HÉTÉROSTRUCTURES À BASE DE L'OXYDE MAGNÉTIQUE FERRIMAGNÉTIQUE SEMICONDUCTEUR FE2-XTIXO3- : VERS DES EFFETS DE POLARISATION DE SPIN

Présentée par Ali HAMIE
Discipline : physique
Laboratoire : GEMaC

Résumé :
Ce travail de thèse s'inscrit dans les recherches autour de la spintronique à base de films minces de Fe1.5Ti0.5O3-d et de Fe3O4 déposés sur un substrat SrTiO3(100) (STO (100)), compatible avec la technologie silicium.
La solution solide Ilménite-Hématite (Fe2-xTixO3-, FTO pour x=0.5) est prédite demi-métallique, i.e. totalement polarisée en spin. Le système FTO est naturellement de

structure rhomboèdrique (R-3) ou (R-3c) pour les structures avec un ordre (ou désordre) atomique des Ti selon l'axe c. Jusqu'à présent les films minces ont été déposés sur substrat isostructural Al2O3(0001) et ont montré la forte influence de la pression d' oxygène (étude précédente réalisée au GEMaC - Groupe d'Etudes de la Matière Condensée sur les propriétés semi-conductrices et magnétiques du matériau. La magnétite (Fe3O4), également prédite demi-métallique, très étudiée, présentent des mesures de polarisation de spin contradictoires. Ces deux oxydes ont une température de Curie très supérieure à 300K qui rendent ces deux oxydes de fer promoteurs pour les applications en spintronique à la température ambiante. Aucun (et peu respectivement) de travaux n'existaient au début de cette thèse sur la croissance de FTO/STO(001) (Fe3O4/STO(001) respectivement).
Nous avons mené l'élaboration par PLD des couches simples puis des hétérostructures et leur l'études par des techniques avancées de diffraction et d'analyse cristallographique (XRD et RHEED), de microscopie en champ proche (AFM, MFM) et microscopie électronique en transmission (TEM), magnétiques (SQUID et VSM), ainsi que des mesures des propriétés optiques par Spectrophotométrie (UV, Visible, IR) et de transport électrique.
Les couches minces de FTO/STO(001) conservent leur symétrie rhomboédrique sans que ls substrat induise un changement structural. Un ordre atomique R(-3) des cations de titane suivant l'axe (c) est obtenu pour une pression d'oxygène PO2=2.6×10-7 Torr. Le comportement ferrimagnétique de cet échantillon est à l'état de l'art pour cette composition x=0.5 avec une valeur d'aimantation de 1.57 B/formule chimique et une température de Curie de 415K. Les propriétés magnétiques des couches minces sont déterminées par l'ordre atomique de Ti selon c.
Les études des couches minces simples de Fe3O épitaxiées « cube sur cube » sur STO (001) montrent que des couches présentent une haute qualité cristalline avec une forte densité des domaines d'antiphase (APD pour Antiphase Domains) déterminée par TEM. Les propriétés magnétiques très proches des propriétés de la magnétite en à l'état massif.
La maitrise de la croissance de chaque couche à part nous a permis d'élaborer et d' étudier les bicouches épitaxiées Fe3O4/FTO/STO(100). La faible épaisseur de la couche FTO R(-3)c explique le retournement simultané de deux couches et l'absence de polarisation (« exchange bias ») lié au couplage interfacial entre les deux couches magnétiques. Les propriétés magnétiques de la bicouche sont semblables à celle de la couche simple de Fe3O4.

Abstract :
This work is a contribution to research about spintronics on artificial heterostructures

based on $Fe_{1.5}Ti_{0.5}O_{3-d}$ and Fe_3O_4 on a compatible Si-Technology $SrTiO_3(001)$ substrate.

The solid solution Ilmenite-Hematite ($Fe_{2-x}Ti_xO_{3-}$, FTO for x=1.5) is predicted to be a half-metal by certain ab-initio calculations. The FTO system has a rhomboedric structure with R(-3) (order) or R(-3)c (disorder) symmetry, depending on the atomic order of titanium along the c-direction. Until now, FTO thin films have been deposited on the isostructural $Al_2O_3(0001)$ substrate. The previous study on FTO/ $Al_2O_3(0001)$, done at GEMaC (Groupe d'Etudes de la Matière Condensée) have shown a strong influence of the oxygen pressure during the growth process on semi-conducting and magnetic properties. The magnetite (Fe_3O_4), well studied, is also predicted to have half-metallic behavior, leading for a full spin polarization (100%). With Curie temperatures much higher than 300K, these two iron oxides are very promising materials for spintronics room temperature applications. No work has been reported yet for the growth of FTO/STO thin film and seldom works on the growth of Fe_3O_4/STO.

We perform epitaxy on STO(001) substrate of simple FTO and Fe_3O_4 thin films and heterostructures by Pulsed Laser Deposition (PLD) and studies them with advanced techniques such as XRD, RHEED and AFM and High-Resolution Transmission Electron Microscopy and EELS, and as SQUID and VSM magnetometries, (UV-visible-IR) spectrophotometer for the optical properties, and also transport measurements.

FTO/STO(001) thin films remain with rhombohedral structure without induced distortion from the compressive strain of the substrate on the films. An atomic order of the Ti along the (c) axis has been found for the sample prepared under oxygen pressure $PO_2=2.6\times10^{-7}$ Torr and substrate temperature TS=730°C. A ferromagnetic behavior with a "state of the art" magnetization (1.57 B/formula) for this composition x=0.5 is found for this ordered sample. The magnetic properties of the thin films depend mostly on the order/disorder symmetry.

An epitaxial "cube on cube" of single phase Fe_3O_4 is been obtained on STO(100). The films showed a high crystalline quality with magnetic properties close to the ones of the bulk. A high density of the anti-phase boundaries is found on these thin films by TEM.

The control of the growth of the thin films of FTO and Fe_3O_4 separately deposited on STO(001) allowed us to elaborate a bilayer Fe_3O_4/FTO/STO(001). No "exchange bias" is found. The small thickness value of the FTO film and the low coercive field of R(-3)c FTO induce a simultaneous magnetic switching of the Fe_3O_4/FTO bilayer. The magnetic properties are similar to Fe_3O_4/STO(001) single film.

Jury :

Nathalie VIART, professeur des universités, université Louis Pasteur/département de chimie et des matériaux inorganiques - UMR 7504 - Strasbourg - rapporteur
Yunlin ZHENG, chargé de recherche, Institut des nanosciences de Paris/UMR 7588 - Paris - rapporteur
Yves DUMONT, professeur des universités, université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines/laboratoire Groupe d'étude de la matière condensée (GEMAC) - Versailles - directeur de thèse
Olena POPOVA, ingénieur de recherche, université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines/laboratoire Groupe d'étude de la matière condensée (GEMAC) - Versailles - codirecteur de thèse
Pierre GALTIER, professeur des universités, université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines/CNRS/laboratoire Groupe d'étude de la matière condensée (GEMAC) - Meudon - examinateur
Karol HRICOVINI, professeur des universités, université de Cergy-Pontoise - Laboratoire de physique des matériaux et des surfaces (LPMS) - EA2527 - Cergy-Pontoise - examinateur
Bénédicte WAROT-FONROSE, chargé de recherche, Centre d'élaboration de matériaux et d'études structurales (CEMES) - CNRS UPR 8011 - Toulouse - examinateur