différences de dimensions entre la structure modélisée et la structure réelle mais également entre la conductivité réelle du film de VO<sub>2</sub> et celle de l'or qui est utilisée pour les simulations.

Malheureusement, le banc de spectroscopie THz-TDS nous ayant fait défaut, il nous a été impossible d'effectuer des mesures sur l'effet d'une commande électrique sur la réponse de ce métamatériau. Néanmoins, ces résultats qui montrent que les effets de la transition MIT se conservent avec des motifs de VO<sub>2</sub> de plus en plus petits nous permettent d'envisager de nouvelles possibilités pour les métamatériaux intégrant ces motifs. En utilisant d'autres techniques de micro-fabrication, on peut imaginer la réalisation de métamatériaux à base de VO<sub>2</sub> avec des cellules unitaires qui présentent des dimensions de plus en plus petites permettant de réaliser des dispositifs à des fréquences de fonctionnement de plus en plus élevées.

#### **IV.2.2. Des métamatériaux SRR accordables électriquement**

Jusqu'à présent, nous avons uniquement étudié la possibilité de réaliser des composants THz accordables électriquement en utilisant des métamatériaux hybrides à lignes métalliques ou des structures dérivées. De ce fait, il nous est apparu intéressant d'étudier le cas des composants avec des cellules unitaires de type SRR dont un exemple de topologie est présenté sur la **Figure IV.5**. En l'occurrence, la cellule unitaire de ce SRR est composée d'un unique anneau fendu.

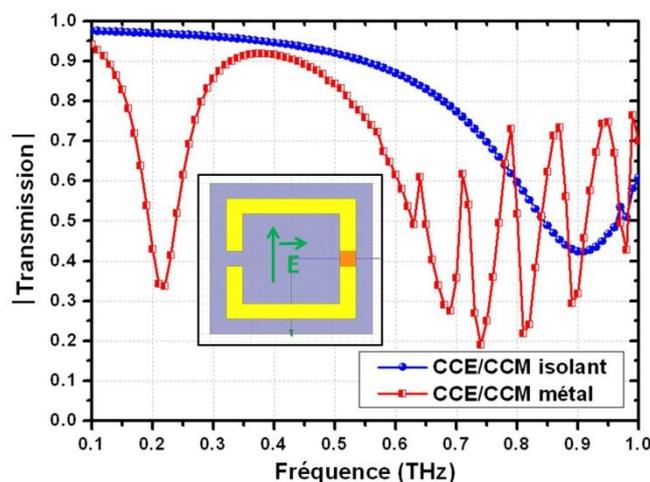


**Figure IV.5 : Cellule unitaire d'un métamatériau de type SRR présentant un unique anneau fendu et intégrant un motif de VO<sub>2</sub>.**

#### IV.2.2.1. Métamatériaux SRR accordables thermiquement

Comme pour les métamatériaux "Cut-Wire-Grid" intégrant des motifs de VO<sub>2</sub>, nous avons, dans un premier temps, voulu mettre en évidence l'effet produit par l'insertion d'un motif de VO<sub>2</sub> dans le métamatériau SRR proposé.

Pour cela, nous avons, tout d'abord, réalisé des simulations électromagnétiques en utilisant des conditions de type CCE/ CCM comme pour les métamatériaux "Cut-Wire-Grid". Les résultats de ces simulations qui sont reportés sur la **Figure IV.6** mettent alors en évidence une variation de réponse assez importante entre l'état isolant et l'état métallique des motifs de VO<sub>2</sub>.



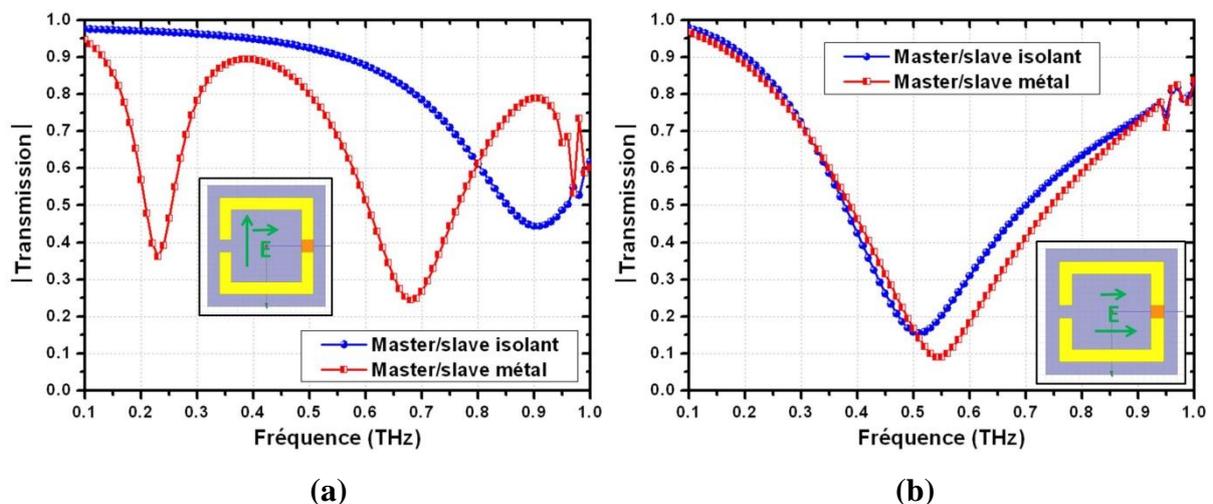
**Figure IV.6 : Transmissions THz obtenues par simulation du métamatériau à anneau fendu pour les deux états du motif de VO<sub>2</sub> (isolant – métallique) en utilisant des**

### conditions de type CCE/ CCM, pour un champ électrique parallèle à la ligne contenant le motif de VO<sub>2</sub>.

On note, toutefois, la présence d'un phénomène d'oscillations au-dessus de 0.6 THz à l'état métallique. Dans le cas où ce phénomène serait présent pour les deux états, nous aurions pu penser que cette zone correspondait à la zone où le métamatériau présentait un comportement diélectrique. Mais, en l'occurrence, étant donné qu'il est uniquement présent à l'état métallique, nous pensons que ce phénomène d'oscillations est un artefact causé par des effets de bord qui ne sont pas pris en compte par les conditions de type CCE/ CCM que l'on utilise dans les simulations (voir **Annexe 3**).

En supposant que cet artefact soit causé par les effets de bord, nous avons donc effectué de nouvelles simulations en utilisant des conditions de simulations électromagnétiques de type Master/ Slave (**Annexe 3**). Contrairement aux conditions de symétrie de type CCE/ CCM, les conditions de type Master/ Slave sont spécifiquement conçues pour modéliser des conditions de périodicité. Dans ce but, on peut distinguer deux particularités des conditions Master/ Slave par rapport aux conditions CCE/ CCM. Tout d'abord, elles imposent une différence de phase entre le champ électrique appliqué sur la surface dite "Slave" par rapport à la surface dite "Master". De plus, ces conditions ne nécessitent pas que le champ électrique soit tangentiel ou normal aux limites.

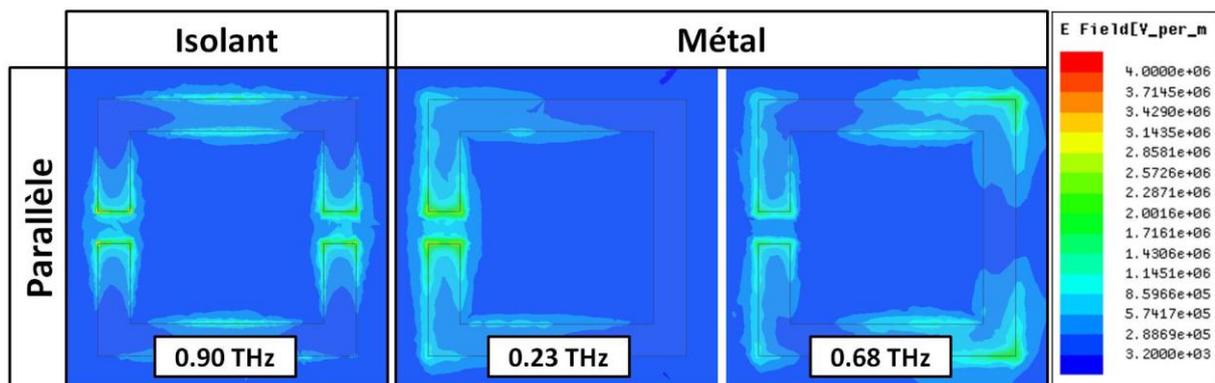
Sur la **Figure IV.7** qui présente les résultats de ces nouvelles simulations, on retrouve alors une transmission à l'état métallique où le phénomène d'oscillations n'apparaît qu'au-dessus de 0.95 THz tout comme pour l'état isolant. Ainsi, cette fréquence devrait correspondre à la fréquence plasma de la structure.



**Figure IV.7 : Transmissions THz obtenues par simulation du métamatériau à anneau fendu pour les deux états du motif de VO<sub>2</sub> en utilisant des conditions de type Master/ Slave pour un champ électrique parallèle, en (a), et perpendiculaire, en (b), à la ligne contenant le motif de VO<sub>2</sub>.**

Si l'on se concentre, à présent, sur l'effet produit par le changement d'état des motifs de VO<sub>2</sub>, on constate que la variation de réponse la plus importante s'observe lorsque le champ électrique est parallèle aux lignes métalliques contenant les motifs. Dans ces conditions, on passe d'une transmission pour l'état isolant présentant une seule résonance, à une fréquence d'environ 0.9 THz, vers une transmission pour l'état métallique qui présente deux résonances distinctes, à des fréquences de l'ordre de 0.2 et 0.7 THz (**Figure IV.7 a**). En revanche, lorsque le champ électrique est perpendiculaire aux lignes métalliques contenant les motifs de VO<sub>2</sub>, le changement d'état du motif de VO<sub>2</sub> ne provoque qu'un léger décalage en fréquence et en amplitude de l'unique phénomène de résonance présent (**Figure IV.7 b**).

Sur la **Figure IV.8** sont représentées les distributions du champ électrique, pour la polarisation parallèle, à chaque résonance de l'état isolant et de l'état métallique. On note que la répartition du champ électrique pour la résonance de l'état isolant (à 0.9 THz) ne correspond à aucune des distributions du champ aux résonances observées à l'état métallique (à 0.23 THz et 0.68 THz). Ainsi, dans ce métamatériau, aucun des modes de résonance présents dans cette gamme de fréquences à l'état métallique ne correspond au mode de résonance présent à l'état isolant.



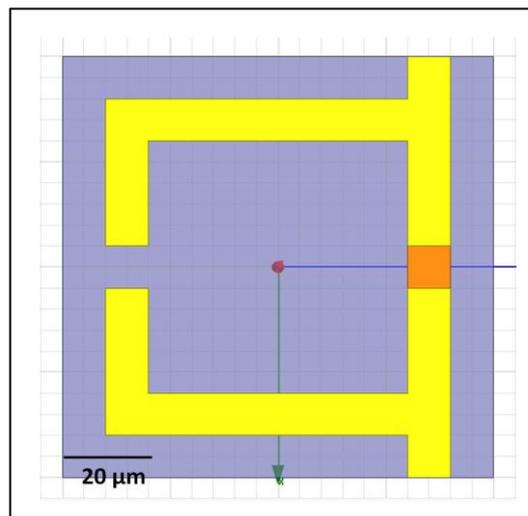
**Figure IV.8 : Distribution du champ électrique dans la cellule unitaire du métamatériau à anneau fendu pour différentes fréquences (pour l'état isolant à 0.9 THz, pour l'état métallique à 0.23 THz et 0.68 THz) dans le cas d'une polarisation parallèle de l'onde incidente.**

En conclusion, comme pour les métamatériaux "Cut-Wire-Grid", il est possible de réaliser des métamatériaux accordables de type SRR en intégrant dans leur structure des motifs de VO<sub>2</sub>. En l'occurrence, on peut envisager de déclencher la transition MIT des motifs de VO<sub>2</sub> et par conséquent, la variation de réponse, en utilisant des stimuli thermiques.

#### IV.2.2.2. Introduction d'électrodes pour une commande électrique

Après avoir étudié la possibilité de réaliser des métamatériaux THz de type SRR accordables de façon thermique, nous avons recherché à insérer dans leur design des électrodes pour déclencher électriquement la variation de réponse puisque, contrairement aux métamatériaux "Cut-Wire-Grid", leur structure ne fait pas naturellement office d'électrodes.

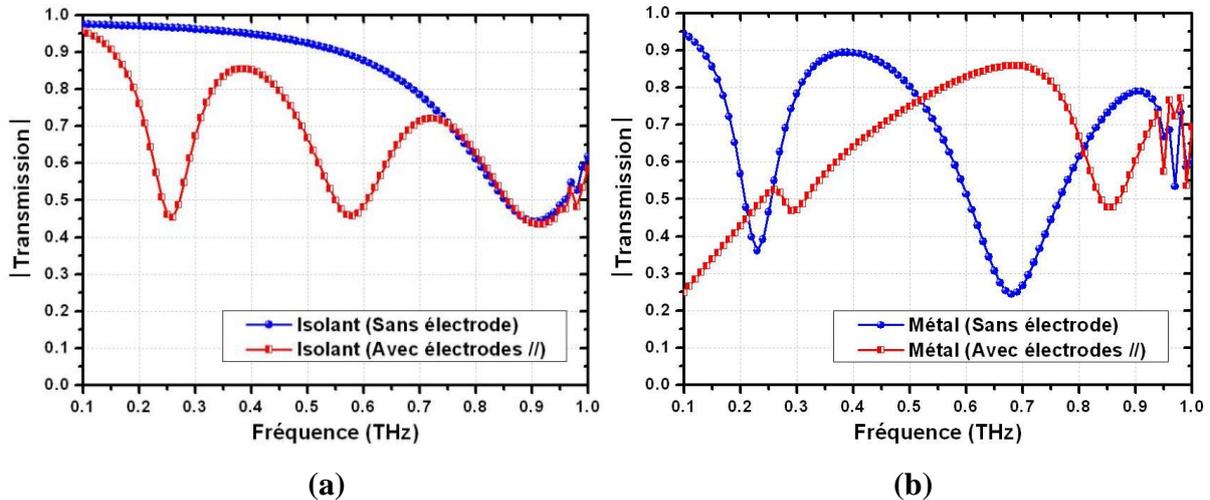
Pour cela, nous avons, dans un premier temps, envisagé de superposer au métamatériau de type SRR une structure de type "Cut-Wire-Grid" où les électrodes de commande sont parallèles aux lignes contenant les motifs de VO<sub>2</sub>. La cellule unitaire de la nouvelle structure ainsi obtenue est présentée sur la **Figure IV.9**.



**Figure IV.9 : Cellule unitaire du métamatériau de type SRR présentant un unique anneau fendu avec l'intégration des électrodes parallèles aux lignes intégrant les motifs de VO<sub>2</sub>.**

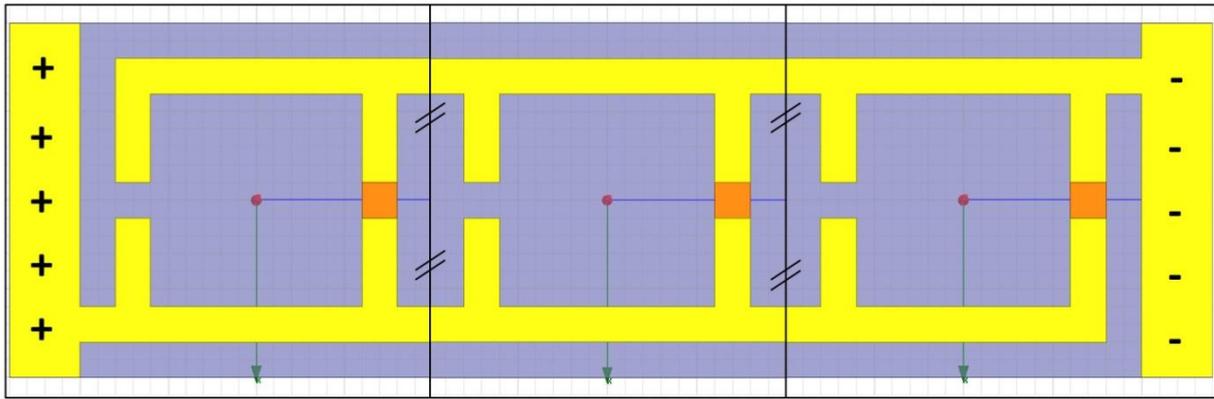
Dans ce cadre, nous nous sommes alors uniquement concentrés sur la polarisation parallèle aux lignes contenant les motifs de VO<sub>2</sub> car c'est pour cette polarisation que l'on observe la plus grande variation de réponse entre les deux états du VO<sub>2</sub>. Sur la **Figure IV.10** sont représentées les transmissions THz obtenues par simulation, pour les deux états du VO<sub>2</sub>, du métamatériau avec et sans électrode(s). Nous notons que l'ajout des électrodes de

commande introduit une variation notable dans la réponse de la structure. D'un côté, avec le VO<sub>2</sub> à l'état isolant, l'insertion des électrodes provoque l'apparition de nouveaux phénomènes de résonance. De l'autre côté, pour l'état métallique du VO<sub>2</sub>, on observe, notamment, l'apparition d'un effet de type polariseur dans la réponse du métamatériau.



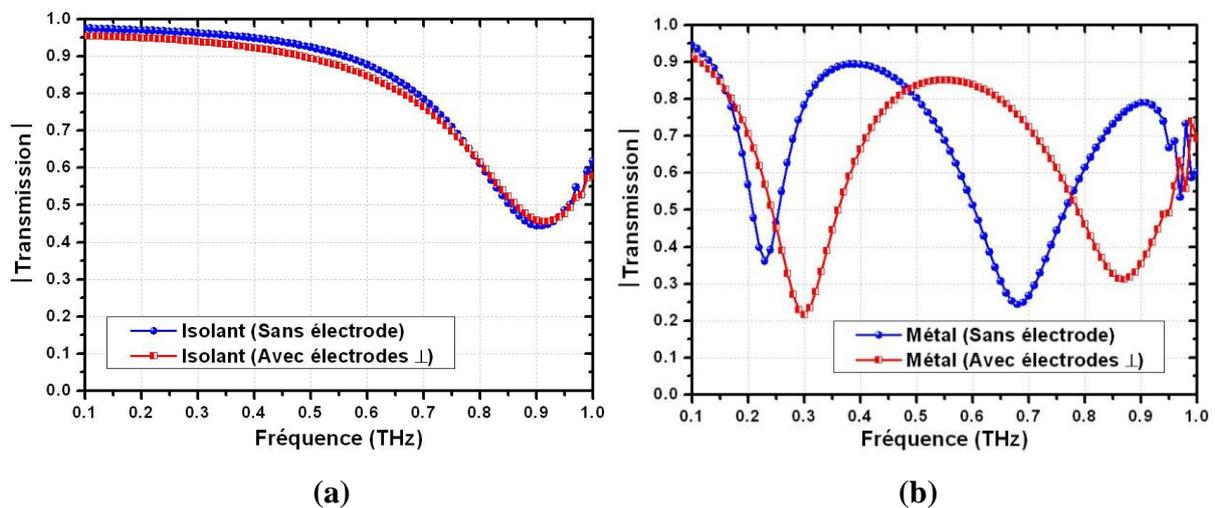
**Figure IV.10 : Comparaison des transmissions THz du métamatériau à anneau fendu obtenues par simulation, avec et sans électrodes parallèles aux lignes intégrant les motifs de VO<sub>2</sub>, pour l'état isolant en (a) et l'état métallique en (b).**

Pour minimiser les effets des électrodes sur la transmission du métamatériau SRR, nous avons donc recherché de nouvelles configurations pour les insérer. Or, comme nous l'avons montré précédemment, les métamatériaux à lignes métalliques se comportent comme des polariseurs. Ainsi, lorsque ces lignes métalliques sont parallèles au champ électrique, elles ont tendance à bloquer la transmission de l'onde incidente mais, au contraire, lorsqu'elles sont perpendiculaires au champ électrique, elles permettent une transmission quasiment parfaite. En prenant en compte ces observations, nous avons conçu un métamatériau de type SRR qui est illustré sur la **Figure IV.11** où nous avons inséré des électrodes qui sont perpendiculaires aux lignes contenant les motifs. Ainsi, en théorie, ces électrodes ne devraient pas perturber la réponse du métamatériau lorsque le champ électrique est orienté parallèlement aux lignes métalliques contenant les motifs de VO<sub>2</sub>, (orientation selon laquelle on observe la plus grande variation de réponse). En regardant attentivement la **Figure IV.11**, on s'aperçoit que chaque cellule est parcourue par deux électrodes horizontales. L'intérêt de ces deux électrodes est d'obliger le courant de commande à circuler dans les motifs, en reliant les électrodes (inférieures et supérieures) aux bornes d'alimentation du circuit ainsi créé.



**Figure IV.11** : Schéma du métamatériau de type SRR présentant un unique anneau fendu avec un exemple d'implémentation des électrodes qui parcourent le métamatériau de manière perpendiculaire aux lignes intégrant les motifs de VO<sub>2</sub>.

Sur la **Figure IV.12** qui présente les résultats des simulations de cette nouvelle topologie, on constate que pour l'état isolant des motifs de VO<sub>2</sub>, les électrodes ne perturbent pratiquement plus la réponse du métamatériau d'origine. En revanche, la présence des électrodes perturbe quant même la réponse à l'état métallique. Néanmoins, ces perturbations se limitent à des variations au niveau de l'amplitude de la transmission et de la largeur des lobes de résonance dont les effets doivent pouvoir être réduits en optimisant la forme et la dimension de la structure.



**Figure IV.12** : Comparaison des transmissions THz du métamatériau à anneau fendu obtenues par simulation, avec et sans électrodes perpendiculaires aux lignes intégrant les motifs de VO<sub>2</sub>, pour l'état isolant en (a) et l'état métallique en (b), dans le cas d'une polarisation incidente parallèle aux lignes intégrant les motifs de VO<sub>2</sub>.

Ainsi, cette nouvelle configuration permet de garder les deux comportements observés dans la structure de base avec une réponse présentant une unique résonance à l'état isolant et des résonances multiples à l'état métallique.

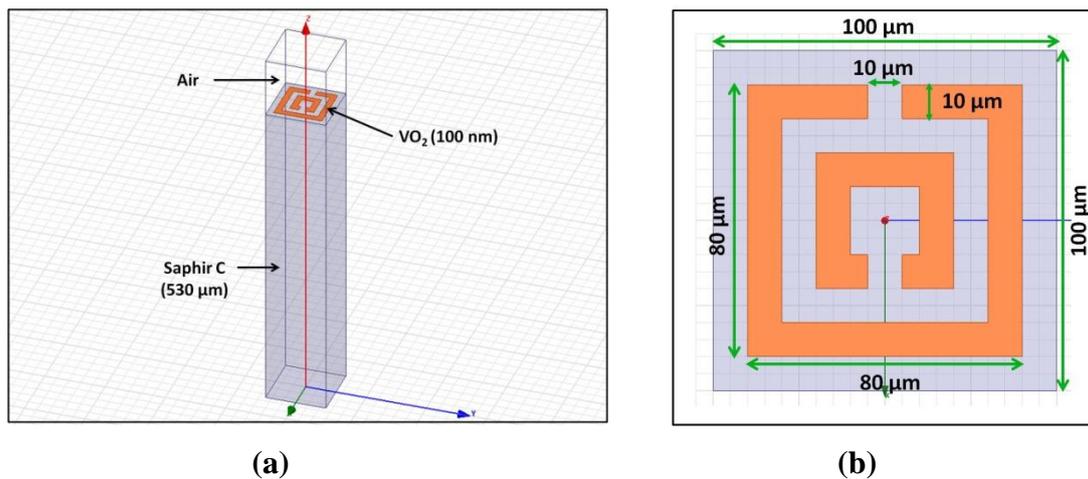
Pour conclure sur cette première sous partie pour laquelle il ne nous a pas été possible de réaliser toutes les mesures nécessaires, nous pouvons, tout d'abord, mentionner que l'on peut envisager de réaliser des métamatériaux à base de motifs de VO<sub>2</sub> accordables électriquement à des températures plus proches de la température ambiante. Pour cela, on peut tout simplement utiliser des motifs de plus petites longueurs. Ensuite, à l'aide de simulations électromagnétiques, nous avons montré la possibilité d'intégrer des motifs de VO<sub>2</sub> dans des métamatériaux de type SRR pour leur donner une réponse accordable. Dans cette configuration, on a également constaté que, tout comme pour les métamatériaux "Cut-Wire-Grid", la variation de réponse la plus significative est visible lorsque le champ électrique incident est parallèle aux lignes métalliques contenant les motifs de VO<sub>2</sub>. Enfin, pour déclencher la variation de réponse à l'aide d'une commande électrique, il nous faut alors ajouter un système d'électrodes qui doit être inséré orthogonalement au champ électrique.

### **IV.3. Métamatériaux THz accordables avec des structures entièrement en VO<sub>2</sub>**

Dans les métamatériaux THz accordables que nous avons proposés auparavant, l'accordabilité est obtenue en rajoutant le matériau VO<sub>2</sub> soit sous forme de film soit sous forme de motifs dans la structure métallique de base. Alternativement, on peut imaginer une conception de métamatériaux dont les structures sont uniquement composées de VO<sub>2</sub>. L'objectif de ce type de métamatériaux est de pouvoir passer d'un comportement quasi-transparent (à température ambiante, lorsque le VO<sub>2</sub> est isolant) à un comportement fortement résonant, caractéristique d'un état métallique du VO<sub>2</sub>, pour des températures situées au-dessus de la température de transition MIT. De plus, les effets de la transition MIT dans le domaine THz étant assez progressifs lors d'une stimulation thermique, on peut obtenir une variation continue de la réponse du métamatériau réalisé uniquement en VO<sub>2</sub>.

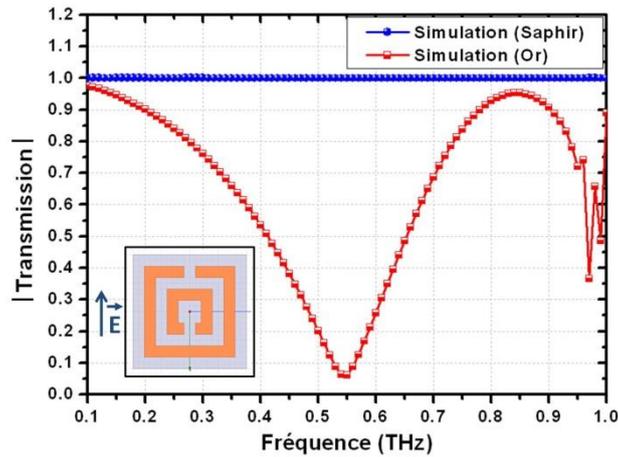
### IV.3.1. Réponse non optimisée d'un métamatériau THz avec une structure à base de VO<sub>2</sub>

Dans la perspective de réaliser des métamatériaux avec une structure de base en VO<sub>2</sub>, nous nous sommes intéressés au métamatériau dont la cellule unitaire est présentée sur la **Figure IV.13**. La structure de ce métamatériau est formée par des motifs/ inclusions de type SRR entièrement en VO<sub>2</sub> obtenues à partir d'un film de VO<sub>2</sub> de 100 nm d'épaisseur, déposé sur un substrat de saphir c de 530 μm d'épaisseur.



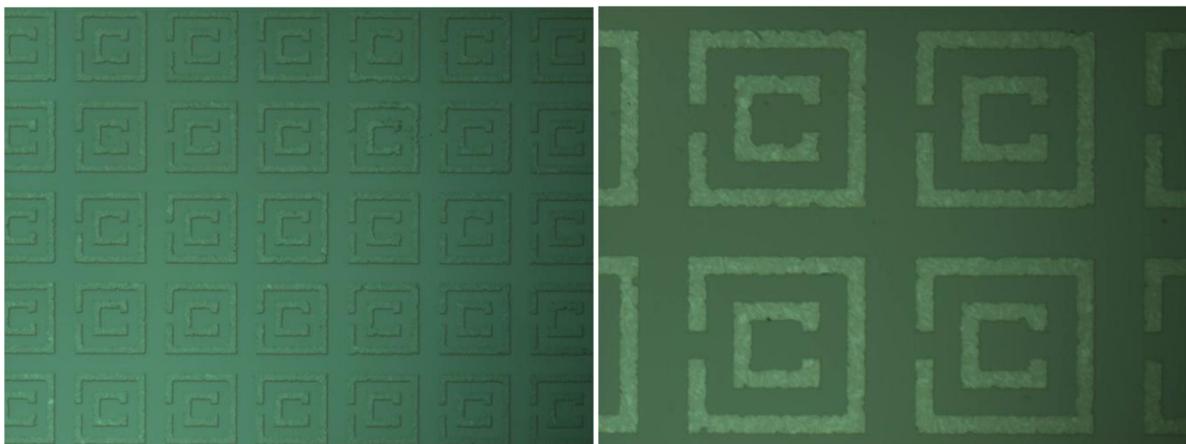
**Figure IV.13 : Cellule unitaire du métamatériau proposé avec une structure à base de VO<sub>2</sub> de type SRR à deux anneaux fendus imbriqués avec une vue 3D en (a) et une vue de dessus en (b).**

Dans un premier temps, nous avons réalisé des simulations dans lesquelles nous avons pris le cas idéal ; ainsi, pour l'état isolant, nous avons considéré que le VO<sub>2</sub> présente les mêmes caractéristiques que le substrat de saphir c et pour l'état métallique, nous avons utilisé les caractéristiques de l'or pour décrire les propriétés du VO<sub>2</sub>. Sur la **Figure IV.14**, nous avons alors recensé les transmissions THz obtenues par simulation du métamatériau proposé pour les deux états du VO<sub>2</sub> dans le cas où la polarisation est orientée parallèlement à l'axe sur lequel se situent les deux gaps des anneaux. Nous constatons que la réponse du métamatériau avec une structure en VO<sub>2</sub> passe d'une transmission quasi-parfaite lorsque le VO<sub>2</sub> est à l'état isolant vers le comportement d'un filtre stop-bande pour l'état métallique. En l'occurrence, on peut préciser que la résonance se produit à une fréquence de 0.55 THz avec une transmission à cette fréquence de l'ordre de 5 %.



**Figure IV.14 :** Transmissions THz obtenues par simulation du métamatériau avec une structure en VO<sub>2</sub> présenté dans la Figure IV.13 pour l'état isolant du VO<sub>2</sub> (caractéristiques du substrat de saphir) et pour l'état métallique (caractéristiques d'un bon métal, or) pour une polarisation parallèle à l'axe contenant les deux gaps des anneaux.

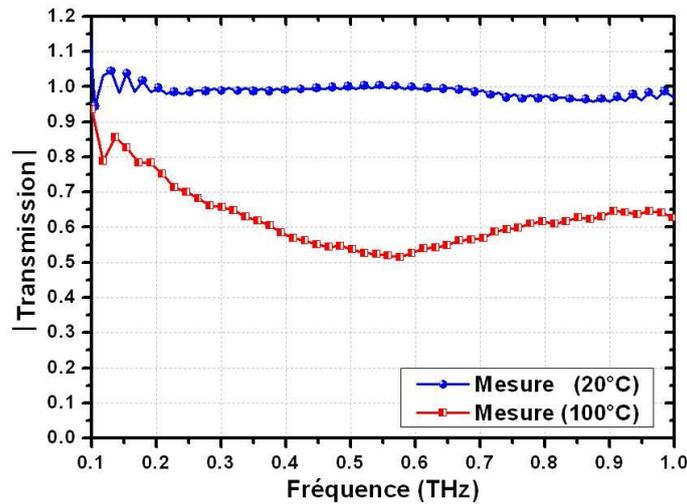
A la suite de ces résultats de simulations, nous avons alors procédé à la réalisation du métamatériau dont la **Figure IV.15** présente des images par microscopie optique des dispositifs fabriqués.



**Figure IV.15 :** Images par microscopie optique du métamatériau avec une structure en VO<sub>2</sub> de 100 nm d'épaisseur fabriqué sur un substrat de saphir c de 530  $\mu\text{m}$ .

En utilisant la technique de spectroscopie THz-TDS, nous avons, ensuite, mesuré les transmissions du métamatériau réalisé (pour l'état isolant et pour l'état métallique du VO<sub>2</sub>) dans le cas d'un champ électrique orienté parallèlement à l'axe contenant les deux gaps des

anneaux. Sur la **Figure IV.16** où sont représentés ces résultats de mesures de transmission THz, on note qu'à l'état isolant du VO<sub>2</sub> (20°C), la transmission est quasi-parfaite (correspondant aux résultats de simulations) alors qu'à l'état métallique du VO<sub>2</sub> (100°C), la transmission a diminué, avec la présence d'un minimum de transmission à 0.55 THz qui doit correspondre à la résonance de la structure. Ces résultats montrent donc la validité du concept que nous avons mis en œuvre.



**Figure IV.16 : Transmissions THz mesurées pour les deux états du VO<sub>2</sub> pour le métamatériau avec une structure en VO<sub>2</sub> présenté dans la Figure IV.13.**

En revanche, si l'on compare les mesures avec les simulations électromagnétiques, on s'aperçoit que la résonance de la structure à l'état métallique du VO<sub>2</sub> est beaucoup moins importante, avec une transmission minimum qui ne descend plus au dessous de 50 %.

### IV.3.2. Améliorations des métamatériaux avec des structures en VO<sub>2</sub>

Pour améliorer la réponse des métamatériaux avec des structures en VO<sub>2</sub> (notamment, pour l'état métallique du matériau VO<sub>2</sub>), nous nous sommes intéressés à la relation **IV.1** permettant de déterminer la transmission THz d'un film mince métallique (dont le détail du calcul est présenté dans l'**Annexe 4**).

$$T'_{\text{film}}(\omega) = \frac{\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega)}{\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega) + \sigma_{\text{film}}(\omega)L_{\text{film}}Z_0} \quad (\text{IV. 1})$$

avec :

$n_{\text{air}}(\omega)$ ,  $n_{\text{substrat}}(\omega)$  : indices de réfraction, respectifs, du substrat et de l'air ;

$\sigma_{\text{film}}(\omega)$  : conductivité du film ;

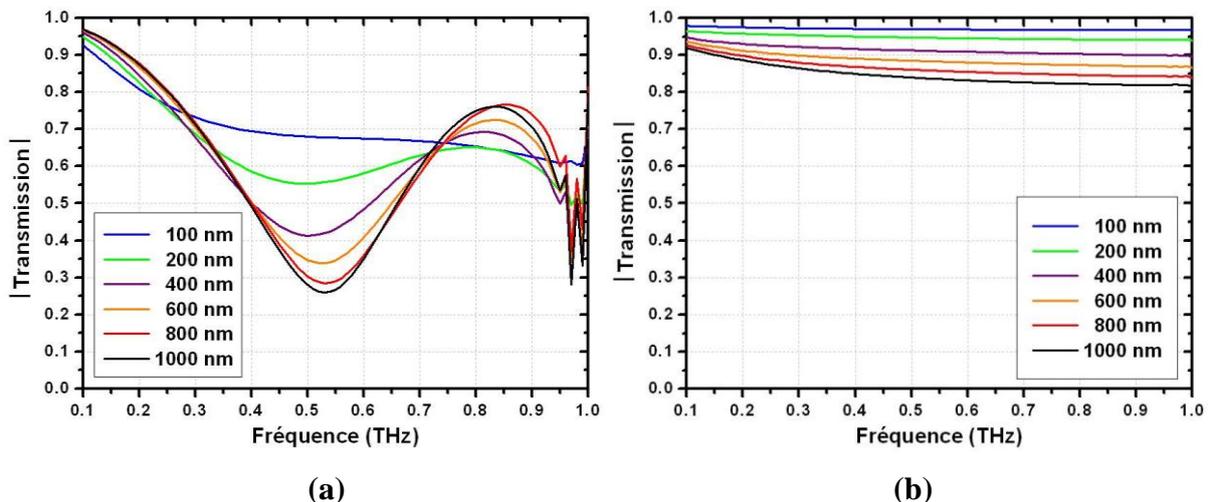
$L_{\text{film}}$  : épaisseur du film ;

$Z_0$  : impédance du vide.

Dans cette relation, on constate que la transmission du film est inversement proportionnelle à la conductivité et à l'épaisseur de ce dernier. Par conséquent, c'est sur deux paramètres qu'il nous faut nous concentrer afin d'optimiser la transmission du film de VO<sub>2</sub> à l'état métallique et ainsi, augmenter le phénomène de résonance dans les métamatériaux avec des structures en VO<sub>2</sub>.

Tout d'abord, nous nous sommes intéressés à l'effet de l'épaisseur du film de VO<sub>2</sub> en réalisant différentes simulations où l'on a fait varier l'épaisseur des motifs de VO<sub>2</sub> tout en fixant la conductivité du film de VO<sub>2</sub> à une valeur de 450 kS.m<sup>-1</sup>, qui correspond à la conductivité moyenne des films de VO<sub>2</sub> à l'état métallique. Pour l'état isolant, nous avons choisi une valeur de conductivité qui est assez élevée, de 10 kS.m<sup>-1</sup>, par rapport à la conductivité estimée des films de VO<sub>2</sub> à température ambiante. Cette valeur nous permettra d'avoir un certain recul sur la dégradation de la réponse du métamatériau pour l'état isolant.

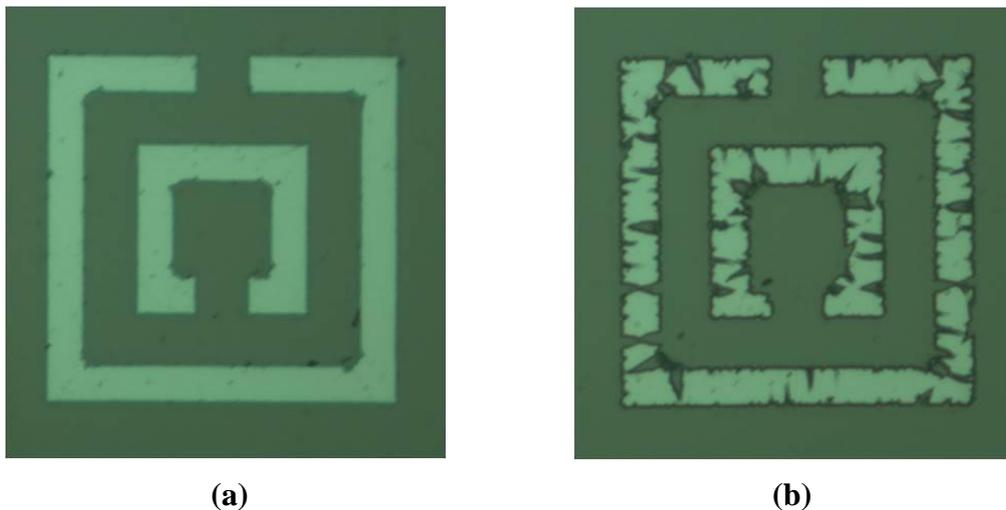
Sur la **Figure IV.17a** sont représentées les transmissions THz simulées du métamatériau SRR pour différentes épaisseurs de VO<sub>2</sub> lorsque le matériau est métallique. Nous constatons qu'une augmentation de l'épaisseur du film de VO<sub>2</sub> permet d'augmenter l'effet de résonance avec une transmission à 0.55 THz qui passe d'environ 70 % à 25 % entre le film de 100 nm et celui de 1000 nm d'épaisseur.



**Figure IV.17 : Effet de l'épaisseur des inclusions de VO<sub>2</sub> sur la transmission THz du métamatériau SRR pour les deux états du matériau de la structure de base : l'état métallique en (a) et l'état isolant en (b).**

Néanmoins, sur la **Figure IV.17b** qui présente les simulations de la transmission du métamatériau pour différentes épaisseurs lorsque le VO<sub>2</sub> est isolant, on note que la réponse du métamatériau dans cet état se dégrade avec l'augmentation de l'épaisseur, même si ce phénomène reste d'ampleur limitée.

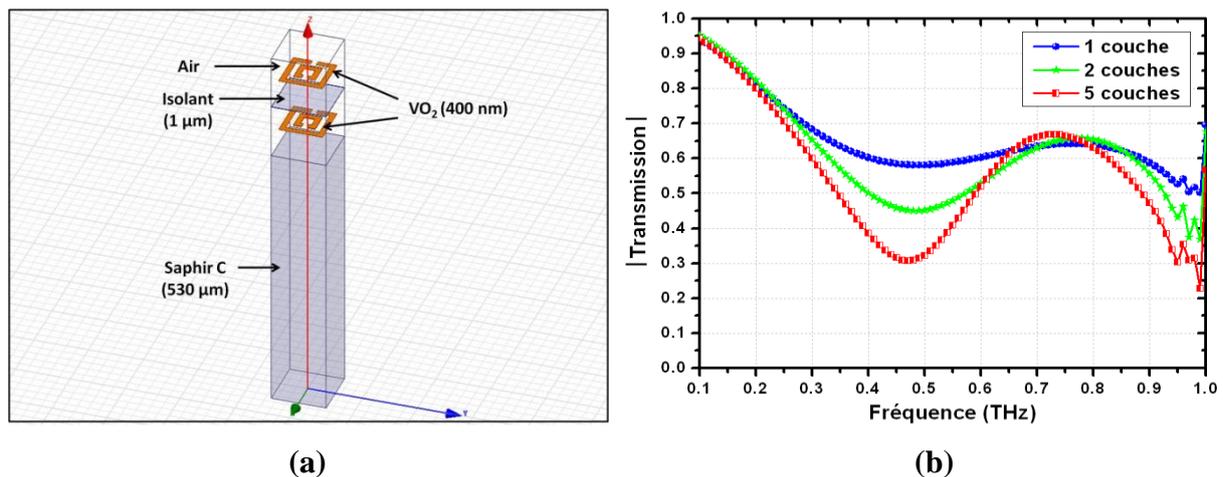
Pour vérifier ces résultats de simulations, nous avons, alors, voulu fabriquer le métamatériau proposé en utilisant deux films de VO<sub>2</sub> présentant une épaisseur respective de 400 nm et 600 nm. Toutefois, cette étape de fabrication a mis en évidence la difficulté de réaliser des films de VO<sub>2</sub> de forte épaisseur. Sur la **Figure IV.18** qui montre l'image d'une cellule unitaire pour chacun des deux métamatériaux réalisés, on constate que la structure de 400 nm d'épaisseur présente un aspect satisfaisant. Par contre, la structure de 600 nm d'épaisseur est fortement dégradée. La forte épaisseur du film de VO<sub>2</sub> provoque un détachement partiel de ce dernier du substrat de saphir, probablement à cause de fortes contraintes mécaniques développées lors des dépôts présentant des épaisseurs supérieures à 400 nm.



**Figure IV.18** : Images par microscopie optique des cellules unitaires des métamatériaux réalisés à partir d'un film de VO<sub>2</sub> de 400 nm d'épaisseur, en (a), et 600 nm d'épaisseur, en (b), déposés sur un substrat de saphir c.

Dans ce cas, il devient donc difficile de réaliser des métamatériaux à inclusions de VO<sub>2</sub> présentant une réponse métallique fortement résonante en raison de la limite expérimentale pour la fabrication des films de VO<sub>2</sub> avec une bonne adhérence sur les substrats (dans les conditions de dépôts optimisées pour leur réalisation par la méthode PLD). Une étude sur l'optimisation des conditions expérimentales de dépôts permettra probablement de repousser cette limitation de fabrication.

Mais pour contourner cette difficulté, nous pouvons également envisager la réalisation de métamatériaux multicouches, en empilant des couches successives de métamatériaux planaires avec des structures en VO<sub>2</sub> de plus faibles épaisseurs entre lesquelles on intercale des couches isolantes transparentes aux fréquences THz. Cette conception de dispositif est proposée sur la **Figure IV.19a** pour lesquelles nous avons procédé à différentes simulations en faisant varier le nombre de couches de VO<sub>2</sub>.



**Figure IV.19 : Cellule unitaire d'un métamatériau complexe composé d'un empilement de couches de structures en VO<sub>2</sub> en (a) et effet du nombre de couches d'inclusions de VO<sub>2</sub> sur la transmission de ce métamatériau en (b).**

Sur la **Figure IV.19b**, nous avons ainsi représenté les transmissions obtenues par simulation de cette structure. Comme pour le métamatériau planaire lorsque l'épaisseur augmente, on constate que la résonance du métamatériau multicouche augmente avec le nombre de couches de VO<sub>2</sub>.

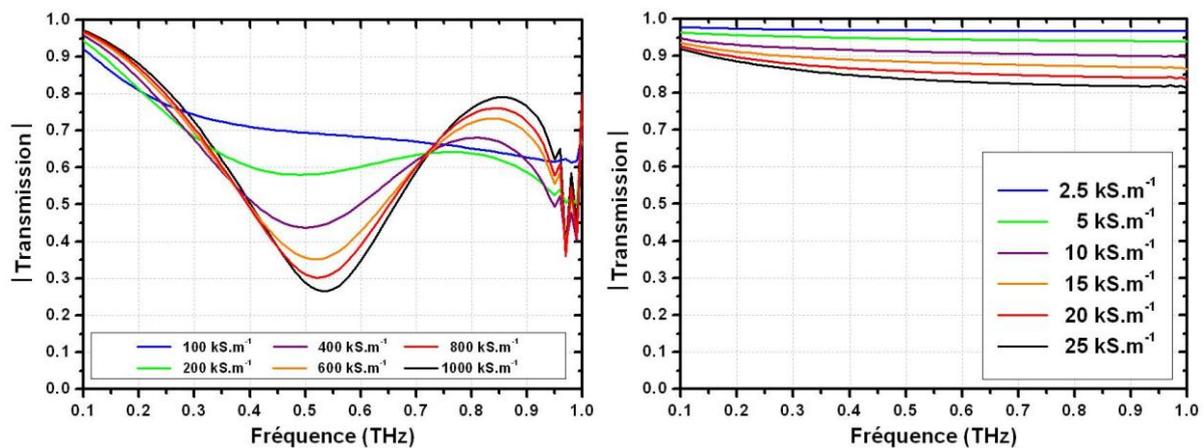
Nous allons, à présent, nous intéresser à l'effet de la conductivité du film de VO<sub>2</sub> sur la transmission de métamatériaux SRR avec des structures en VO<sub>2</sub>. Pour cela, nous avons réalisé des simulations électromagnétiques en faisant varier la conductivité du film de VO<sub>2</sub> à l'état métallique, en fixant deux autres paramètres :

- l'épaisseur du film de VO<sub>2</sub>, qui est fixée à 400 nm, qui correspond à l'épaisseur maximale du film que l'on a réussi à déposer sans observer le décollement du film par rapport au substrat.

- le rapport de conductivité THz du film de VO<sub>2</sub> entre l'état isolant et l'état métallique qui est fixé à 40. Nous considérons que si la conductivité THz à l'état métallique augmente, la conductivité THz à l'état isolant augmente proportionnellement et nous pouvons donc fixer

(dans une première approximation) ce rapport de conductivité THz entre les deux états à une valeur constante. Par exemple, lorsque la conductivité THz à l'état métallique passe de 100 kHz à 200 kHz, la conductivité THz à l'état isolant passe de 2.5 kHz à 5 KHz, conservant ainsi un rapport de conductivité THz de 40 entre les deux états du VO<sub>2</sub>. Cette valeur correspond au rapport de conductivité moyen entre les deux états du VO<sub>2</sub>, observé sur les échantillons caractérisés.

Les simulations dont les résultats sont présentés sur la **Figure IV.20**, montrent que les variations de conductivité à l'état métallique et isolant du matériau VO<sub>2</sub> engendrent des effets similaires à ceux observés pour l'épaisseur des inclusions. On constate que la résonance à l'état métallique augmente avec la conductivité des motifs de VO<sub>2</sub> à l'état métallique mais que cela entraîne, par conséquent, une dégradation de la réponse à l'état isolant, par le biais de l'augmentation de la conductivité dans cet état, même si une nouvelle fois cette dégradation reste limitée.



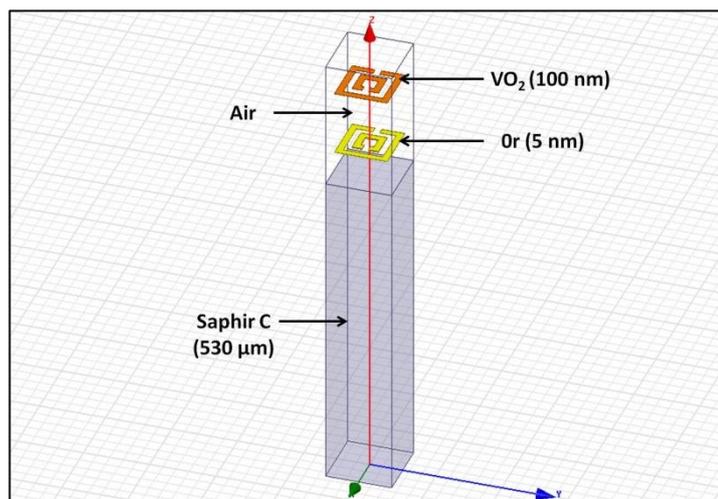
**Figure IV.20 : Effet de la variation de la conductivité des motifs de VO<sub>2</sub> sur la transmission THz du métamatériau SRR pour l'état métallique du VO<sub>2</sub> en (a) et l'état isolant en (b).**

Comme pour l'épaisseur des structures en VO<sub>2</sub>, il est donc possible de réaliser des métamatériaux à inclusions de VO<sub>2</sub> présentant une meilleure réponse à l'état métallique en augmentant leur conductivité. Néanmoins, on constate que pour obtenir un phénomène résonant assez important, on se dirige rapidement vers des conductivités assez élevées, supérieures aux valeurs couramment mesurées pour les films de VO<sub>2</sub> réalisés et utilisés pendant nos recherches.

Pour conclure cette étude paramétrique, nous envisageons deux solutions afin d'augmenter la conductivité du film de VO<sub>2</sub> à l'état métallique. La première solution consiste à utiliser un dopage du matériau VO<sub>2</sub> en utilisant des nanoparticules d'or [Or112] ou des atomes de tungstène (W – en cours d'étude au laboratoire SPCTS). Cette dernière solution permettra à la fois de diminuer la conductivité de l'état métallique du composite W:VO<sub>2</sub> et, en même temps, de diminuer sa température de transition MIT, facilitant ainsi le déclenchement électrique de cette dernière. Une deuxième solution d'amélioration s'appuie sur les résultats d'une équipe de recherche étudiant la conductivité THz de films métalliques d'or de différentes épaisseurs, variant entre 2 et 28 nm [Wal07]. Ces recherches ont alors mis en évidence trois comportements pour les films d'or en fonction de leur épaisseur :

- un comportement métallique pour les films d'épaisseur supérieure à 20 nm ;
- un comportement faiblement conducteur pour les films avec des épaisseurs de 20 nm à 6 nm ;
- un comportement de type isolant pour les films présentant des épaisseurs inférieures à 6 nm.

Ce changement de comportement (conséquence d'un mécanisme de percolation) permet de retrouver des caractéristiques similaires à une transition isolant-métal pour les domaines nanométriques d'or. Comme montré sur la **Figure IV.21**, on pourrait alors imaginer un métamatériau pour lequel la structure serait constituée d'une structure à base d'une fine couche d'or, possédant un comportement faiblement conducteur, couplée à une structure identique à base du matériau VO<sub>2</sub>.



**Figure IV.21 : Cellule unitaire d'un métamatériau composite réalisé avec un empilement alternant une structure d'or de très faible épaisseur et une structure à base de VO<sub>2</sub>.**

A température ambiante, lorsque le VO<sub>2</sub> serait à l'état isolant, la structure finale présenterait de faibles résonances. En revanche, lorsque le VO<sub>2</sub> serait à l'état métallique, le phénomène de résonance, provoqué par l'augmentation de la conductivité des motifs de VO<sub>2</sub>, serait accentué par la présence des structures à épaisseur nanométrique d'or.

L'étude sur les métamatériaux à structure entièrement en VO<sub>2</sub> nous a permis de comprendre la complexité de conception et de réalisation de ce type de topologie. Si à l'état isolant, le comportement du métamatériau est proche de la réponse espérée avec une transmission quasi-parfaite, au contraire, à l'état métallique la réponse du métamatériau est plus éloignée du comportement escompté. Cette difficulté d'obtenir une réponse proche des simulations à l'état métallique s'explique par la difficulté de réaliser des structures en VO<sub>2</sub> fortement résonantes pour cet état. Dans ce cadre, nous avons pu identifier deux paramètres importants à prendre en compte pour résoudre ce problème. Le premier est l'augmentation de l'épaisseur des structures en VO<sub>2</sub> mais cette solution reste limitée car, dans les conditions expérimentales fixées, il est difficile de réaliser des films avec des épaisseurs supérieures à 400 nm qui présentent une bonne adhérence sur les substrats de saphir. Pour contourner cette difficulté nous proposons la conception de métamatériaux multicouches réalisés par la superposition de plusieurs couches de structures identiques en VO<sub>2</sub>. Un deuxième paramètre permettant d'améliorer la réponse des métamatériaux à structure en VO<sub>2</sub> à l'état métallique est lié à la réalisation de films de VO<sub>2</sub> présentant des conductivités élevées à l'état métallique. Dans ce cas, on peut envisager des métamatériaux présentant des structures constituées de matériaux composites type VO<sub>2</sub> dopé par des métaux ou de motifs formés à partir d'une couche d'or très fine couplée avec un film de VO<sub>2</sub>.

#### **IV.4. Conclusion**

Dans ce quatrième et dernier chapitre, nous avons évoqué des perspectives intéressantes pour la réalisation de métamatériaux THz accordables à base de VO<sub>2</sub>.

Tout d'abord, nous avons montré qu'il est possible d'envisager la réalisation de nouveaux métamatériaux THz accordables électriquement. Ainsi, on peut imaginer la réalisation de métamatériaux de type "Cut-Wire-Grid" présentant des motifs de VO<sub>2</sub> de plus petites longueurs. Cette diminution de la longueur permettrait de déclencher l'accordabilité du métamatériau à des tensions plus basses ou à des températures plus proches de la température ambiante. D'un autre côté, nous avons montré que l'utilisation de motifs de VO<sub>2</sub> pour réaliser

des dispositifs accordables en tension ne se limite pas seulement aux métamatériaux "Cut-Wire-Grid" mais peut également être appliquée aux métamatériaux de type SRR. Contrairement aux métamatériaux de type "Cut-Wire-Grid" dont la structure se prête naturellement à l'implémentation des électrodes d'actionnement, dans le cas des SRR, il faut alors rajouter un système d'électrodes permettant de relier électriquement les motifs de VO<sub>2</sub>. Pour cela, il suffit d'utiliser des lignes métalliques parcourant les métamatériaux mais qui doivent être orientées de façon perpendiculaire à la polarisation du champ électrique de l'onde incidente pour ne pas perturber la réponse du métamatériau.

Dans un second temps, nous nous sommes intéressés aux métamatériaux à structure en VO<sub>2</sub> et nous avons mis en évidence les limitations de ces structures (épaisseur, conductivité à l'état métallique du matériau) pour réaliser un métamatériau fortement résonant. Pour résoudre ce problème, nous proposons plusieurs solutions qui passent par l'augmentation de l'épaisseur du film de VO<sub>2</sub> ou de sa conductivité. Nous proposons de nouvelles topologies basées sur des métamatériaux multicouches constitués d'un empilement successif de couches de VO<sub>2</sub>, l'utilisation de matériaux composites à base de VO<sub>2</sub> (films dopés avec des métaux) ou l'empilement de structures à base de VO<sub>2</sub> et de fines couches métalliques (or). Ces solutions d'empilements successifs de structures (identiques ou dissimilaires) pourront, à terme, être à la base de composants de type métamatériaux 3D encore plus complexes dont chaque empilement pourra être contrôlé de manière indépendante afin de fournir une réponse électromagnétique spécifique. Ceci permettra d'obtenir des fonctions accordables désirées (sur commande) pour le dispositif global (ex. filtres à bandes étroites ou à larges bandes passantes).

## Références Chapitre IV

- [Orl12] J.-C. Orlianges, J. Leroy, A. Crunteanu, R. Mayet, P. Carles, C. Champeaux ; "Electrical and optical properties of vanadium dioxide containing gold nanoparticles deposited by pulsed laser deposition" ; Applied Physics Letters, 101 (13), 133102, (2012).
- [Wal07] M. Walther, D. Cooke, C. Sherstan, M. Hajar, M. Freeman, F. Hegmann ; "Terahertz conductivity of thin gold films at the metal-insulator percolation transition" ; Physical Review B, 76 (12), 125408, (2007).



## **Conclusion générale**



L'objectif principal des travaux effectués durant cette thèse (en partie financée par la Fondation EADS) a été de déterminer les caractéristiques électriques non-linéaires des films et des dispositifs à base de dioxyde de vanadium ainsi que de proposer la réalisation de dispositifs innovants à base de VO<sub>2</sub> pour le contrôle et la manipulation des ondes dans le domaine THz. Dans ce contexte, ce manuscrit permet de retracer les principales étapes que nous avons suivies, de l'introduction de l'intérêt des films minces de VO<sub>2</sub> aux perspectives des applications de dispositifs THz accordables à base de VO<sub>2</sub>.

Dans le premier chapitre, nous nous sommes, tout d'abord, intéressés aux différentes solutions permettant la réalisation de systèmes électroniques reconfigurables et nous avons évoqué l'intérêt de l'utilisation de matériaux intelligents à permittivité, à perméabilité ou à résistivité accordables.

Parmi ces différentes solutions, nous avons alors concentré notre attention sur les films minces de VO<sub>2</sub> dont la transition isolant-métal (MIT) à 68°C peut être déclenchée par de nombreux stimuli et entraîne différentes variations de propriétés dans le matériau. Ces différentes caractéristiques permettent d'envisager l'utilisation de films de VO<sub>2</sub> dans des applications variées, du simple capteur de température à des dispositifs neuromorphiques. Parmi ces applications, il a été démontré la possibilité de réaliser des composants micro-ondes accordables (commutateurs micro-ondes, filtres, limiteurs de puissance...). Le dépôt des films de VO<sub>2</sub> peut quant à lui être effectué par différentes méthodes. En occurrence, les films que nous utilisons au laboratoire XLIM sont réalisés soit par PLD (en collaboration avec le laboratoire des SPCTS) qui permet d'obtenir des films d'excellentes qualités, soit par évaporation à canon électron dont l'intérêt est de pouvoir réaliser des films homogènes en épaisseur sur de plus grandes surfaces.

Ce premier chapitre nous a également permis de comprendre que les effets de la transition MIT s'observent sur l'ensemble du spectre électromagnétique allant du domaine DC aux fréquences optiques en passant par le domaine THz qui fait, actuellement, l'objet d'une attention croissante de la part de la communauté scientifique.

Le deuxième chapitre s'est, ensuite, concentré sur l'activation électrique de la transition MIT qui présente de nombreux avantages: vitesse, simplicité et activation localisée. Pour cela, nous avons étudié les caractéristiques I-V de dispositifs 2T intégrant des motifs de VO<sub>2</sub>,

caractéristiques que l'on peut décomposer en trois régions : la région isolante, la région métallique et entre les deux, une région de transition MIT.

Dans un premier temps, l'étude des non-linéarités présentes lors de cette transition nous a permis de comprendre l'origine et le mécanisme de la transition MIT. D'un côté, en mode tension, la présence d'un cycle d'hystérésis important lors de la transition MIT matérialisée par des sauts de courant, a mis en évidence une transition d'origine thermique. D'un autre côté, en mode courant, la présence de zones à résistances différentielles négatives (NDR) lors de la transition résulte d'un mécanisme de percolation isolant-métal que l'on peut observer visuellement. L'étude de l'influence de différents paramètres sur les caractéristiques de la zone de transition (tension d'activation, ampleur des NDR), en mode tension et en mode courant, semblent confirmer l'hypothèse d'une transition percolative isolant-métal d'origine thermique.

En se focalisant sur la région isolante des caractéristiques courant-tension (I-V) des dispositifs réalisés, l'étude de ces caractéristiques permettent de penser que dans cette zone, la conduction des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> évolue entre une conduction ohmique lorsque le champ électrique appliqué est faible et une conduction de type Poole-Frenkel pour des champs électriques plus élevés.

Dans un troisième temps, nous avons étudié le phénomène d'auto-oscillations dans les dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>. Nous avons montré que ce phénomène se produit, en-dessous de la température de transition MIT (68°C), lorsque l'on excite le dispositif par une injection de courant dans la première région NDR des caractéristiques I-V des dispositifs. Le lien entre la première zone NDR et le phénomène d'oscillations indiquent que ces oscillations résultent de la formation/ destruction de micro-capacités (domaines microscopiques isolant-métal) lors la transition percolative MIT. Cela se confirme non seulement par la forme des oscillations typiques de phénomènes capacitifs mais également par la sensibilité de leurs caractéristiques (amplitude, fréquence) par rapport à différents paramètres géométriques ou environnementaux. Ces phénomènes d'oscillations ouvrent la voie à des applications très intéressantes pour les dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub> comme la réalisation d'oscillateurs mais également de capteurs extrêmement sensibles.

Enfin, le deuxième chapitre a été l'occasion de mettre en avant la fiabilité des dispositifs 2T à base de VO<sub>2</sub>. De plus, nous avons vu qu'il est possible d'envisager une amélioration de leurs performances (tension d'activation, vitesse) en utilisant des topologies

qui intègrent des éléments  $\text{VO}_2$  de plus petites dimensions (dispositifs à gaps nanométriques, structures de type MIM).

Le troisième chapitre s'est inscrit dans notre volonté d'utiliser les caractéristiques non-linéaires de la transition MIT du  $\text{VO}_2$  pour réaliser des dispositifs accordables dans le domaine THz. L'intérêt de cette étude se situe dans un contexte où le domaine des fréquences THz apparaît comme un domaine à fort potentiel applicatif mais pour lequel des recherches sont encore nécessaires pour développer les composants et les systèmes travaillant dans cette gamme de fréquences, afin de combler le gap THz.

L'une des solutions envisagées par la communauté scientifique dans le développement des composants THz est l'utilisation de métamatériaux. Ces composants sont des structures artificielles présentant des inclusions sous longueur d'onde, qui font actuellement l'objet d'une attention grandissante de la part de la communauté scientifique. Leurs remarquables propriétés (permittivité, perméabilité et indice de réfraction négatifs) permettent d'imaginer de nombreuses applications avancées (lentilles planes convergentes à haute résolution, "capes d'invisibilité" dans divers domaines spectrales, etc.). Pour le domaine des fréquences THz, nous nous sommes plus particulièrement intéressés au cas des métamatériaux planaires en raison de leur facilité de réalisation par rapport à d'autres technologies et de leur capacité à contrôler et à manipuler les ondes THz. Afin d'obtenir des fonctions accordables dans la réponse fréquentielle de ces matériaux artificiels, il est alors apparu intéressant d'utiliser dans leur fabrication des matériaux dont les propriétés électriques et/ ou optiques peuvent être modifiées sous l'action de divers stimuli externes.

Dans la perspective de réaliser des dispositifs planaires THz accordables, nous avons étudié les effets de la transition MIT des films minces de  $\text{VO}_2$  dans ce domaine de fréquences. Cette étude, réalisée par la méthode de spectroscopie THz-TDS, a montré que les variations de conductivité THz du film de  $\text{VO}_2$  lors de la transition MIT conduisent à des variations très importantes de la transmission THz du film de  $\text{VO}_2$ .

Dans ce contexte, nous avons alors conçu et réalisé des métamatériaux accordables dans le domaine THz en intégrant dans leur structure une couche mince ou des motifs localisés de dioxyde de vanadium. Si l'intégration du  $\text{VO}_2$  sous forme de couche mince nous a permis de confirmer le caractère accordable de ces structures par une commande thermique, l'utilisation de motifs localisés leur confère un comportement accordable, par le biais de la transition MIT, en utilisant une commande électrique en plus des stimuli thermiques. Cette

alternative, rendue possible en utilisant des structures de métamatériaux de type "Cut-Wire-Grid" couplées à des électrodes globales d'actionnement électrique, permet d'envisager un contrôle plus rapide de la propagation des ondes THz. Dans cette configuration, la transition MIT permet également un changement de topologie du métamatériau à l'étude et engendre ainsi, des variations complexes des réponses THz.

Dans le quatrième chapitre de ce manuscrit, nous avons présenté les perspectives de nos recherches sur la réalisation de futurs dispositifs THz accordables à base de VO<sub>2</sub>, recherches que l'on peut envisager suivant deux axes principaux.

Premièrement, nous nous sommes intéressés au potentiel des métamatériaux THz accordables électriquement. Nous avons mis en avant qu'une diminution de la longueur des motifs de VO<sub>2</sub> intégrés dans les métamatériaux THz "Cut-Wire-Grid" permettrait d'obtenir une accordabilité à une tension plus basse ou à une température plus proche de la température ambiante. De plus, nous avons montré qu'il était également possible d'envisager la réalisation de métamatériaux THz accordables électriquement de type Split Ring Resonators (SRR) en couplant avec ces structures, des lignes de polarisation orientées perpendiculairement à la polarisation de l'onde THz incidente.

D'un autre côté, nous avons abordé la réalisation de métamatériaux à structures entièrement en VO<sub>2</sub>. Dans ce cas, le défi est d'obtenir des structures fortement résonnantes lorsque le dioxyde de vanadium est à l'état métallique. Pour résoudre ce problème, nous avons mis en avant la possibilité d'augmenter l'épaisseur et/ ou la conductivité des films de VO<sub>2</sub>. Ceci passe par l'optimisation expérimentale (lors de la réalisation des dépôts) des propriétés à l'état métallique du matériau VO<sub>2</sub> mais aussi par la conception de nouvelles topologies de métamatériaux, de type 3D ou de structures englobant des films de VO<sub>2</sub> dopés avec des métaux.

A la lumière de cette étude sur les caractéristiques non-linéaires de la transition isolant-métal du VO<sub>2</sub> et de leurs applications à la réalisation de dispositifs THz accordables, nous avons montré qu'il est possible de réaliser des métamatériaux accordables thermiquement ou électriquement dans le domaine THz ouvrant la voie à la réalisation de systèmes d'imagerie dans ce domaine de fréquences. Avec une transition MIT active sur une grande partie du spectre électromagnétique et des métamatériaux facilement transposables dans des domaines de fréquences plus élevées, on peut également imaginer étendre ces concepts de métamatériaux accordables à base de VO<sub>2</sub> dans le domaine de l'infrarouge et du

spectre optique visible (modification de la signature IR, commutateurs rapides (1 – 15  $\mu\text{m}$ ) pour contre-mesures de protection, composants anti-réflexion, etc.).



## **Annexes**



## Annexe 1 : Mesure de résistivité par la méthode "4 pointes"

L'un des éléments essentiels pour caractériser électriquement un matériau est sa résistivité, qui nous renseigne sur sa caractéristique principale (isolant, semi-conducteur, métal). Pour mesurer la résistivité (ou la conductivité) des matériaux que nous utilisons, nous employons la méthode non-destructive par quatre pointes.

### 1. Principe de la méthode "4 pointes"

La méthode "4 pointes", encore appelée méthode de van der Pauw, repose sur l'utilisation d'une sonde composée d'une rangée de quatre pointes qui sont fabriquées dans des métaux très durs comme le tungstène. Pour mesurer la résistivité du matériau, on vient mettre en contact les pointes avec la surface du matériau. On envoie, ensuite, un courant sur les deux pointes externes et on mesure la tension engendrée sur les deux pointes internes (**Figure 1**).

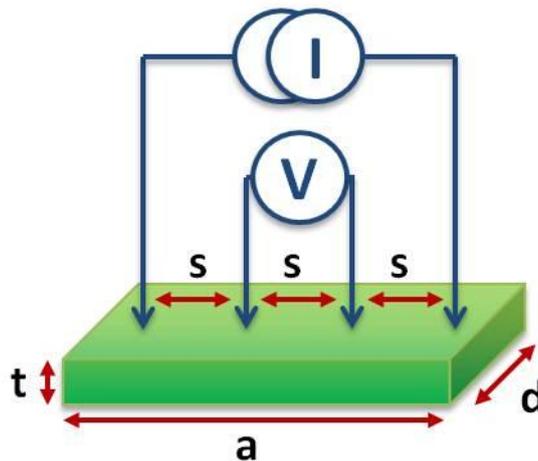


Figure 1 : Mesure quatre pointes

L'intérêt de cette méthode est qu'elle nous permet d'éliminer deux problèmes. Le premier est qu'en utilisant une rangée de quatre pointes espacées de la même distance, on élimine les effets de type diode Schottky qui se produiraient si l'on utilisait un appareil à deux connections comme un ohm-mètre. Le second est qu'en séparant la voie où l'on mesure les tensions de la voie où l'on injecte le courant, on élimine les erreurs de contacts entre les électrodes et la surface du matériau qui apparaîtraient dans le cas où un courant circulerait dans les sondes de tension. En revanche, un autre problème apparaît en raison du dipôle formé par les électrodes apportant le courant qui provoque une distribution de champ sur l'échantillon.

## 2. Détermination de la résistivité

Pour extraire la valeur de la résistivité, il faut tenir compte de divers facteurs comme les conditions aux limites, l'épaisseur, la taille de l'échantillon et les dérives dues à l'alimentation en courant. On distingue plusieurs cas :

➤ Si l'échantillon présente une très grande surface, on obtient l'expression de résistivité suivante :

$$\rho = 2\pi S \left( \frac{V}{I} \right) \quad (1)$$

avec :

- S (m<sup>2</sup>) : surface de l'échantillon ;
- V (V) : tension mesurée ;
- I (A) : courant injecté.

➤ Si l'échantillon a une épaisseur négligeable devant sa surface, on a :

$$\rho = R_s t \quad (2)$$

avec :

- t (m) : épaisseur ;
- R<sub>S</sub> (Ω/□), résistance carrée qui est défini de la façon suivante :

$$R_S = \left( \frac{\pi}{\ln(2)} \right) (V/I) \quad (3)$$

➤ Sinon l'expression de la résistivité devient :

$$\rho = \left( \frac{V}{I} \right) t C F_d C F_t \quad (4)$$

avec :

- C F<sub>d</sub> : coefficient correcteur lié à la surface de l'échantillon ;
- C F<sub>t</sub> : coefficient correcteur lié à l'épaisseur de l'échantillon.

A titre d'exemple, pour la sonde "4-pointes" utilisée qui présente un espacement s entre chaque pointe de 1 mm, la valeur de C F<sub>d</sub> que nous utilisons pour un film de VO<sub>2</sub> de 20 x 20 mm<sup>2</sup> est de 4.4516. Quant à la constante C F<sub>t</sub>, étant donné que l'épaisseur des films étudiés est très faible devant l'espacement des pointes, nous considérons qu'elle est égale à 1.

## **Annexe 2 : La fabrication de circuits micro-électroniques**

Dans les circuits utilisant du dioxyde de vanadium que nous avons réalisés, on peut distinguer deux étapes principales : la première correspondant à la réalisation des motifs de dioxyde de vanadium et la deuxième à la réalisation des éléments métalliques.

### **1. Le dépôt et la gravure du VO<sub>2</sub>**

Comme indiqué auparavant, les dépôts des films de VO<sub>2</sub> étudiés, au cours de nos travaux de thèses, sont majoritairement réalisés par PLD ou pour quelques cas par évaporation à canon à électrons. Après le dépôt du film, des étapes de photolithographie peuvent alors être nécessaire pour structurer le film sous la forme de motifs (dispositifs 2T et métamatériaux intégrant des motifs de VO<sub>2</sub>). Dans ce cas, nous avons utilisé la gravure par voie humide (**Figure 2a**) dont le protocole est le suivant :

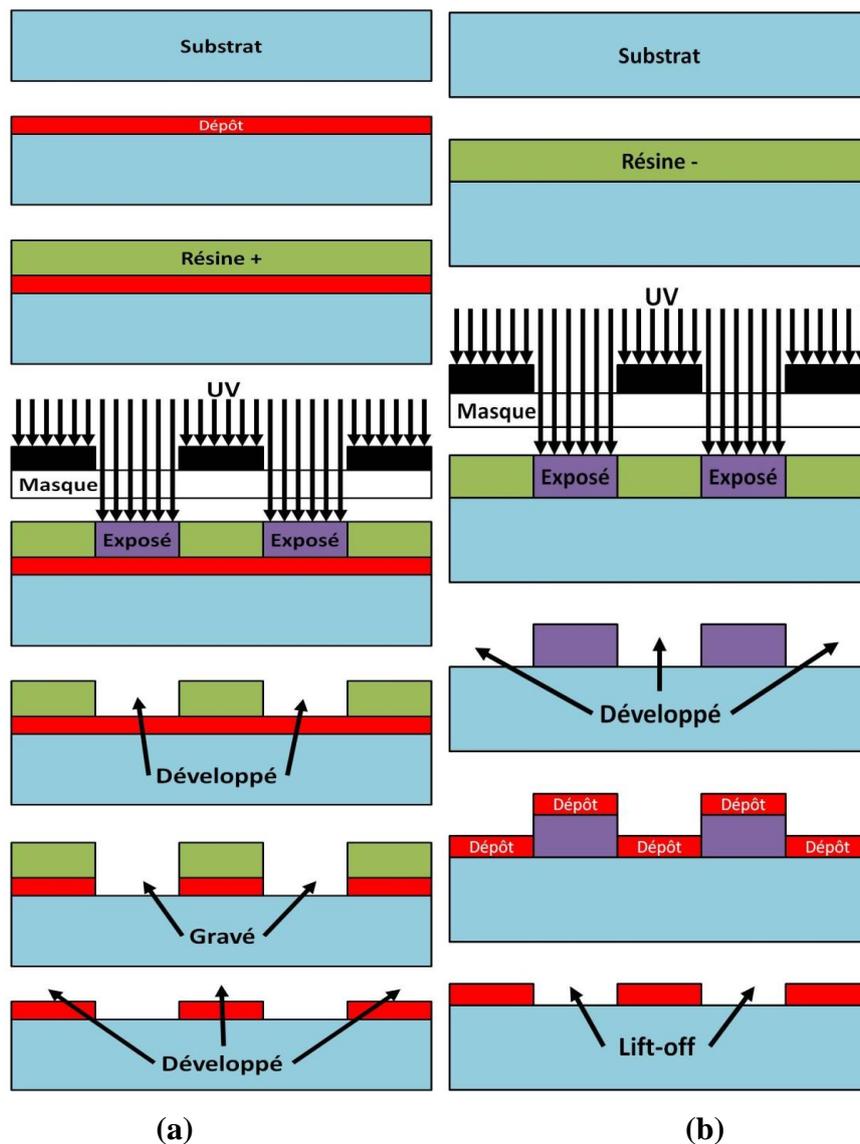
- Dépôt d'une résine photosensible positive de type S1813 qui est, ensuite, étalée à l'aide d'une "tournette" à 4000 tr/min pendant 30 secondes;
- Cuisson de la résine pendant 1 minute à 110°C sur une plaque chauffante ;
- Insolation de la résine photosensible pendant 13 secondes au travers d'un premier masque représentant les motifs de VO<sub>2</sub> ;
- Développement de la résine sensibilisée dans une solution de micro-développement ;
- Recuit pendant 1 minute à 110°C ;
- Gravure par voie humide du VO<sub>2</sub> à travers le masque de résine ;
- Insolation totale de l'échantillon puis un nouveau développement pour enlever la résine protégeant les motifs de VO<sub>2</sub>.

### **2. La réalisation des éléments métalliques**

Après le dépôt et, dans certains cas, la gravure des films de VO<sub>2</sub>, nous procédons à la réalisation des éléments métalliques composés d'une couche d'or (100 nm) déposée sur une fine couche de titane (10 nm) qui est utilisée comme couche d'accrochage. Contrairement aux motifs de VO<sub>2</sub>, la structuration des éléments métalliques a été réalisée en utilisant la technique du lift-off (**Figure 2b**) dont voici le protocole :

- Dépôt d'une résine photosensible négative de type AZ5214E qui est, ensuite, étalée à l'aide d'une "tournette" à 4000 tr/min pendant 40 secondes ;
- Cuisson de la résine pendant 1 minute à 105°C sur une plaque chauffante ;

- Insolation de la résine photosensible pendant 3.5 secondes au travers d'un deuxième masque caractéristique des éléments métalliques ;
- Recuit d'inversion pendant 1 minute à 120°C ;
- Insolation/ exposition totale du circuit pendant 20 secondes ;
- Développement de la résine sensibilisée dans une solution de micro-développement (MF26A) ;
- Dépôt d'une couche de titane (10 nm) puis d'une couche d'or (100 nm) par évaporation à faisceau d'électrons ;
- Libération de la résine (lift off) en laissant tremper dans une solution d'acétone.



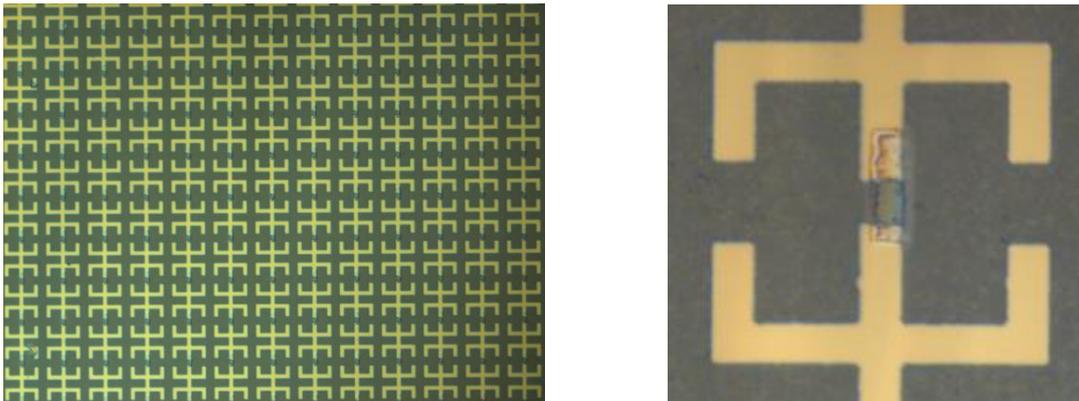
**Figure 2 : a. Illustrations des étapes de la gravure des motifs de VO<sub>2</sub> en utilisant une résine positive et b. du procédé de type lift-off utilisant une résine négative pour la fabrication des éléments métalliques des circuits à base de VO<sub>2</sub>.**

### Annexe 3 : Modélisation des structures de type métamatériaux

Il existe différentes approches pour la modélisation des structures périodiques telles que les métamatériaux. Sans rentrer dans les détails, on peut, notamment, citer la méthode des ondes planes, la FDTD ou encore la méthode des éléments finis (FEM). Cette dernière méthode est très utilisée car elle est assez fiable et implémentée dans de nombreux logiciels commerciaux dont le logiciel HFSS (High Frequency Structure Simulator) que nous avons utilisé.

#### 1. Principe de modélisation d'une structure périodique

Pour modéliser une structure périodique comme un métamatériau (**Figure 3.a**), il suffit de définir la maille élémentaire de la structure (**Figure 3.b**) et d'appliquer des conditions aux limites dans certaines directions qui traduisent le fait que cette maille se répète à l'infini suivant ces mêmes directions.



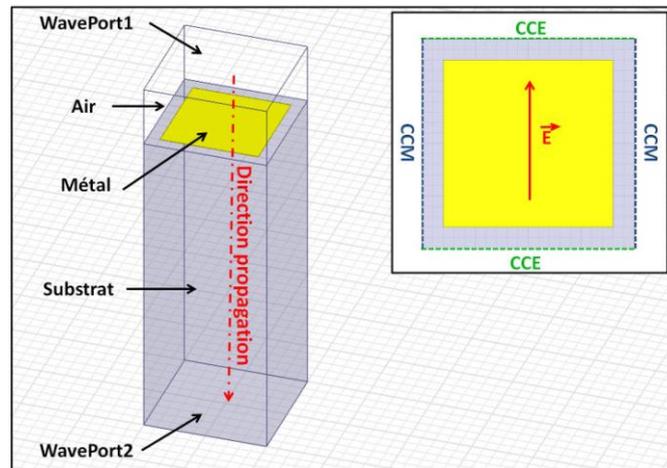
**Figure 3 : a. Exemple de métamatériau planaire THz et b. cellule élémentaire de ce même métamatériau.**

#### 2. Méthodes de simulation sur HFSS

Sur le logiciel HFSS, il existe deux types de conditions aux limites qui permettent de reproduire la périodicité d'une structure.

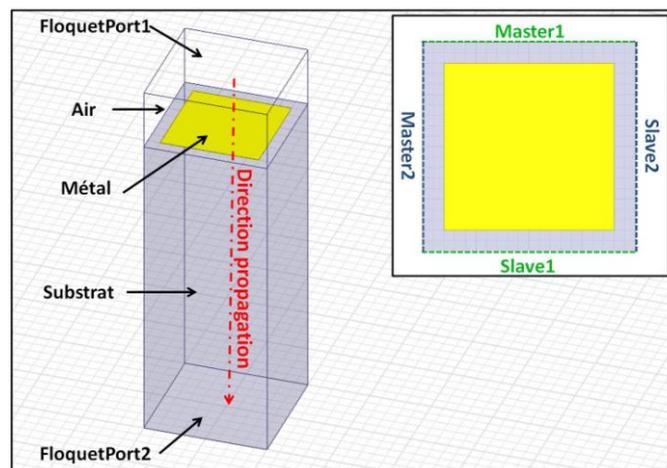
Tout d'abord, la première méthode consiste à utiliser des conditions de type court-circuit électrique ou magnétique (CCE, CCM) qui créent un effet miroir dans la structure et assurent ainsi, sa périodicité. Ces conditions présentent l'avantage de définir l'orientation du champ électrique (E est, respectivement, orthogonal aux CCE et tangent aux CCM) et sont généralement, moins exigeantes en volume et en temps de calcul. Ce type de conditions

nécessite l'utilisation de ports d'accès de type WavePort qui dans le cas de notre étude aux fréquences THz sont placés au-dessus et en dessous de l'échantillon pour assurer une propagation orthogonale au plan de la structure (**Figure 4**).



**Figure 4 : Technique de simulation de structures périodiques sur le logiciel HFSS en utilisant des conditions de type CCE/ CCM.**

Ensuite, comme le montre la **Figure 5**, la deuxième méthode consiste à utiliser des conditions de type Master/ Slave. L'intérêt de cette méthode est que, contrairement aux conditions de type CCE/ CCM, elle permet de prendre en compte les effets de bords des cellules élémentaires. En revanche, cette méthode engendre des calculs beaucoup plus exigeants en volume et en temps ce qui limite leur utilisation, notamment, lorsque l'on travaille avec des structures de grandes dimensions à des fréquences trop élevées. Dans ce cas, la direction de propagation est assurée en insérant des ports d'accès de type FloquetPort dans lesquels, on peut fixer l'orientation du champ électrique.



**Figure 5 : Technique de simulation de structures périodiques sur le logiciel HFSS en utilisant des conditions de type Master/ Slave.**

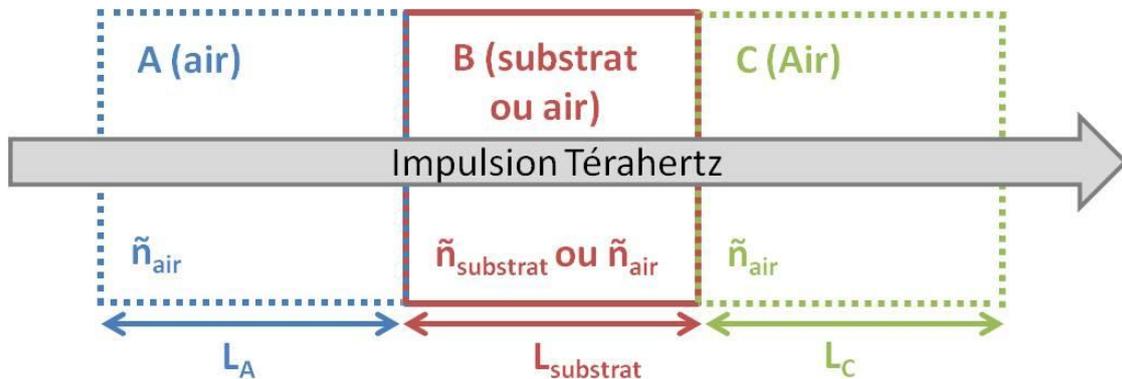
## Annexe 4 : Détermination des constantes de matériaux aux fréquences THz

Pour déterminer les propriétés THz des matériaux utilisés dans le cadre de nos recherches, il nous faut distinguer deux cas : le cas des matériaux optiquement épais fortement transparents (substrat de saphir c) et le cas des matériaux optiquement minces (films minces de VO<sub>2</sub>).

### 1. Constantes des matériaux optiquement épais fortement transparents

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à la méthode permettant de déterminer les constantes relatives au substrat de saphir c en considérant que c'est un matériau optiquement épais (échos THz séparés de l'impulsion principale dans les mesures temporelles THz-TDS) et fortement transparent.

Tout d'abord, il nous faut utiliser la relation 5 que l'on a mise en évidence dans le chapitre 3 dans le cas où l'impulsion traverse successivement 3 matériaux distincts comme l'illustre la **Figure 6**.



**Figure 6** : Schéma montrant le passage de l'impulsion THz dans trois matériaux successifs A, B et C possédant un indice de réfraction propre ( $\tilde{n}_a$ ,  $\tilde{n}_b$  et  $\tilde{n}_c$  avec  $\tilde{n}_b > \tilde{n}_a$  et  $\tilde{n}_c$ ) et une épaisseur propre ( $L_a$ ,  $L_b$ ,  $L_c$ ).

$$S'(w) = E_0(w) \eta(w) D_a(w, L_a) T_{ab}(w) D_b(w, L_b) T_{bc}(w) D_c(w, L_c) FP(w) \quad (5)$$

avec :

- $E_0(w)$  : signal à la sortie de l'antenne d'émission ;
- $\eta(w)$  : réflexion interne de chaque matériau ;

- $D_a(w, L_a)$  : absorption du matériau a défini par sa longueur  $L_a$  et son indice de réfraction  $\tilde{n}_a = n_a - jk_a$  ;
- $T_{ab}(w)$  : transmission à l'interface entre le matériau a et le matériau b ;
- $FP(w)$  : terme correspondant aux effets Fabry-Pérot.

En appliquant cette relation aux mesures réalisées (respectivement, à vide et avec le substrat), on obtient alors les équations **6** et **7**. Nous considérons que les matériaux traversés sont homogènes ( $\eta(w) = 1$ ) et que l'on travaille en incidence normale ( $\cos \theta_i = \cos \theta_t = 1$ ).

$$S'_{\text{air}}(w) = E_0(w) D_{\text{air}}(w, L_a + L_{\text{substrat}} + L_c) \quad (6)$$

$$S'_{\text{substrat}}(w) = E_0(w) D_{\text{air}}(w, L_a) T_{\text{air-substrat}}(w) D_{\text{substrat}}(w, L_{\text{substrat}}) \\ \times T_{\text{substrat-air}}(w) D_{\text{air}}(w, L_c) FP_{\text{substrat}}(w) \quad (7)$$

A partir du rapport de ces deux relations, on en déduit la transmission théorique du substrat de saphir c :

$$T'_{\text{substrat}}(w) = \frac{T_{\text{air-substrat}}(w) D_{\text{substrat}}(w, L_{\text{substrat}}) T_{\text{substrat-air}}(w) FP(w)}{D_{\text{air}}(w, L_b)} \quad (8)$$

Dans le cas du substrat de saphir c qui est un matériau optiquement épais, on peut considérer que le terme Fabry-Pérot vaut 1 puisque on supprime cet effet en coupant la mesure avant l'apparition des échos. Dans ce cas, on peut alors écrire la transmission à l'aide de l'équation **9**.

$$T'_{\text{substrat}}(w) = \frac{4\tilde{n}_{\text{air}}(w)\tilde{n}_{\text{substrat}}(w)}{(\tilde{n}_{\text{air}}(w) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(w))^2} \\ \times \exp\left(-j \frac{(\tilde{n}_{\text{substrat}}(w) - \tilde{n}_{\text{air}}(w))(wL_{\text{substrat}})}{c}\right) \quad (9)$$

avec

$$\tilde{n}_{\text{air}}(w) = n_{\text{air}}(w) - jk_{\text{air}}(w) ;$$

$$\tilde{n}_{\text{substrat}}(w) = n_{\text{substrat}}(w) - jk_{\text{substrat}}(w).$$

Si nous considérons d'une part, que  $\tilde{n}_{\text{air}} = 1$  et d'autre part, que le substrat de saphir c est un matériau fortement transparent ( $k_{\text{substrat}}$  très faible), on peut en déduire l'expression de  $n_{\text{substrat}}$  et de  $k_{\text{substrat}}$  :

$$n_{\text{substrat}}(\omega) = \frac{\phi(T_{\text{substrat}}(\omega))}{\omega L_{\text{substrat}}} + 1 \quad (10)$$

$$k_{\text{substrat}}(\omega) = \frac{-c}{\omega L_{\text{substrat}}} \ln \left( \frac{(1 + n_{\text{substrat}}(\omega))^2}{4n_{\text{substrat}}(\omega)} |T_{\text{substrat}}(\omega)| \right) \quad (11)$$

avec  $|T_{\text{substrat}}(\omega)|$  et  $\phi(T_{\text{substrat}}(\omega))$  sont, respectivement, l'amplitude et la phase de la transmission du substrat mesurées à l'aide de la spectroscopie THz-TDS.

## 2. Constantes d'un matériau métallique optiquement mince

Sur le même principe que pour les matériaux optiquement épais, la détermination des constantes des matériaux optiquement minces nécessite, tout d'abord, de connaître les caractéristiques du signal transmis, entre les deux antennes du banc THz, sans et avec le matériau optiquement mince. Pour le signal transmis sans le film à caractériser (substrat seulement), on peut utiliser la relation 7. Quant au signal transmis avec le film à caractériser, on utilise la relation 12 :

$$S'_{\text{film}}(\omega) = E_0(\omega) D_{\text{air}}(\omega, L_a) T_{\text{air-film}}(\omega) D_{\text{film}}(\omega, L_{\text{film}}) T_{\text{film-substrat}}(\omega) \\ \times D_{\text{substrat}}(\omega, L_{\text{substrat}}) T_{\text{substrat-air}}(\omega) D_{\text{air}}(\omega, L_c) FP_{\text{film}}(\omega) FP_{\text{substrat}}(\omega) \quad (12)$$

En faisant, ensuite, le rapport de la relation 12 par la relation 7, on obtient la transmission du film :

$$T'_{\text{film}}(\omega) = \frac{2\tilde{n}_{\text{film}}(\omega)(\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega))}{(\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{film}}(\omega))(\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega))} \\ \times \exp \left( -j \frac{(\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) - \tilde{n}_{\text{air}}(\omega))(\omega L_{\text{film}})}{c} \right) FP_{\text{film}}(\omega) \quad (13)$$

avec :

$$FP_{\text{film}}(\omega) = \sum_{k=0}^{+\infty} \{R_{\text{film-substrat}}(\omega) D_{\text{film}}^2(\omega, l_{\text{film}}) R_{\text{film-air}}(\omega)\}^k$$

Mais comme le film est optiquement mince, on a :

$$FP_{\text{film}}(\omega) = \frac{1}{1 - \frac{\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) - \tilde{n}_{\text{air}}(\omega)}{\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{air}}(\omega)} \frac{\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) - \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega)}{\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega)} \exp\left(-\frac{2j\tilde{n}_{\text{film}}(\omega)\omega L_{\text{film}}}{c}\right)} \quad (14)$$

La transmission du film peut alors s'écrire à l'aide de la relation 15.

$$T'_{\text{film}}(\omega) = \frac{(\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega))}{B(\omega)} x \left(1 - \frac{j(\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) - \tilde{n}_{\text{air}}(\omega))\omega L_{\text{film}}}{c}\right) \quad (15)$$

avec :

$$B(\omega) = \tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega) + \frac{j(\tilde{n}_{\text{film}}^2(\omega) - \tilde{n}_{\text{film}}(\omega)\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) - \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega)\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega)\tilde{n}_{\text{air}}(\omega))\omega L_{\text{film}}}{c}$$

Or, dans le cas d'un film métallique, on a :

$$\varepsilon_{\text{film}}(\omega) = 1 + j(\sigma_{\text{film}}(\omega)/\omega\varepsilon_0)$$

avec :

$$\varepsilon_{\text{film}}(\omega) = \varepsilon'_{\text{film}}(\omega) + j\varepsilon''_{\text{film}}(\omega)$$

$$\sigma_{\text{film}}(\omega) = \sigma'_{\text{film}}(\omega) + j\sigma''_{\text{film}}(\omega)$$

De plus, en considérant que le film ne présente pas de réponse magnétique ( $\mu_{\text{film}} = 1$ ), on a :

$$\varepsilon_{\text{film}}(\omega) = (n_{\text{film}} - jk_{\text{film}})^2$$

On peut alors écrire la relation suivante :

$$B(\omega) = \tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega) + \sigma_{\text{film}}(\omega)L_{\text{film}}Z_0 + \frac{j(\varepsilon_{\infty} - \tilde{n}_{\text{film}}(\omega)\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) - \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega)\tilde{n}_{\text{film}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega)\tilde{n}_{\text{air}}(\omega))\omega L_{\text{film}}}{c}$$

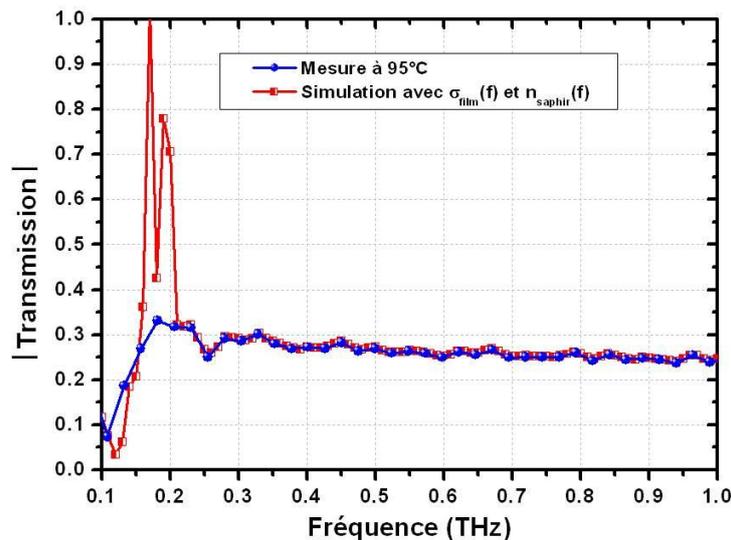
Enfin, en considérant à nouveau que le film est mince ( $L_{\text{film}} \ll \lambda$ ), la transmission du film peut s'écrire :

$$T'_{\text{film}}(\omega) = \frac{\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega)}{(\tilde{n}_{\text{air}}(\omega) + \tilde{n}_{\text{substrat}}(\omega) + \sigma_{\text{film}}(\omega)L_{\text{film}}Z_0)} \quad (16)$$

### 3. Validité des calculs pour les films minces de VO<sub>2</sub> à l'état métallique

Comme mentionné auparavant, la relation **16** utilisée pour le calcul de la conductivité THz suppose différentes conditions et, notamment, que le film étudié soit métallique. De ce fait, il est intéressant d'étudier la validité de cette relation pour les films minces de VO<sub>2</sub> à l'état métallique.

Dans ce contexte, nous avons utilisé cette relation pour déterminer la conductivité, sur la bande de fréquences 0.1 – 1 THz, d'un film de VO<sub>2</sub> de 100 nm, à l'état métallique, réalisé sur un substrat de saphir c de 530 μm. Dans ce calcul, nous avons également intégré l'indice de réfraction du substrat déterminé, sur la bande fréquence 0.1 – 1THz, à partir des relations **11** et **12**. En utilisant le logiciel HFSS, il nous a alors été possible de modéliser le film de VO<sub>2</sub> sur son substrat de saphir c en prenant en compte la conductivité THz du film de VO<sub>2</sub> et l'indice de réfraction du substrat. Sur la **Figure 7** est ainsi représentée la transmission THz, du film mince de VO<sub>2</sub>, obtenue par simulation et la mesure correspondante à l'état métallique.



**Figure 7 : Comparaison de la transmission mesurée, à 95°C, du film de VO<sub>2</sub> de 100 nm, déposé sur substrat c de 530 m d'épaisseur, avec la transmission obtenue par simulation en intégrant dans le modèle l'indice de réfraction du substrat de saphir c déterminé à partir des relations 11 – 12 et la conductivité du film de VO<sub>2</sub> à 95°C déterminée à partir de la relation 16.**

On constate une très grande similitude entre la transmission obtenue par simulation et la transmission mesurée. Par conséquent, les relations utilisées pour déterminer la conductivité du film de VO<sub>2</sub> à l'état métallique et l'indice de réfraction du substrat sont donc relativement précises malgré les simplifications sur lesquelles elles reposent.



## **Production scientifique**



**Publications (5 articles dans des revues internationales, 9 conférences internationales, 7 conférences nationales et 4 autres conférences)**

**5 Articles dans des revues internationales :**

1. A. Crunteanu, J. Givernaud, **J. Leroy**, D. Mardivirin, C. Champeaux, J.-C. Orlianges, A. Catherinot, P. Blondy ; “Voltage and current-activated metal-insulator transition in VO<sub>2</sub>-based electrical switches : a lifetime operation analysis” ; Science and Technology of Advanced Materials, 11 (6), 065002, (2010).
2. **J. Leroy**, A. Bessaudou, F. Cosset, A. Crunteanu ; “Structural, electrical and optical properties of thermochromic VO<sub>2</sub> thin films obtained by reactive electron beam evaporation” ; Thin Solid Films, 520, 4823-4825, (2012).
3. **J. Leroy**, A. Crunteanu, J. Givernaud, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, P. Blondy ; “Generation of electrical self-oscillations in two-terminal switching devices based on the insulator-to-metal phase transition of VO<sub>2</sub> thin films” ; International journal of microwave and wireless technologies, 4, 01, 101-107, (2012).
4. **J. Leroy**, A. Crunteanu, A. Bessaudou, C. Champeaux, J.-C. Orlianges ; “High-speed metal- insulator transition in vanadium dioxide films induced by an electrical pulsed voltage over nano-gap electrodes” ; Applied Physics Letters, 100, 213507, (2012).
5. J.-C. Orlianges, **J. Leroy**, A. Crunteanu, R. Mayet, P. Carles, C. Champeaux ; “Electrical and optical properties of vanadium dioxide containing gold nanoparticles deposited by pulsed laser deposition” ; Applied Physics Letters, 101, 133102, (2012).

**9 Conférences internationales :**

6. A. Crunteanu, **J. Leroy**, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, A. Catherinot, P. Blondy ; "Current-driven Self-oscillations in Two-terminals Resistive Switches Induced by the Metal-insulator Transition in VO<sub>2</sub> Thin Films" ; ICMAT-2011, Symposium A : Nanostructured Oxides, Interfaces, Heterostructures and Devices, SUNTEC ; Singapour, (2011).

7. J.-C. Orlianges, A. Crunteanu, **J. Leroy**, C. Champeaux, P. Blondy, A. Catherinot ; “Structural, Electrical and Optical Properties of Au- Doped VO<sub>2</sub> Thin Films Performing a Metal-insulator Transition” ; ICMAT-2011, Symposium A : Nanostructured Oxides, Interfaces, Heterostructures and Devices ; SUNTEC, Singapour, (2011).
8. **J. Leroy**, A. Bessaudou, F. Cosset, A. Crunteanu ; “Electrical and optical properties of Vanadium Dioxide thin films obtained by reactive electron beam evaporation” ; European Material Research Society (E-MRS), Spring & Bilateral Meeting, Symposium D : Synthesis, Processing and Characterization of Nanoscale Multi Functional Oxide Films III ; France, (2011).
9. A. Crunteanu, **J. Leroy**, F. Cosset, A. Bessaudou, J.-C. Orlianges, C. Champeaux ; “Electrical Self-oscillations Across Two- and Three-Terminal Resistive Switches Based on VO<sub>2</sub> Layers Integrated in Crossbar Circuits” ; MRS Spring meeting, San Francisco, (2012).
10. A. Crunteanu, **J. Leroy**, G. Humbert, D. Ferachou, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, P. Blondy ; “Tunable Terahertz Metamaterials based on Metal-Insulator Phase Transition of VO<sub>2</sub> Layers” ; International Microwave Symposium, Canada, (2012).
11. F. Cosset, A. Crunteanu, A. Bessaudou, **J. Leroy** ; “High-speed Mott-transition switches based on VO<sub>2</sub> layers” ; European Material Research Society (E-MRS), Spring Meeting, Symposium L : Novel Functional Materials and Nanostructures for innovative non-volatile memory devices ; France, (2012).
12. A. Crunteanu, E. Lemoine, **J. Leroy**, D. Passerieux, P. Leveque, P. Blondy, C. Gaquiere, D. Ducatteau, J.-C. Orlianges, C. Champeaux ; “Pulsed power operation of power limiters integrating a phase transition material” ; International Microwave Symposium, Seattle, (2013).
13. **J. Leroy**, A. Crunteanu, G. Humbert, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, P. Blondy ; "Design and Characterization of Active THz Metamaterials based on Metal-Insulator Transition of VO<sub>2</sub> Patterns" ; 7th International Congress on Advanced Electromagnetic

Materials in Microwaves and Optics – Metamaterials 2013, Bordeaux, France, 16-21 September, (2013).

- 14.** J.-C. Orlianges, R. Zaabi, C. Champeaux, F. Dumas Bouchiat, P. Carles, R. Mayet, E. Laborde, **J. Leroy**, A. Crunteanu ; "Oxide thin films containing metal nanoparticles : monitoring the physical properties" ; Energy Materials Nanotechnology (EMN Spring), Walt DisneyWorld Swan and Dolphin, Orlando FL, USA, (2013), conférence invitée.

#### **7 Conférences nationales :**

- 15.** A. Crunteanu, **J. Leroy**, J. Givernaud, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, A. Catherinot, P. Blondy ; "Current-Induced oscillations in two-terminals electrical switches based on Metal-Insulator Transition of VO<sub>2</sub>" ; French Symposium on Emerging Technologies for Micro-nanofabrication, France, (2010).
- 16.** **J. Leroy**, A. Crunteanu, J. Givernaud, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, A. Catherinot, P. Blondy ; "Génération d'auto-oscillations électriques dans des dispositifs à base de films de VO<sub>2</sub> présentant une transition de phase isolant-métal" ; 17èmes Journées Nationales Microondes, France, (2011).
- 17.** **J. Leroy**, J. Givernaud, A. Crunteanu, D. Mardivirin, C. Champeaux, J.-C. Orlianges, A. Catherinot, P. Blondy ; "Analyse de la durée de vie de commutateurs électriques basés sur la transition isolant- métal du dioxyde de vanadium" ; 17èmes Journées Nationales Microondes, JNM 2011, France, (2011).
- 18.** **J. Leroy**, A. Crunteanu, G. Humbert, D. Ferachou, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, P. Blondy ; "Métamatériaux accordables dans le domaine TéraHertz à base de matériaux à transition isolant/métal" ; 12èmes Journées de Caractérisation Microondes et Matériaux, France, (2012).
- 19.** **J. Leroy**, A. Crunteanu, G. Humbert, D. Passerieux, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, P. Blondy ; "Caractérisation de la transition isolant/métal du dioxyde de vanadium du DC aux fréquences THz" ; 18èmes Journées Nationales Microondes, France, (2013).

- 20. J. Leroy**, A. Crunteanu, G. Humbert, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, P. Blondy ; “Métamatériaux dans le domaine térahertz accordables électriquement” ; 18èmes Journées Nationales Microondes, France, (2013).
- 21. A. Crunteanu**, **J. Leroy**, D. Bouyge, G. Humbert, P. Blondy, J.-C. Orlianges, C. Champeaux ; "Métamatériaux accordables pour les micro-ondes et le THz : intégration hybride avec des composants MEMS et matériaux à transition de phase ; Colloque National Métamatériaux (CNM 2013), Orsay, (2013), conférence invitée.

#### **4 Autres conférences :**

- 22. A. Crunteanu**, J.-C. Orlianges, **J. Leroy**, J. Givernaud, C. Champeaux, V. Madrangeas, P. Blondy ; “Dispositifs et systèmes accordables pour la microélectronique et l'optique en exploitant les propriétés fortement non-linéaires des matériaux à transition de phase isolant-métal” ; deuxième colloque francophone PLUridisciplinaire sur les Matériaux, l'Environnement et l'Electronique, France, (2011).
- 23. J. Leroy**, A. Crunteanu, J. Givernaud, D. Mardivirin, J.-C. Orlianges, C. Champeaux, A. Catherinot, P. Blondy ; “Propriétés non-linéaires des dispositifs électriques à deux terminaux basées sur la transition isolant-métal du dioxyde de vanadium” ; deuxième colloque francophone PLUridisciplinaire sur les Matériaux, l'Environnement et l'Electronique, France, (2011).
- 24. J. Leroy**, F. Cosset, A. Bessaudou, A. Crunteanu ; “Réalisation et caractérisation de films minces de dioxyde de vanadium par évaporation réactive au canon à électrons” ; deuxième colloque francophone PLUridisciplinaire sur les Matériaux, l'Environnement et l'Electronique, France, (2011).
- 25. J. Leroy**, A. Crunteanu ; “Metal insulator transition in vanadium dioxide films : properties and applications” ; GDR NAMIS International Autumn School, EPFL-IMT, CNRS/REMTO-ST, Neuchâtel, Suisse et Besançon, France, (2011).



## **Caractéristiques électriques non-linéaires de la transition isolant-métal du dioxyde de vanadium (VO<sub>2</sub>) ; application à la conception de métamatériaux accordables dans le domaine térahertz**

**Résumé :** Les travaux de recherche présentés dans ce manuscrit visent l'étude des caractéristiques électriques non-linéaires de la transition isolant-métal (MIT) du dioxyde de vanadium (VO<sub>2</sub>) et leurs applications à la réalisation de métamatériaux térahertz (THz) accordables. Cette transition MIT peut être initiée dans le matériau VO<sub>2</sub> de différentes manières (thermiques, électriques et optiques) et entraîne différentes variations de propriétés du matériau (conductivité, constantes optiques et diélectriques). Dans un premier temps, nous étudions les non-linéarités électriques présentes dans les caractéristiques courant-tension (I-V) de dispositifs à base de VO<sub>2</sub> lors de la transition MIT déclenchée électriquement. Cette étude met en évidence une transition MIT percolative avec un mécanisme d'origine thermique. Dans un deuxième temps, nous étudions l'application du changement des propriétés du matériau VO<sub>2</sub> à la réalisation de métamatériaux THz accordables à base de VO<sub>2</sub>. L'intégration hybride du VO<sub>2</sub> dans ces structures artificielles permet de leur conférer des réponses THz accordables, déclenchées thermiquement et électriquement. Nos travaux constituent une ouverture vers la réalisation de systèmes d'imagerie THz et de dispositifs accordables dans le domaine de l'infrarouge et de l'optique visible à base de métamatériaux accordables.

**Mots clés :** transition isolant-métal, dioxyde de vanadium, métamatériaux, térahertz, dispositifs accordables.

## **Non-linear electrical characteristics of the metal-insulator transition in vanadium dioxide (VO<sub>2</sub>) ; application towards the fabrication of tunable terahertz metamaterials**

**Abstract :** The research presented in this manuscript focus on studying the non-linear electrical characteristics of the metal-insulator transition (MIT) in vanadium dioxide (VO<sub>2</sub>) and their applications towards the fabrication of tunable terahertz (THz) metamaterials. The MIT transition in VO<sub>2</sub> can be triggered in different ways (thermal, electrical and optical) and is accompanied by different changes in material properties (conductivity, optical and dielectric properties). We studied the electrical non-linearities of the current-voltage (I-V) characteristics of VO<sub>2</sub> based devices during the electrically triggering of the MIT transition. This study highlights a percolative-type MIT transition based on a thermal mechanism. Based on these findings, we design, fabricate and characterize tunable THz metamaterials (0.1 – 1 THz) integrating VO<sub>2</sub> films and patterns. The THz frequency response of the hybrid metamaterials is significantly changing as the VO<sub>2</sub> material is performing a reversible thermally or electrically-driven MIT. Our research is opening new, interesting concepts towards the THz tunable and active systems and can be easily transposed for realizing active metamaterial-based devices in the infrared and visible optical domains.

**Keywords :** metal-insulator transition, vanadium dioxide, metamaterial, terahertz, tunable devices.