

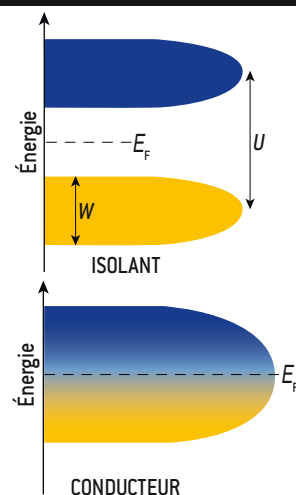
La conductivité d'un matériau, c'est-à-dire son aptitude à laisser passer les charges électriques, est déterminée par la structure de ses bandes d'énergies électroniques et par la position de son niveau de Fermi  $E_F$ . Les niveaux électroniques non occupés de plus basse énergie forment la bande de conduction (en bleu); les niveaux occupés de plus haute énergie forment la bande de valence (en orange). Dans les conducteurs, par exemple dans les métaux, le niveau de Fermi se trouve dans une bande permise, où il constitue le plus haut niveau d'énergie occupé:

les bandes de conduction et de valence se rejoignent. Dans les isolants, en revanche, le niveau de Fermi se situe dans une bande interdite. L'écart d'énergie correspondant empêche le passage des électrons vers la bande de conduction.

Dans certaines circonstances, la conductivité est altérée par la répulsion mutuelle des électrons. Certains matériaux, qui devraient être des métaux (car leur dernière bande est partiellement occupée), se comportent comme des isolants parce que l'énergie qui y est nécessaire pour vaincre la répulsion entre élec-

trons ( $U$ ) se révèle supérieure à la largeur de la bande ( $W$ ). Ainsi, les interactions entre électrons dans ces matériaux ont pour effet de doubler la bande à moitié remplie en deux bandes séparées par un saut d'énergie  $U$ , l'une, la bande inférieure, complètement remplie et l'autre, la bande supérieure, complètement vide.

Ces matériaux, qui se comporteraient comme des conducteurs si les interactions entre les électrons ne les obligeaient pas à se changer en isolants, sont ce que l'on nomme des isolants de Mott.



dimensions? Lorsque deux électrons se déplacent librement dans les trois directions de l'espace, leur répulsion électrostatique peut *a priori* les envoyer dans toutes les directions, de sorte qu'ils sont difficiles à localiser. Or, comme nous le verrons plus loin, les orbitales atomiques nécessaires pour former un isolant de Mott n'apparaissent que dans les systèmes où la localisation des électrons est relativement facile. Il aurait donc été dommage de ne pas profiter de cet avantage et de ne pas exploiter toutes les techniques de la physique de surface pour étudier précisément les isolants de Mott à seulement deux dimensions.

Soulignons toutefois que les systèmes physiques bidimensionnels ont souvent des propriétés très différentes de celles des systèmes tridimensionnels. Cela se manifeste dans bien des situations: par exemple, un matériau qui est magnétique à trois dimensions ne l'est plus forcément lorsqu'il est à l'état de couche mince.

Qu'est-ce qui change dans la pratique lorsqu'on étudie un phénomène électronique en surface? Pour que le système atteigne une énergie et une réactivité minimales, les positions atomiques – et les orbitales électroniques associées – tendent à se modifier par rapport à celles qui existent en volume. En surface, en raison de la disparition d'une partie des forces interatomiques, les atomes de la couche externe d'un cristal sont en effet susceptibles de se réorganiser. Ces réarrangements de surface sont qualifiés de «reconstructions».

De même que le cristal est caractérisé par une maille volumique, un motif tridi-

mensionnel d'atomes qui, répété dans toutes les directions, reproduit tout le cristal, une surface cristalline est caractérisée par une maille surfacique. On caractérise les reconstructions par deux nombres  $x$  et  $y$ , qui déterminent la partie de la surface à répéter par rapport à la maille volumique du cristal. Ces deux nombres, présentés sous la forme  $(x \times y)$ , sont éventuellement suivis par la donnée de l'orientation de la reconstruction (de la maille surfacique) par rapport aux directions principales des couches profondes, précédée de la lettre R. Par exemple, la reconstruction  $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$  décrit une réorganisation de la monocouche de surface aboutissant à un motif dont les deux faces ont une longueur égale à  $\sqrt{3}$  fois la longueur d'une face de la maille volumique et qui est en outre tourné de 30 degrés par rapport aux mailles des couches profondes.

### Isolant de Mott à deux dimensions

Pour réaliser un isolant de Mott à deux dimensions, les surfaces semi-conductrices étaient les meilleures candidates, car leurs bandes d'énergie électronique sont étroites. Les électrons y sont pour cette raison assez localisés, de sorte que l'on peut s'attendre à ce que la répulsion coulombienne ait un effet important. Les expériences portant sur des surfaces ont débuté dans les années 1990, mais jusqu'en 2006, les seules surfaces identifiées comme isolants de Mott étaient une variété de carbure de silicium (SiC) ou le silicium lui-même. Dans ce dernier cas, il faut modifier

le nombre d'électrons de surface par dopage (addition) simultané de bore et de potassium, ce qui produit une bande de conduction à moitié remplie.

En 1997, Hanno Weitering, de l'Université du Tennessee à Knoxville, aux États-Unis, a étudié avec ses collègues une reconstruction  $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$  réalisée à partir d'une couche mince de potassium déposée sur du silicium dopé avec du bore. Une telle surface plate a une maille surfacique ne comportant qu'un seul électron disponible. L'un des résultats de la théorie des bandes est que si le nombre total d'électrons dans la maille est impair, alors la bande de conduction est à moitié remplie, de sorte que le solide est un conducteur métallique. La détermination expérimentale des états électroniques par photoémission à haute résolution a cependant montré que le système de H. Weitering ne se comportait pas comme un conducteur.

La photoémission à haute résolution peut être inversée en envoyant des électrons sur le matériau, puis en détectant cette fois les photons émis, ce qui permet d'étudier les états électroniques vides du système (que les électrons incidents remplissent en émettant des photons). En procédant ainsi, H. Weitering a pu conclure que son système à reconstruction  $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$  est un isolant de Mott, même si son équipe n'a pu observer directement la transition métal-isolant.

À la même époque, Leif Johansson de l'Université de Linköping, en Suède, Jean-Marc Themlin, à Marseille, et leurs collègues travaillaient pour leur part sur

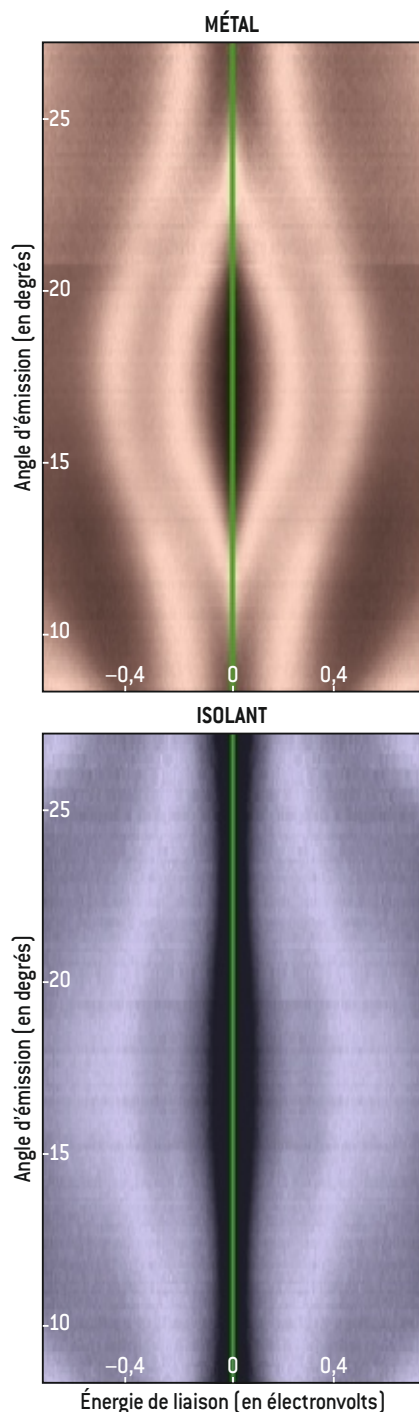
une surface de structure pratiquement identique, sauf que le substrat était en carbure de silicium au lieu d'être en silicium. Là encore, on s'attendait à ce que la reconstruction de surface soit métallique, mais elle s'est à nouveau révélée isolante. Une fois de plus, la transition métal-isolant n'avait pu être observée directement, ce qui n'a rien d'étonnant. En effet, les structures en potassium sur silicium de H. Weiering ou en carbure de silicium de L. Johansson et J.-M. Themlin se trouvent être des isolants de Mott très stables qu'il est difficile de transformer en conducteurs métalliques par chauffage, l'augmentation de température modifiant trop leur surface.

### La transition observée sur une monocouche d'étain

Ainsi, la découverte à la fin des années 1990 d'isolants de Mott bidimensionnels fondait l'espoir de pouvoir observer directement la façon dont se déroule la transition de phase métal-isolant (en deux dimensions). À peu près au même moment, on a spéculé sur l'existence d'un état fondamental isolant de Mott dans le cas d'une couche mince d'étain sur germanium, mais sans en obtenir de preuve expérimentale.

En 2001, Fernando Flores, de l'Université autonome de Madrid, a montré par le calcul la stabilité de la reconstruction de surface ( $3 \times 3$ ) d'étain sur le germanium (existante) ainsi que celle d'une reconstruction ( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ ) R  $30^\circ$  également d'étain sur germanium, qui n'était alors qu'hypothétique.

Stimulée par ces travaux, notre collaboration franco-espagnole a enfin pu observer, pour la première fois, une transition métal-isolant sur une monocouche d'étain déposée sur du germanium, constituée d'un atome d'étain pour trois de germanium. En 2006, dans l'équipe de Daniel Malterre, à l'Université de Nancy, nous avons fait varier sous un vide poussé la température de ce système entre celle de l'ébullition de l'hélium liquide (4 kelvins, ou  $-269^\circ\text{C}$ ) et la température ambiante. Par microscopie à effet tunnel, nous avons suivi les reconstructions de surface en fonction de la température alors que se déroulait la transition métal-isolant (voir la figure 4).



**3. LA PHOTOÉMISSION** à haute résolution livre ici la structure de bande du système étain sur germanium des auteurs et la façon dont elle change avec la température. Les énergies et les angles des électrons libérés sont en effet caractéristiques de leurs états initiaux, ce qui permet de visualiser les énergies des électrons superficiels en fonction de leur quantité de mouvement, laquelle détermine leur angle d'émission. Ainsi, vers 140 kelvins (*en haut*), on note une bande d'énergie (zone brillante) qui englobe le niveau de Fermi (ligne verte) : le matériau se comporte comme un métal. Vers 12 kelvins (*en bas*), la bande qui recouvrait le niveau de Fermi a disparu : le matériau se comporte comme un isolant.

Ce changement d'état se révèle être le résultat d'une évolution de la structure cristalline de surface avec la température. Entre 150 et 50 kelvins, on a une reconstruction de surface ( $3 \times 3$ ) comportant trois atomes d'étain par maille, l'un d'eux étant plus haut que les deux autres. Toutefois, quand la température diminue vers 30 kelvins, les atomes d'étain se redispotent tous dans le même plan, de sorte qu'apparaît une reconstruction de surface ( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ ) R  $30^\circ$  ne comportant plus qu'un seul atome d'étain (voir l'encadré page ci-contre). Nous avons étudié cette surface par photoémission au synchrotron SLS (Source de lumière suisse), près de Zurich (voir la figure 2), et montré qu'elle se comporte comme un métal.

Nous avons ainsi réussi à observer l'évolution de la région du niveau de Fermi avec la température (voir la figure 3). Au-dessus de 30 kelvins, la dernière bande n'est que partiellement occupée et contient le niveau de Fermi, ce qui est typique d'un matériau métallique. Lorsque la température diminue, cette bande se retrouve bien au-dessous du niveau de Fermi, ce qui est caractéristique d'un isolant. Comme le nombre d'électrons ne change pas avec la température, la seule conclusion possible était que notre système avait bien subi une transition métal-isolant, la première jamais observée directement en surface.

Pour autant, nous ne pouvions en conclure avoir réussi à obtenir un isolant de Mott en surface. Trois types de transition métal-isolant différents existent en effet : les transitions d'Anderson, de Peierls et de Mott. La transition d'Anderson est due au désordre : les défauts peuvent piéger les électrons et empêcher leur mouvement, ce qui rend isolant un système initialement métallique. La transition de notre système n'était pas une transition d'Anderson, car les images par microscopie à effet tunnel montraient que les défauts ne jouent aucun rôle actif.

Dans la transition de Peierls, le réseau cristallin se déforme et subit une distorsion géométrique de sa périodicité, qui diminue l'énergie du système. On sait par ailleurs que cette distorsion résulte de l'immobilisation d'une onde de densité de charge électronique et, dans une telle situation, la taille de la maille surfacique est plus grande à basse température qu'à haute température. Or c'est l'inverse