

Two-Dimensional Superconductivity at Titanium Oxide Interfaces.

Johan Biscaras

► To cite this version:

Johan Biscaras. Two-Dimensional Superconductivity at Titanium Oxide Interfaces.. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2012. Français. NNT: . pastel-00779961

HAL Id: pastel-00779961 https://pastel.hal.science/pastel-00779961

Submitted on 22 Jan 2013 $\,$

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE - PARIS VI École Doctorale de Physique et Chimie des Matériaux









THÈSE DE DOCTORAT

Discipline : Physique

présentée par

M. Johan BISCARAS

Supraconductivité bi-dimensionnelle à l'interface d'Oxydes de Titane.

dirigée par Jérôme LESUEUR et Nicolas BERGEAL

Soutenue le 20 décembre 2012 devant le jury composé de :

M ^{me} Myriam Pannetier-Lecœur	SPEC - CEA (Saclay)	Rapporteur
M. Hervé Courtois	Université Joseph Fourier (Grenoble)	Rapporteur
M. Manuel BIBES	Unité Mixte de Physique - CNRS/THALES (Palaiseau)	Examinateur
M. Sergio Caprara	Université "La Sapienza" (Rome)	Examinateur
M. Cyril Proust	LNCMI (Toulouse)	Examinateur
M. Abhay Shukla	IMPMC - UPMC (Paris)	Président
M. Jérôme Lesueur	LPEM - ESPCI (Paris)	Invité
M. Nicolas Bergeal	LPEM - ESPCI (Paris)	Directeur

2

Laboratoire de Physique et d'étude des Matériaux ESPCI-Paristech 10, rue Vauquelin 75231 Paris cedex 05 École doctorale 397 4 place Jussieu 75 252 Paris cedex 05

À ma petite maman...

DEATH : "THERE IS ALWAYS TIME FOR ANOTHER LAST MINUTE" T. Pratchett, *Hogfather*

"Je déteste écrire des remerciements." J. Biscaras, Manuscrit de Thèse

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mes chefs Jérôme et Nicolas qui m'ont proposé ce sujet il y a trois ans et dont la présence et l'implication a été essentielle à la réalisation de ces travaux. Je remercie également le reste de mon équipe qui m'a beaucoup aidé, en particulier Simon à qui je souhaite bonne chance pour la suite et Cheryl, Maxime et Thomas Wolf.

Je remercie Ramesh Budhani et toute son équipe pour nous avoir fourni les échantillons sans lesquels ce travail n'aurait jamais vu le jour.

Je remercie l'équipe de théorie de la matière condensée de Rome avec qui nous avons beaucoup discuté pendant ma thèse, en particulier Lara, Marco et Sergio (et le bar à vins en bas de l'hôtel...).

Je remercie Cyril Proust, David Leboeuf et leurs équipes pour nous avoir accueillis au LNCMI dans la belle ville de Toulouse où nous avons fait d'importantes découvertes.

Je remercie l'unité de physique CNRS/THALES et le groupe d'oxytronique, en particulier Agnès Barthélémy, Manuel Bibes, et Nicolas Reyren avec qui nous avons pu établir une collaboration fructueuse.

Je remercie mes deux rapporteurs Myriam Pannetier-Lecœur et Hervé Courtois d'avoir accepté un peu à la dernière minute (cf. page précédente) de lire en détails ce manuscrit, avec ses nombreuses coquilles. Je remercie également le reste de mon jury, et en particulier Abhay Shukla pour son travail à l'école doctorale.

Je remercie Philippe Monod, cher collègue et néanmoins ami, de m'avoir fait partager son savoir et sa pédagogie avant de partir en retraite. Je remercie également Brigitte Leridon de m'avoir fait rentrer dans le labo pour mon stage de M2 et m'avoir expliqué la physique du solide en tut' à PC.

Je remercie mes quelques stagiaires, Timothé, Thomas, disciple (Rémi), et ma petite Camille d'avoir supporté mes travers tyranniques pendant quelques mois.

Je remercie Ricardo P. S. M. Lobo toujours présent et disponible (et très bien outillé), avec qui j'ai pu m'initier à la spectro IR.

Je remercie Ludovic Olanier pour son travail à l'atelier, et sa patience quand on se plante entre des trous de 16 de 18.

Je remercie tous les autres membres, thésards, et visiteurs du labo avec qui j'ai pu discuter/piquer de l'helium/prendre un verre et dont j'oublierais certainement certains (et donc je ne ferais pas de liste).

Je remercie également Josiane, Jean-Pierre, Marie-Claude et Sophie pour leur travail et leur patience.

Enfin, je remercie le professeur Jacques Lewinner, dont le cours de physique du solide a inspiré beaucoup de personnes au fil des années, moi y-compris...

Je remercie également l'École Supérieure de Physique et Chimie Industrielles de la ville de Paris de m'avoir accueilli pendant plus de sept années, et dont l'ambiance fami-

liale entre ses élèves et ses promotions à été essentielle pour moi.

En particulier son foyer qui m'a permis de rencontrer des personnes exceptionnelles, mes amis les plus chers, mes frères et sœurs, ma maman... (et j'espère que ces personnes ne m'en voudront pas de ne pas faire de liste...)

Je remercie également mon petit Radium pour toutes nos soirées passées à ronronner.

Je remercie spécialement Randall Munroe qui m'a accompagné pendant toute ma thèse.

Je remercie enfin ma famille qui me soutiens depuis toujours et que je ne vois probablement pas assez...

Résumé

Ce travail présente l'étude du transport électronique à l'interface entre deux oxydes isolants le $SrTiO_3$ et le LaTiO₃.

Lorsqu'une interface polaire est réalisée à la surface d'un substrat de SrTiO₃ non dopé, il se forme un gaz d'électrons bi-dimensionnel confiné près de l'interface. Ce phénomène a été mis en évidence pour différents oxydes isolants formant l'interface (LaAlO₃, LaVO₃, LaGaO₃,...). Nous nous sommes intéressés en particulier à l'interface avec l'isolant de Mott $LaTiO_3$. Nous avons montré que le gaz d'électrons présent à cette interface a un comportement métallique et est supraconducteur à très basse température. Nous avons également pu contrôler les propriétés de transport du gaz par effet de champ électrostatique. L'analyse de l'effet Hall à haut champ magnétique a montré que le gaz est composé de deux types de porteurs : une majorité de porteurs de faible mobilité, et une minorité de porteurs de mobilité plus importante. En accord avec un modèle de courbure de bande développé au cours de cette thèse, nous avons montré que les porteurs majoritaires sont confinés près de l'interface dans les sous-bandes les plus profondes, alors que les porteurs minoritaires sont contrôlés par le remplissage et le déconfinement de sous-bandes plus élevées en énergie. La supraconductivité est intrinsèquement liée à la présence de ces derniers. L'analyse du comportement critique de la transition supraconducteur-isolant en champ magnétique révèle que ces porteurs sont spatialement groupés en flaques de tailles mésoscopiques. Les mesures de magnetorésistance mettent en évidence la présence d'un fort couplage spin-orbite de type Rashba qu'il est possible de moduler par effet de champ électrostatique.

Mots-clefs

Supraconductivité, spin-orbite, Rashba, oxydes, interfaces.

Two-Dimensional Superconductivity at Titanium Oxide Interfaces

Abstract

We have investigated the electronic transport at the interface of two insulating oxides : $SrTiO_3$ and $LaTiO_3$.

A two-dimensional electron gas (2DEG) is formed when a polar interface is created at the surface of an un-doped SrTiO₃ substrate. This has been reported for several insulating oxide forming the interface (LaAlO₃, LaVO₃, LaGaO₃,...). In this work we focus on the interface with the Mott insulator LaTiO₃. We have shown that the 2DEG at this interface is metallic and superconducting at very low temperature. We have also modulated its transport properties by electric field effect. The Hall effect measured at very high magnetic field has shown that the 2DEG consist of two types of carriers : a majority of carriers have a low mobility, and a minority of carriers have a higher mobility. We have developed a band bending model of the interface which shows that the low mobility carriers are confined near the interface in the lowest sub-bands, whereas the high mobility carriers are controlled by the filling and spatial extension of sub-bands of higher energy. Superconductivity is linked to the appearance of these high mobility carriers. The quantum critical behaviour of the superconductor to insulator transition induced by magnetic field reveals that those high mobility carriers are spread in puddles of mesoscopic sizes. Magnetoresistance measurements evidence the presence of a strong Rashba spin-orbit coupling at the interface, which can also be modulated by electric field effect.

Keywords

Superconductivity, spin-orbit coupling, Rashba, oxides, inerfaces.

Table des matières

In	Introduction			13	
1	Oxydes et Hétérostructures				
	1.1	Oxyde	es de structure Pérovskite	. 15	
		1.1.1	Titanate de strontium : $SrTiO_3$. 17	
			Structure	. 17	
			Paraélectrique quantique et ferroélectricité incipiente	. 17	
			Structure électronique	. 19	
			$SrTiO_3$ dopé et supraconductivité	. 19	
		1.1.2	Titanate de lanthane : LaTi O_3	. 20	
			Structure cristalline	. 21	
			L'isolant de Mott	. 21	
			Antiferromagnétisme	. 21	
		1.1.3	Aluminate de lanthane : $LaAlO_3$. 22	
	1.2	Hétére	ostructures d'oxydes	. 23	
		1.2.1	$LaAlO_3/SrTiO_3$. 23	
			Conditions de croissance et conductivité	. 23	
			Origine du gaz : la catastrophe polaire	. 25	
			Propriétés électroniques du gaz d'électrons	. 26	
		1.2.2	$LaTiO_3/SrTiO_3$.	. 27	
		1.2.3	Autres hétérostructures à base de $SrTiO_3$. 27	
			$LaGaO_3/SrTiO_3$. 28	
			$LaVO_3/SrTiO_3$. 28	
			$GdTiO_3/SrTiO_3$. 28	
		1.2.4	La surface de $SrTiO_3$. 28	
			$SrTiO_3$ irradié en surface	. 28	
			$SrTiO_3$ dopé en surface par électrode à liquide ionique	. 29	
2	Par	tie Ex	périmentale	31	
	2.1	Croiss	sance et préparation des échantillons	. 31	
		2.1.1	$LaTiO_3/SrTiO_3$. 31	
		2.1.2	$LaAlO_3/SrTiO_3$. 33	
		2.1.3	Préparation des échantillons	. 33	
	2.2	Systèr	mes de mesures	. 34	
		2.2.1	Mesures de Résistivité	. 34	
		2.2.2	Mesures de Capacité	. 35	
		2.2.3	Cryostats utilisés	. 36	
			Cryostat à dilution	. 36	
			Mesures en champ magnétique pulsé	. 37	

			Mesures en angle (PPMS)	. 37
3	Étu	de et co	ontrôle électrostatique de l'état normal	39
	3.1	Résistiv	vité et nombre de porteurs	. 39
		3.1.1	Comportement de type liquide de Fermi	. 39
		3.1.2	Effet Hall et densité de porteurs	. 41
		3.1.3	Effet Hall à haut champ magnétique	. 44
	3.2	Contrôl	le électrostatique du nombre de porteur et irréversibilité	. 46
		3.2.1	Suppression des porteurs de haute mobilité à grille négative	. 46
			Effet Hall à haut champ magnétique	. 48
			Mesure de capacité et densité de porteur totale	. 50
			Comportement en température.	. 51
			Anisotropie	. 52
		3.2.2	Irréversibilité lors de l'application d'une grille positive	. 54
		-	Saturation apparente de la résistance et de la densité de porteur.	. 54
			Asymétrie de polarisation	56
			Étude de la dynamique de fuite des électrons	. 00 57
			Modèle de fuite thermique des électrons	59
			Validation expérimentale du modèle	. 00 60
			Irrávorsibilitó à l'interface La AlO ₂ /SrTiO ₂	. 00 64
	22	Modèlo	de courbure de la bande de conduction du $SrTiO_2$. 04 68
	J.J	Modele	Desition du problème	. 00 69
			Position du probleme	. 00
			Resolution numerique	. 70
			Importance des charges piegees	. (1
			Resultats des calculs	. 72
			Discussion	. 73
4	\mathbf{Sup}	oracondu	uctivité	77
	4.1	Suprace	onductivité bi-dimensionnelle	. 77
		4.1.1	Analyse BKT de la transition supraconductrice	. 80
		4.1.2	Analyse BKT-GL et inhommogénéités	. 81
		4.1.3	Saut de densité superfluide	. 85
	4.2	Contrôl	le électrostatique de la transition supraconductrice	. 87
	4.3	Transit	ion de phase quantique supraconducteur-isolant et comportement	
		critique	3	. 92
		4.3.1	Les transitions de phase quantique	. 93
		4.3.2	Application à la transition en champ magnétique	. 95
			Tensions de grille positives	. 95
			Tensions de grille négatives	. 97
			Diagramme de phase des champs critiques	. 99
			Scénario de flaques supraconductrices	. 101
		4.3.3	Transition quantique induite par la tension de grille	. 105
5	Cou	ıplage S	Spin-Orbite	109
-	5.1	Localis	ation faible	. 109
		5.1.1	Rupture du comportement semi-classique à basse température	109
		512	Interférences quantiques et rétro-diffusion	100
		513	Comportement en température	110
	52	Magnet	comperionent en comperature	111
	0.4	5 0 1	Magnátorásistango dos mátaux	111 ·
		0.2.1	magnetoresistance des metadas	

	5.2.2	Magnétorésistance en régime de localisation faible	. 113
	5.2.3	Influence du couplage spin-orbite	. 114
	5.2.4	Magnéto-transport mesuré en fonction de la tension de grille	. 116
	5.2.5	Origine du couplage spin-orbite	. 120
		Relaxation de type Elliot-Yafet	. 121
		Relaxation de type D'Yakonov-Perel'	. 122
		Rashba	. 122
5.3	Dépen	dance angulaire de la magnétorésistance	. 123
5.4	Résum	é et conclusions sur la magnétorésistance	. 127
Conclu	isions e	et Perspectives	129
Bibliographie			131

Introduction

La physique des solides est depuis la fin du XIX^e siècle l'un des plus importants domaines de recherche fondamentale et appliquée. Elle allie le caractère parfois étrange et contre-intuitif de la physique quantique, avec la complexité des systèmes statistiques à grand nombre de particules. Les avancées scientifiques dans ce domaine ont révolutionné notre compréhension de la matière au niveau électronique, et également de l'interaction rayonnement-matière, en révélant de nouveaux phénomènes et de nouveaux états électroniques jusqu'alors inconnus.

En plus de la très grande variété d'ordres électroniques présents dans les différents matériaux, certains comportements apparaissent spécifiquement à l'interface entre deux matériaux différents. Ces interfaces ont également une propriété des plus intéressantes : elles sont en général facilement contrôlable par un champ électrique. Cette dernière caractéristique, à l'origine des transistors logiques, est l'une des plus grandes révolutions scientifiques et technologiques du XX^e siècle.

Le croissance quasi-exponentielle de la demande en ressources électroniques et informatiques a été un formidable moteur pour le développement de l'électronique actuelle, basée sur les interfaces de semi-conducteurs pour le traitement logique (transistors MOS-FET), et les jonctions tunnel ferromagnétiques pour le stockage de l'information (la magnétorésistance géante, ou GMR, est aujourd'hui partie intégrante des têtes de lectures des disques durs). La capacité croissante à contrôler les surfaces au niveau atomique est allée de pair avec la recherche fondamentale sur les interfaces de semi-conducteurs et a permis l'émergence d'un nouveau domaine, celui de la physique mésoscopique.

Les récentes avancées dans le contrôle et la croissance d'interfaces de matériaux présentant des ordres électroniques plus complexes que les semi-conducteurs, tels que les oxydes de métaux de transition, laissent entrevoir les concepts qui seront les bases d'une électronique intégrée potentiellement plus efficace et plus rapide : par exemple, la fusion du traitement et du stockage de l'information par la manipulation cohérente des spins électroniques, baptisée spintronique. Dans ce domaine, plusieurs voies de développement sont envisagées : une intégration de composants spintroniques greffés aux systèmes à base de silicium conventionnels; ou une création plus innovante de systèmes totalement basés sur des oxydes.

Si ces études pourront un jour donner naissance à un nouvelle génération d'électronique, elles sont à l'heure actuelle dans une étape naturelle et nécessaire : l'étude des propriétés fondamentales de ces matériaux.

Les oxydes de métaux de transition présentent une grande variété d'ordres électroniques et magnétiques (isolants de bandes ou de Mott, métaux et isolants ferro- ou antiferromagnétiques, ferroélectriques, supraconducteurs...) dont certains sont toujours l'objet d'intenses recherches. Leur structure (nous nous limiterons ici à la structure Perovskite) plus complexe que celle des semi-conducteurs a longtemps été un frein à la croissance contrôlée de couches nanométriques.

La croissance d'interfaces atomiquement planes de différents oxydes isolants (LaTiO₃ et SrTiO₃ en 2002[91], et LaAlO₃ en 2004[90]) a ouvert la voie à l'étude des hétérostructures du titanate de strontium. En effet, ces interfaces ont révélé de nombreuses propriétés intéressantes. En premier lieu, ces interfaces sont conductrices avec un comportement métallique alors que les deux matériaux parents sont isolants. Elles se sont également révélées être supraconductrices, avec un fort couplage spin-orbite, et potentiellement magnétiques. De plus, ces propriétés peuvent être contrôlées par effet de champ électrostatique, ce qui confère à ces systèmes une propriété quasi-unique dans la physique des électrons corrélés : les paramètres électroniques peuvent être modifiés de manière continue et réversible.

Si le système le plus étudié par la communauté est l'interface $LaAlO_3/SrTiO_3$, d'autres couples d'oxydes ont montré des propriétés similaires à celle-ci. En particulier l'interface $LaTiO_3/SrTiO_3$ qui a fait l'objet principal de cette thèse. Durant ces trois années, nous avons montré que cette interface était le siège d'un gaz bi-dimensionnel d'électrons confiné, métallique, supraconducteur, et soumis à un fort couplage spin-orbite. Nous avons également montré que ces propriétés pouvaient être contrôlées par effet de champ, en appliquant une tension sur une électrode de grille. Ceci nous a permis d'étudier leurs variations avec la densité électronique.

Ce manuscrit est construit autour des différentes propriétés énoncées ci-dessus.

Nous commencerons par une introduction aux oxydes de structure Perovskite et aux interfaces qui ont été étudiées récemment en rapport avec nos travaux. Le second chapitre est consacré aux détails techniques concernant la croissance et la mesure des échantillons.

Le troisième chapitre s'intéressera aux propriétés de base du gaz d'électrons, tels que la densité et mobilité des porteurs, ainsi que l'effet non-trivial de la tension de grille sur ces quantités. Nous verrons que le gaz d'électrons est constitué de deux types de porteurs dont les densités et mobilités sont contrôlées par la tension de grille. Nous avons développé un modèle de courbure de bande emprunté aux semi-conducteurs pour interpréter ces résultats.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude de la supraconductivité dans ce système intrinsèquement bi-dimensionnel. Nous verrons que la séparation en deux types de porteurs est un élément essentiel à la compréhension du comportement de la supraconductivité avec la tension de grille. La transition vers l'état isolant en fonction de différents paramètres extérieurs, comme le champ magnétique et la tension de grille sera également analysée dans le cadre des transitions de phase quantiques.

Enfin, le dernier chapitre présentera les résultats que nous avons obtenus par l'étude de l'état de localisation faible. Nous verrons que la magnétorésistance indique la présence d'un couplage spin-orbite fort qu'il est possible de contrôler par la tension de grille.

Chapitre 1

Oxydes et Hétérostructures

1.1 Oxydes de structure Pérovskite

Les oxydes de structure Pérovskite représentent une vaste famille de composés aux propriétés extrêmement diversifiées. Leur formule générale est ABO₃, A et B représentant des cations. La structure idéale est cubique, les ions B étant situés aux sommets du cube et les anions d'oxygène au centre des arêtes, formant un octaèdre autour de l'ion B. L'ion A est au centre du cube en coordinence 12 avec les oxygènes (figure 1.1).



FIGURE 1.1 – Maille élémentaire de la structure Pérovskite idéale ABO₃. Les atomes d'oxygène sont représentés par des disques hachurés. Chaque cation B est entouré d'un octaèdre d'oxygène. Un des octaèdres est représenté en grisé.

La structure est en général fortement ionique, les ions oxygènes portant une charge formelle -2 et les cations une charge formelle vérifiant $Q_A + Q_B = +6$. Le grand nombre de possibilités pour les combinaisons (A, B) diversifie le spectre des propriétés présentes dans la structure Pérovskite. La structure cubique ou pseudo-cubique commune permet également d'élargir ce spectre en facilitant les dopages non stœchiométriques des sites A et B. Parmi les choix possibles pour le composé B, les métaux de transition sont particulièrement intéressants de par leur aptitude à accepter plusieurs degrés d'ionisation, facilitant leur dopage chimique et électrostatique. En particulier, les composés de la première ligne de métaux de transition présentent des phases électroniques fortement corrélées, comme des isolants de Mott ou des isolants de transfert de charge, dues au remplissage des souscouches 3d en environnement octaédrique :

- Pour les métaux situés à gauche du bloc d (comme le titane et le vanadium), l'état électronique est contrôlé par le remplissage des sous-couches t2g qui sont bien séparées des orbitales p des atomes d'oxygène. L'énergie de répulsion Coulombienne U est grande devant la largeur de bande W donnant un état isolant de type Mott (comme par exemple LaTiO₃).
- Du coté droit du bloc d, les oxydes de métaux comme le nickel et le cuivre ont de fortes hybridations p d donnant lieu à des isolants de transfert de charge (comme par exemple LaNiO₃ [48]).
- Les dopages chimiques de ces phases électroniques ont montré l'existence de transitions métal-isolant, comme le montre la figure 1.2 (extraite de [41]).



FIGURE 1.2 – Diagramme de phase des oxydes de structure Pérovskite ternaires et pseudoternaires en fonction du cation A et du remplissage de la bande d, représentant les différents types d'isolants et de transitions. Les transitions de fermeture de bande interdite se font suivant les lignes verticales, celles de contrôle de valence suivant les lignes obliques. La grandeur W représente la largeur de la bande d, U l'énergie de répulsion Coulombienne d-d, et Δ l'énergie de transfert de charge p-d. Ré-imprimé d'après Fujimori [41], avec la permission de Elsevier, copyright 1992.

Cette thèse étant focalisée sur les hétérostructures à base de titane $LaTiO_3/SrTiO_3$ et $LaAlO_3/SrTiO_3$ pour comparaison, nous nous limiterons dans la suite à la présentation des composés $SrTiO_3$, $LaTiO_3$ et $LaAlO_3$.

1.1.1 Titanate de strontium : SrTiO₃

Le titanate de strontium a un rôle central dans les hétérostructures présentées ici. Le matériau en lui même est toujours l'objet de nombreuses recherches pour ses propriétés électroniques et diélectriques particulières. Certaines de ses caractéristiques principales sont résumées ici.

Structure

La structure Pérovskite du titanate de strontium est cubique à température ambiante (paramètre de maille a = 3.905 Å à 300 K) et subit différents abaissements de symétrie à basse température[71].

La transition cubique-tétragonale s'effectue autour de 105 K par la rotation antiferrodistorsive des octaèdres TiO_6 [96].

Lytle décrit également une transition orthorhombique en dessous de 65 K qui est probablement liée aux propriétés de la phase paraélectrique quantique du $SrTiO_3$ [71].

Paraélectrique quantique et ferroélectricité incipiente

Les propriétés diélectriques du titanate de strontium sont l'une de ses caractéristiques les plus exotiques. En effet, la constante diélectrique du SrTiO₃ est de l'ordre de 300 à température ambiante (relativement à la constante diélectrique du vide) et peut atteindre des valeurs typiques de 24000 à basse température. Son comportement en température est bien décrit par une loi de Curie-Weiss jusqu'à environ 65 K avec une température de Curie $T_C \approx +35$ K. Cependant la transition para-ferro n'a en fait jamais lieu, à cause des fluctuations quantiques de point zéro de la position des atomes de titane [83]. Cet état particulier de la matière porte plusieurs dénominations, dont paraélectrique quantique[83], paraélectrique cohérent[53], ou encore ferroélectrique incipient[130].

La transition ferroélectrique peut néanmoins être déclenchée à basse température par plusieurs mécanismes :

- par dopage chimique du baryum à la place du strontium [128] ou par dopage isotopique en ¹⁸O [44].
- par contraintes mécaniques [96].
- par application d'un champ électrique [53].

L'effet du champ électrique a été particulièrement étudié, notamment pour les applications du $SrTiO_3$ en tant que diélectrique (pour des condensateurs par exemple) et est crucial dans les travaux présentés ici. En effet, à basse température la constante diélectrique est fortement non-linéaire et chute brutalement avec l'application du champ. Les mesures de Neville *et al.* [86] ont montré un comportement de la forme :

$$\epsilon_R(F) = \frac{1}{A + BF} \tag{1.1}$$

où F est l'amplitude du champ électrique. Nos mesures (décrites dans les chapitres suivants) sont en bons accords avec ces résultats, comme le montre la figure 1.3.

La transition entre l'état paraélectrique et l'état ferroélectrique induit a été mesuré par Hemberger *et al.* (figure 1.4 [53]) et présente une transition en champ électrique en dessous de T = 40 K. La transition à T = 0 est supposée être un point critique quantique [125].



FIGURE 1.3 – Permitivité diélectrique relative mesurée par Neville *et al.* [86] et mesurée sur l'échantillon LTO-15ucB à partir d'une mesure de capacité (cf chapitre 2).



FIGURE 1.4 – Diagramme de phase du SrTiO₃ en fonction du champ électrique et de la température (E,T) établi d'après les mesures de la constante diélectrique. Les croix (\times) représentent la position du maximum de $\epsilon'(T)$, les cercles pleins (•) le maximum de $\epsilon''(T)$ et les cercles vides (•) celui de $\epsilon''(E)$. Figure ré-imprimée d'après Hemberger *et al.* [53]. American Physical Society, Copyright 1995.

Structure électronique

Le titanate de strontium est un isolant avec une large bande interdite d'environ 3.2 eV. La bande de conduction est principalement constituée des orbitales t2g du titane $(3d_{xy}, 3d_{yz}$ et $3d_{xz})$ alors que la bande de valence provient des orbitales 2p de l'oxygène[75].

L'anisotropie des orbitales t2g donne une géométrie particulière à la bande de conduction. En effet, le recouvrement des orbitales dans le plan de même dénomination (par exemple le recouvrement dans le plan (xy) des orbitales $3d_{xy}$) est beaucoup plus grand que dans la direction perpendiculaire (pour le même exemple la direction z) comme schématisé dans la figure 1.5. Il en résulte une anisotropie des masses effectives au point Γ , la masse dans le plan étant petite alors que la masse perpendiculaire est 10 à 20 fois plus grande. Les masses effectives répertoriées dans la littérature varient de 0.5 à 1.5 m_0 pour la masse légère selon les études et les techniques de mesures : la masse mesurée par oscillations quantiques dans du SrTiO₃ δ -dopé est de l'ordre de 1.2 à 1.5 m_0 [61], alors que la masse trouvée par photo-émission résolue en angle de la surface clivée est de 0.5 à 0.7 m_0 [103, 76].



FIGURE 1.5 – Représentation schématique des orbitales d_{xy} du titane montrant une forte anisotropie entre le recouvrement dans le plan xy et le recouvrement dans la direction z.

La symétrie cubique haute température impose que les trois sous-bandes soient dégénérées au point Γ (figure 1.6). La levée de dégénérescence à basse température est due en partie à la structure tétragonale et au couplage spin-orbite [75, 125, 124]. Notons cependant que la structure électronique est toujours l'objet de recherches pour accorder théories et résultats expérimentaux [15, 124].

SrTiO₃ dopé et supraconductivité

Le SrTiO₃ peut être dopé par plusieurs procédés. La substitution des atomes de titane Ti⁴⁺ par Nb⁵⁺, des atomes de strontium Sr²⁺ par La³⁺, ou la création de lacunes d'oxygènes permettent de générer un dopage de type électrons (n). Le dopage n induit une transition isolant-métal à des densités électroniques de l'ordre de 10^{17} à 10^{18} cm⁻³



FIGURE 1.6 – Représentation schématique de la bande de conduction du SrTiO₃ autour du point Γ dans la phase cubique haute température (à gauche) et dans la phase tétragonale basse température (droite).

[19]. La mobilité peut atteindre 10 000 $\text{cm}^2/(\text{V s})$ aux plus basses densités de porteurs et dépend de la concentration d'impuretés ionisées à basse température [38].

La supraconductivité du SrTiO₃ apparaît à très faible densité de porteurs : 10^{19} cm⁻³ (à comparer à 10^{22} cm⁻³ pour le cuprate La_{2-x}Sr_xCuO₄ par exemple) et à très basse température (0.4 K [64]). Aux plus hautes densités de porteurs, la supraconductivité du SrTiO₃ présente deux gaps, dont l'origine pourrait être liée à la structure en sous-bandes non dégénérées à basse température de la bande de conduction[13] (néanmoins, ces mesures n'ont jamais été reproduites). Le mécanisme généralement mentionné comme étant à l'origine de la supraconductivité est une interaction bi-polarons [56]. Ce même mécanisme pourrait également être à l'origine de la dépendance en T^2 de la résistivité du SrTiO₃ [124]. Néanmoins, il n'existe pas de consensus quant à l'origine de la supraconductivité dans le SrTiO₃ dopé.

1.1.2 Titanate de lanthane : LaTiO₃

Le titanate de lanthane LaTiO₃ est considéré comme l'exemple type de l'isolant de Mott antiferromagnétique. En effet, les atomes de titane de charge formelle 3+ (configuration $3d^1$) ont chacun un électron non apparié. Ces électrons sont disposés régulièrement sur un réseau carré, ce qui semble être la réalisation parfaite du modèle de Mott-Hubbard avec ordre magnétique. Néanmoins, le récent intérêt pour l'étude de l'interaction des degrés de liberté orbitaux a relancé les recherches expérimentales et théoriques sur ce matériau.

Structure cristalline

La structure du LaTiO₃ (de type GdFeO₃) est une structure déformée de Pérovskite cubique dont les octaèdres TiO₆ ont effectué une rotation complexe. La maille élémentaire est doublée suivant l'axe c et tournée de 45 ° dans le plan [a,b] par rapport aux axes de la structure cubique équivalente. Les paramètres de mailles équivalents à la maille cubique sont 3.985 , 3.975 , 3.96 Å à 300 K[27].

La transition antiferromagnétique à $T_N = 146$ K s'accompagne d'une élongation suivant l'axe *a* et d'une compression suivant *b* [27].

L'isolant de Mott

La configuration électronique du LaTiO₃ calculée par les modèles classiques à un électron (par exemple DFT-LDA) prédirait un comportement métallique, le niveau de Fermi se situant au milieu de la bande électronique t2g des titanes (à cause de leur configuration $3d^1$). Le titanate de lanthane est pourtant un isolant dominé par les corrélations électroniques, lesquelles ne peuvent être calculées par les modèles à un électron.

Un isolant de Mott se forme lorsque l'énergie de répulsion Coulombienne U entre deux électrons sur un même site (ici un titane) devient dominante devant l'énergie de stabilisation cinétique (terme de saut), ce qui est décrit par l'Hamiltonien minimal de Hubbard :

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle \sigma} (c^{\dagger}_{i,\sigma} c_{j,\sigma} + c^{\dagger}_{j,\sigma} c_{i,\sigma}) + U \sum n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow}$$
(1.2)

où t est l'intégrale de saut entre les sites voisins $\langle i, j \rangle$ (qui donne la largeur de bande sans interaction W = 8t), et $\sigma = \uparrow, \downarrow$ représente le spin de l'électron.

Lorsque U > W, l'effet de la répulsion est de séparer la bande de conduction initiale en deux sous-bandes dites de Hubbard, représentées dans la figure 1.7. Ce phénomène peut être observé avec presque tous les oxydes de métaux de transition ayant la bonne configuration électronique [41]. En effet, le recouvrement des orbitales 3d étant faible dans la structure Pérovskite, la bande 3d est intrinsèquement étroite. L'hybridation avec les orbitales 2p de l'oxygène différencie les isolants de Mott comme LaTiO₃, des isolants de transfert de charge comme les cuprates, où la bande 2p se trouve entre les deux sousbandes de Hubbard.

Pour LaTiO₃ la valeur de l'énergie de répulsion U est de l'ordre de 2 à 3 eV ([41]) et celle de la bande interdite E_g entre les sous-bandes de Hubbard est de l'ordre de 0.2 eV ([94]).

Antiferromagnétisme

Bloqués par l'interaction de Mott-Hubbard, les électrons $3d^1$ sont fixés sur chaque site de titane, et constituent donc un réseau de spins non appariés. Un ordre antiferromagnétique apparaît en dessous de la température de Néel $T_N = 146$ K. L'alignement des spins est de type G (c'est-à-dire que les spins sont alignés de manière anti-parallèle dans les trois directions de l'espace) avec une faible composante ferromagnétique due à une interaction



FIGURE 1.7 – Représentation schématique de la séparation de la bande d en deux sousbandes de Hubbard par l'interaction U. La bande p étant bien séparée de la bande d dans cet exemple, le système est un isolant de Mott (et non un isolant de transfert de charge).

de type Dzyaloshinski-Moriya [77].

L'ordre magnétique est cependant plus complexe et n'a été expliqué théoriquement que récemment. En effet, les composés voisins où le lanthane est remplacé par un autre cation trivalent comme l'yttrium ou le gadolinium ont un ordre ferromagnétique. De plus, le moment magnétique mesuré n'est que de 0.46 à 0.57 magnéton de Bohr (μ_B) par site de titane [77, 27]. Un modèle simple avec des électrons de spin S = 1/2 et un facteur de Landé g = 2 prédirait cependant une valeur $g\mu_B S = 1$ μ_B par site de titane. Parmi les théories et expériences menées pour expliquer ces propriétés, Haverkort *et al.* ont proposé que la dégénérescence des orbitales t2g soit levée par un champ cristallin produit par de petites distorsions orthorhombiques[52].

1.1.3 Aluminate de lanthane : LaAlO₃

Le LaAlO₃ a une structure Pérovskite déformée rhomboèdrique avec une rotation des octaèdres d'oxygène. La baisse de symétrie s'effectue à haute température (≈ 813 K) depuis la phase cubique. Le paramètre de la maille pseudo-cubique est de 3.79 Å à température ambiante.

La charge formelle portée par les ions aluminium est 3+ ce qui correspond à une configuration électronique $3s^0 3p^0$. Le LaAlO₃ est donc un isolant de bande. Sa bande interdite est de 5.6 eV [70].

1.2 Hétérostructures d'oxydes

Les techniques de croissance d'oxydes ont connu de grandes avancées dans les 20 dernières années. En particulier, SrTiO₃ et LaAlO₃ ont été étudiés pour leurs propriétés diélectriques comme substrat pour les supraconducteurs à haute température critique dont les paramètres de mailles sont voisins [109] (par exemple : a = 3.82 Å à 300 K pour YBa₂Cu₃O₇ [122]).

Les hétérostructures entre les isolants eux-mêmes ont également été étudiées pour optimiser leurs différentes propriétés diélectriques et ferroélectriques, comme les hétérostructures du ferroélectrique $BaTiO_3$ et $SrTiO_3$ [126].

En 2002 Ohtomo *et al.* créent les premiers super-réseaux atomiquement plans de $LaTiO_3/SrTiO_3$ [92, 91], puis en 2004, découvrent un gaz d'électrons de haute mobilité à l'interface entre les deux isolants de bandes $LaAlO_3$ et $SrTiO_3$ [90]. En 2007, Reyren *et al.* ont montré que ce gaz électronique était supraconducteur à très basse température [102] suscitant un vif intérêt dans la communauté scientifique.

Nous allons résumer dans la suite quelques résultats expérimentaux et théoriques relatant la physique des interfaces conductrices de $SrTiO_3$.

1.2.1 LaAlO₃/SrTiO₃

Conditions de croissance et conductivité

La croissance des hétérostructures de LaAlO₃/SrTiO₃ se fait à partir de substrats monocristallins de SrTiO₃ orientés¹ [001], dont la surface peut être préparée chimiquement pour sélectionner le plan de terminaison TiO₂ ou SrO. Les substrats traités montrent des terrasses atomiquement planes de quelques centaines de nanomètres de large et d'une unité cellulaire de hauteur. La croissance se fait ensuite par ablation laser pulsée (en anglais Pulsed Laser Deposition ou PLD) [91].

Depuis la découverte du gaz d'électrons à l'interface $LaAlO_3/SrTiO_3$, plusieurs propriétés importantes ont été montrées :

- Le comportement électronique des interfaces n'est pas symétrique par rapport à la terminaison du substrat de $SrTiO_3$, les interfaces partant d'une couche SrO (dites p) s'étant révélées isolantes alors que celles terminées TiO_2 (dites n) sont métalliques.
- La pression en oxygène pendant la croissance est un paramètre crucial qui contrôle les propriétés électroniques de l'interface : les couches épitaxiées sous très basse pression d'oxygène (< 10^{-5} mbar) sont très conductrices et métalliques jusqu'à basse température, alors que les couches épitaxiées sous des pressions plus élevées ont des résistances plus grandes et un comportement de localisation faible à basse température, comme le montre la figure 1.8 (extraite de [17]). Des mesures de la topographie de la résistivité par AFM à pointe conductrice sur la tranche d'une hétérostructure ont montré que dans le premier cas, la zone conductrice s'étend sur plusieurs centaines de nanomètres dans le SrTiO₃, la conduction étant vraisemblablement liée à un dopage en masse par lacunes d'oxygène[6]. Dans le second cas, la zone conductrice

^{1.} Les interfaces basées sur des cristaux orientés [011] ont été beaucoup moins étudiées, et leurs comportement est pour le moment difficile à comparer avec les interfaces [001].



est localisée sur quelques nanomètres et présente un caractère bi-dimensionnel.

FIGURE 1.8 – Résistivité en fonction de la température d'interfaces $LaAlO_3/SrTiO_3$ épitaxiées à différentes pressions d'oxygène. Ré-imprimé avec la permission de Macmillan Publishers Ltd : Nature Materials de Brinkman *et al.* [17], copyright 2007.

Lorsque la croissance de l'interface est effectuée sous les bonnes conditions de pression pour obtenir un gaz bi-dimensionnel, le gaz n'apparaît que pour une épaisseur de LaAlO₃ supérieure ou égale à 4 mono-couches (~ 16 Å) [119] et ne dépend pas significativement de l'épaisseur au-delà. Des craquements apparaissent néanmoins pour des épaisseurs de 20 couches, rendant l'interface plus résistive voire isolante [120, 101].

Ce comportement de seuil tend à indiquer que la création du gaz n'est pas due à des lacunes d'oxygène, mais à une origine physique intrinsèque à l'interface.

Origine du gaz : la catastrophe polaire

Le modèle de catastrophe polaire est l'un des modèles proposés pour expliquer l'origine du gaz d'électrons[84].

L'interface entre LaAlO₃ et SrTiO₃ peut être décrite comme un empilement de couches atomiques de TiO₂ et de SrO puis de AlO₂ et de LaO. Chaque plan dans le SrTiO₃ est intrinsèquement neutre : dans les plans TiO₂, les ions de titane portant une charge formelle 4+ compensent les deux charges 2– des ions d'oxygène ; et dans les plans SrO, la charge 2+ des ions de strontium compensent celle des ions d'oxygène. En revanche, la neutralité électrique n'est pas conservée plan par plan dans le LaAlO₃ : les plans AlO₂ sont chargés -1 et les plans LaO sont chargés +1, la neutralité est donc seulement conservée à l'échelle de la cellule élémentaire.

Il y a donc, à l'interface LaAlO₃/SrTiO₃ un saut de polarité, positif ou négatif suivant la terminaison SrO ou TiO₂ du substrat de SrTiO₃. D'après les lois fondamentales de l'électrostatique, il y a donc une croissance du potentiel électrique à mesure que le nombre de couches polarisées augmente, comme illustré dans la figure 1.9 (extraite de [84]). La croissance du potentiel est défavorable énergétiquement et le système contourne ce problème en compensant le saut de polarité.



FIGURE 1.9 – Schéma représentant le principe de la catastrophe polaire : (a) et (b) divergence du potentiel électrique pour les interfaces n et p respectivement, s'il n'y a pas la création du gaz. (c) et (d) le déplacement d'un demi-électron par plaquette permet d'éviter la divergence du potentiel. Ré-imprimé avec la permission de Macmillan Publishers Ltd : Nature Materials de Nakagawa *et al.* [84], copyright 2005.

De tels comportements ont été observés dans les interfaces de semi-conducteurs, dans lesquels la compensation du saut de polarisation à l'interface est ionique[50], c'est-à-dire une reconstruction de surface atomique.

Cependant, dans l'interface de type n, les électrons du LaAlO₃ peuvent éviter la divergence du potentiel en décalant un demi-électron par plaquette dans la couche TiO₂ en utilisant la propriété des atomes de titane à accepter des valences mixtes. Ce mécanisme de reconstruction de surface électronique explique le seuil de création du gaz en fonction du nombre de couches de LaAlO₃ : il faut un minimum de 4 couches pour créer un potentiel suffisamment grand afin que la formation du gaz soit énergétiquement favorable aux électrons. En revanche, une fois le gaz créé et la charge compensée, le nombre de couches de LaAlO₃ supplémentaires n'augmente pas le potentiel.

Ce modèle et les mesures de spectroscopie de perte d'énergie électronique (EELS) menées par Nakagawa *et al.* [84] expliquent également l'asymétrie entre les interfaces de types n et p: dans les interfaces de type n les électrons sont transférés dans les orbitales d du titane qui accepte alors une valence mixte 3+/4+, alors que dans l'interface p la compensation de la charge ne peut se faire que par les défauts ioniques, ce qui ne crée pas de gaz d'électrons.

Néanmoins, cette vision simple du modèle prédirait une densité de porteurs dans le gaz de 1/2 électron par maille, soit une densité électronique de $\sim 3.3 \times 10^{14}$ cm⁻². Les densités typiques mesurées sont de 5 à 10 fois inférieures à cette valeur[120]. Une explication possible est une compensation partielle du saut de charge menant à une croissance limitée du potentiel dans l'épaisseur de LaAlO₃ faisant de la condition au limite sur le dernier plan de LaAlO₃ épitaxié un paramètre non négligeable dans la création du gaz. En effet, si 4 couches de LaAlO₃ sont nécessaires pour créer un gaz d'électrons à une interface unique, deux mono-couches de LaAlO₃ encapsulées dans du SrTiO₃ (soit deux interfaces) suffisent à créer un gaz[97]. De même, il a été montré que l'adsorption de composés polaires au dessus de la couche de LaAlO₃ pouvait modifier les propriétés du gaz [129], et les calculs théoriques semblent montrer que l'alignement des bandes peut être également contrôlé par la croissance d'une couche métallique au dessus du LaAlO₃ [3].

Propriétés électroniques du gaz d'électrons

Le gaz d'électrons métallique à l'interface $LaAlO_3/SrTiO_3$ possède plusieurs propriétés intéressantes résumés ci-après :

- Il est supraconducteur avec des températures critiques de l'ordre de ~ 200 à 300 mK [102]. La supraconductivité semble présenter un caractère bi-dimensionnel.
- La supraconductivité ainsi que les propriétés normales de conduction peuvent être contrôlées au moyen d'une grille métallique déposée à l'arrière du substrat de $SrTiO_3$ [23, 7, 8] comme le montre la figure 1.10 (extraite de [23]).
- La tension de grille peut également contrôler les propriétés de transport sous champ magnétique, en particulier le couplage spin-orbite de type Rashba [8, 22]. La magnétorésistance perpendiculaire et parallèle a été étudiée extensivement dans ces interfaces, et sera discutée au chapitre 5.
- Les échantillons épitaxiés sous forte pression d'oxygène ont montré des signes de ferromagnétisme coexistants avec la supraconductivité [29, 68]. Une étude par imagerie de champ proche magnétique a montré l'existence d'îlots magnétiques séparés spa-



FIGURE 1.10 – Diagramme de phases d'une hétérostructure $LaAlO_3/SrTiO_3$ en fonction de la tension de grille et de la température. L'axe de gauche montre la résistance de l'état normal, l'axe de droite la température critique de la supraconductivité. Ré-imprimé avec la permission de Macmillan Publishers Ltd : Nature de Caviglia *et al.* [23], copyright 2008.

tialement de la supraconductivité [11]. Néanmoins, ces dipôles localisés ne peuvent expliquer à eux seuls la magnétisation dans le plan mesurée par magnétométrie de torsion[68]. Cette dernière mesure ne peut cependant pas exclure une séparation spatiale des phases magnétiques et supraconductrices.

1.2.2 LaTiO₃/SrTiO₃

Les interfaces entre le LaTiO₃ et le SrTiO₃ constituent le sujet principal du travail présenté ici et leurs propriétés seront donc détaillées dans les chapitres suivants. Nous allons néanmoins rappeler ici certaines propriétés :

- Les interfaces de type n sont conductrices, avec des résistivités comparables à celles de LaAlO₃/SrTiO₃.
- Le gaz d'électrons à l'interface peut être contrôlé par l'application d'un champ électrostatique, comme montré au chapitre 3.
- Ces interfaces sont supraconductrices à très basse température (chapitre 4).
- La magnéto-résistance de ces interfaces montre la présence d'un couplage spin-orbite fort, et contrôlable par effet de champ électrostatique (chapitre 5).

1.2.3 Autres hétérostructures à base de SrTiO₃

La palette d'oxydes isolants de structure Pérovskite compatible avec la structure du $SrTiO_3$ donne *a priori* un grand choix pour remplacer LaAlO₃ ou LaTiO₃, et ainsi explorer les possibilités de structures et d'ordres électroniques à l'interface. Néanmoins, la croissance d'oxydes représente un défi technologique, en particulier pour régler la stœchiométrie en

oxygène des couches épitaxiées, et les candidats possibles s'en trouvent réduits. Nous allons présenter de manière succincte trois de ces hétérostructures.

LaGaO₃/SrTiO₃

Perna *et al.* ont réalisé en 2010 la croissance de couches de LaGaO₃ sur un substrat de SrTiO₃ [98]. Le LaGaO₃ est un isolant à large bande ($E_G \sim 4.4$ eV [89]) similaire à LaAlO₃ (le gallium est situé une période en dessous de l'aluminium dans la classification périodique). Les propriétés électroniques de ces interfaces ont montré de fortes similarités avec les interfaces de LaAlO₃/SrTiO₃. L'interface est également supraconductrice autour de 200 mK.

LaVO₃/SrTiO₃

L'interface LaVO₃/SrTiO₃ a été étudiée par Hotta *et al.*[58]. Le LaVO₃ est un isolant de Mott antiferromagnetique [80] analogue du LaTiO₃. L'interface de type n présente une conductivité similaire à celles de LaAlO₃/SrTiO₃ et LaTiO₃/SrTiO₃ tandis que l'interface p est isolante. L'effet Hall présente des signes de non-linéarité en dessous de 50 K (cf chapitre 3). Néanmoins, la supraconductivité de cette interface n'a pas encore été montrée.

GdTiO₃/SrTiO₃

Un autre analogue du LaTiO₃ est le GdTiO₃ dans lequel le gadolinium porte la même charge formelle que le lanthane mais des orbitales 4f partiellement remplies et un rayon ionique plus faible. Les propriétés magnétiques du GdTiO₃ sont différentes de celles du LaTiO₃ : en dessous de $T_C \sim 30$ K les moments magnétiques de chaque sous-réseaux (celui des atomes de titane et celui des atomes de gadolinium) sont alignés ferromagnétiquement et anti-parallement entre eux, donnant un ordre ferrimagnétique. L'interface avec le SrTiO₃ a été réalisée par épitaxie par jet moléculaire par Moetakef *et al.* et montre que l'interface a un comportement conducteur, et que le GdTiO₃ est ferromagnétique[82]. Ces résultats semblent en accord avec une reconstruction de surface[81].

1.2.4 La surface de SrTiO₃

SrTiO₃ irradié en surface

Le SrTiO₃ seul peut être utilisé pour créer un gaz d'électrons à sa surface. Une des méthodes est de créer des lacunes d'oxygènes par irradiation d'ions Ar^+ en surface [100]. Le gaz d'électrons ainsi créé est métallique et montre des propriétés de conductions similaires aux interfaces LaAlO₃/SrTiO₃. L'utilisation d'une électrode de grille à l'arrière du substrat a également montré que les propriétés du gaz sont contrôlables par effet de champ électrique[87, 88]. Malgré la similarité apparente entre les interfaces et les surfaces irradiées, la supraconductivité de ces dernières n'a pas encore été mise en évidence. De plus, cette technique s'apparente à un dopage chimique de la surface du SrTiO₃, et est donc intrinsèquement différente du dopage physique créé dans les interfaces. Notons également que ces surfaces ne sont pas stables dans le temps, la conductivité disparaissant au bout de quelques mois lorsque les échantillons sont conservés à température ambiante sous atmosphère standard.

SrTiO₃ dopé en surface par électrode à liquide ionique

Une autre méthode pour créer un gaz d'électrons à la surface de SrTiO₃ est de créer un transistor à effet de champ directement sur la surface nue du SrTiO₃, c'est-à-dire avec une tension de grille au dessus de la surface. La méthode décrite par [123] utilise un électrolyte polymère liquide pour appliquer la tension de grille. Cette technique permet en effet de créer des couches ioniques sur chaque électrode du condensateur (la grille métallique, et la surface qui formera le gaz d'électrons) et ainsi de concentrer le champ électrique sur une distance d'environ 1 nm près de l'interface. Ce procédé permet d'atteindre de grandes modulations de la densité avec de faibles tensions. La polarisation s'effectue à haute température, dans la phase liquide de l'électrolyte ($\sim 200 \text{ K}$) et ne peut donc pas être modifiée directement à basse température. Ueno et al. ont ainsi mesuré la supraconductivité induite directement à la surface du SrTiO₃ par cette méthode[123]. La comparaison avec les interfaces de types LaAlO₃/SrTiO₃ et LaTiO₃/SrTiO₃ peut être faite en considérant la couche ionique à la surface du SrTiO₃ comme l'équivalent d'une couche polaire de LaO modulable électriquement. Cependant, la température critique ne semble dépendre que faiblement de la tension (et donc de la densité de porteurs), alors que la variation de la conductivité avec la tension de grille est importante. D'autres dispositifs utilisant une combinaison d'une électrode ionique et d'une électrode conventionnelle sous le substrat de $SrTiO_3$ devraient permettre d'analyser plus finement la transition supraconductrice et le contrôle du gaz.

Chapitre 2

Partie Expérimentale

Ce chapitre détaille les aspects expérimentaux de ce travail de thèse. La première partie est consacrée à la croissance des échantillons, réalisée par l'équipe de R.C. Budhani (IIT Kanpur, Inde) pour les échantillons $LaTiO_3/SrTiO_3$ et par l'équipe d'A. Barthélémy et M. Bibes (UMR CNRS/Thales, Palaiseau, France) pour les échantillons de $LaAlO_3/SrTiO_3$, ainsi que leur préparation pour les mesures de transport. La deuxième partie est consacrée à la description des instruments et techniques de mesure utilisés.

2.1 Croissance et préparation des échantillons

2.1.1 LaTi O_3 /SrTi O_3

La croissance des échantillons de La $TiO_3/SrTiO_3$ a été effectuée par A. Kushwaha, A. Rastogi, et R.C. Budhani (Indian Institute of technology, Kanpur, Inde) par déposition laser pulsée (PLD) avec un laser excimer.

La croissance se fait à partir de monocristaux de $SrTiO_3$ accessibles commercialement (CrysTec GmbH Allemagne). Les cristaux orientés (001) ont reçus un traitement d'acide fluorhydrique tamponné pour exposer une terminaison TiO_2 [65]. Les substrats sont ensuite collés sur le porte-échantillon chauffant de l'appareil de PLD et chauffés entre 850 et 900°C sous une atmosphère de 0.260 mbar (200 mTorr) d'oxygène pour réaliser la reconstruction de surface.

La source de LaTiO₃ est un bloc de 22 mm de diamètre de LaTiO₃ stœchiométrique. L'ablation laser a été effectuée sous une pression partielle d'oxygène de 1.3×10^{-4} mbar (10⁻⁴ Torr) avec une énergie de ~ 1 J/cm² par impulsion à une fréquence de répétition de 3 Hz pour réaliser un taux de croissance de 0.12 Å/s.

La caractérisation par rayons-X montre la bonne croissance de la phase $LaTiO_3$ sur le substrat de $SrTiO_3$ (figure 2.1).

L'épaisseur de la couche de La TiO_3 des échantillons est nominalement donnée par le taux de croissance et le temps de déposition.

Un échantillon de 10 u.c. a été caractérisé par microscopie électronique à transmission (TEM) par F. Pailloux et J. Pacaud (Institut Pprime, UPR3346 CNRS/Université de Poitiers, France). Les clichés TEM (figure 2.2) montrent également que la croissance est épitaxiale et que la rugosité de l'interface est d'environ une maille élémentaire. En revanche la surface et l'épaisseur de LaTiO₃ semblent inhomogènes.



FIGURE 2.1 – Figure de diffraction de rayons-X (balayage $\theta - 2\theta$) d'un film de LaTiO₃ (F) déposé sur un substrat (001)SrTiO₃. Après avoir soustrait la contribution du substrat (S), le paramètre de maille du film est mesuré à 3.956 Å (encart), en accord avec de précédentes études [51] et proche du paramètre de maille du LaTiO₃ massif [27]. Diffractogramme réalisé par l'équipe de R.C. Budhani (Indian Institute of Technology, Kanpur).



FIGURE 2.2 – Cliché TEM haute résolution d'un échantillon de 10 mailles de LaTiO₃ épitaxiées sur SrTiO₃. Le paramètre de maille $a_{\rm STO} = 3.905$ Å correspond au SrTiO₃ cubique, et ceux du LaTiO₃ ($a_{\rm LTO} = 3.905$ Å et $c_{\rm LTO} = 4.09$ Å) montrent que ce dernier subit une compression latérale de ~ 2%. Cliché réalisé par par F. Pailloux et J. Pacaud (Institut Pprime, UPR3346 CNRS/Université de Poitiers, France).

2.1.2 LaAlO₃/SrTiO₃

Les échantillons de LaAlO₃/SrTiO₃ ont été également épitaxiés par PLD par N. Reyren et E. Lesne dans l'équipe d'A. Barthélémy et M. Bibes(UMR CNRS-Thalès, Palaiseau, France).

Les substrats de $SrTiO_3$ orientés (001) (Crystec ou SurfaceNet) ont reçu un traitement d'acide fluorhydrique et de recuit, comme décrit précédemment, pour exposer les terrasses de TiO₂. Le substrat est maintenu à une température de 730°C pendant la croissance.

La source de LaAlO₃ est un monocristal ablaté par un laser excimer KrF (248 nm) à une fréquence de répétition de 1 Hz et une énergie de fluence comprise entre 0.6 et 1.2 J/cm^2 . La croissance est effectuée sous une atmosphère d'oxygène de 2×10^{-4} mbar. Le suivi en temps réel par RHEED (diffraction par réflexion d'électrons à haute énergie) permet de contrôler la croissance qui s'effectue couche par couche à la maille élémentaire près. La source est à environ 57 mm du substrat, ce qui donne une vitesse de croissance d'environ 0.2 Å/s.

Après la croissance du film, l'échantillon est refroidi à 500°C sous une pression d'oxygène de 0.1 mbar. À cette température la pression d'oxygène est augmentée jusqu'à 400 mbar puis maintenue pendant 30 minutes pour réduire la présence de lacunes d'oxygène. L'échantillon est ensuite refroidi à température ambiante.

Les clichés par microscopie à force atomique (AFM) de la surface avant et après déposition (Figure 2.3) montrent des marches dont la hauteur correspond à une maille élémentaire de SrTiO₃. La largeur des terrasses est typiquement de 300 nm ce qui correspond à un défaut d'angle de polissage de la surface de moins de 0.1 degré.

Notons que cette thèse est principalement axée sur l'étude des échantillons de type $LaTiO_3/SrTiO_3$. Un seul échantillon de $LaAlO_3/SrTiO_3$ a été étudié pour montrer l'universalité du comportement irréversible de la polarisation de grille, décrit au chapitre 3.

2.1.3 Préparation des échantillons

Avant la mesure, certains échantillons ont été découpés avec une scie à fil suivant deux directions perpendiculaires pour mesurer l'anisotropie de la résistance. Les échantillons seront nommés ci-après par la nature de la couche épitaxiée (LAO pour LaAlO₃ et LTO pour LaTiO₃) suivi du nombre de mailles élémentaires épitaxiées nominal (ex : 10uc), suivi d'une lettre de numérotation (ex : A, B) et de la direction principale de mesure (xx, ou yy) si nécessaire. Les échantillons mesurés au cours de cette thèse sont les suivants :

- LTO-10uc
- LTO-15ucA (xx et yy)
- LTO-15ucB (xx et yy)
- LAO-5uc (uniquement au chapitre 3.)

Une électro de grille métallique titane/or (3 nm Ti et ~ 100 nm Au) est ensuite évaporée sous vide au LPEM au dos de chaque échantillon pour contrôler le gaz d'électrons par effet de champ. Le substrat est refroidi par flux d'eau pendant l'évaporation. Les échantillons sont ensuite collés (côté grille) sur une plaque épaisse de saphir ou de MgO pour isoler l'électro de grille du porte-échantillon, celui-ci étant généralement métallique et connecté à la masse du système de mesures.

Les échantillons sont ensuite connectés électriquement par microsoudure à ultrasons avec des fils d'aluminium (diamètre 25 μ m) directement sur la couche épitaxiée de manière à réaliser une géométrie de croix de Hall. Les contacts pris par cette procédure sont



FIGURE 2.3 – Cliché AFM des terrasses à la surface d'une couche de 5 u.c. de LaAlO₃ épitaxiée par PLD sur SrTiO₃. La hauteur des marches est d'environ 4 Å soit une maille élémentaire de SrTiO₃. La largeur des marches est d'environ 300 nm. Image AFM réalisée par Nicolas Reyren (UMR CNRS-Thalès).

ohmiques et font typiquement quelques k Ω à température ambiante. Les échantillons sont ainsi mesurés sans graver la couche ni le substrat.

2.2 Systèmes de mesures

2.2.1 Mesures de Résistivité

La grandeur physique principalement étudiée dans ce travail de thèse est la résistance électrique des échantillons, que nous avons mesurée en fonction de différents paramètres (température, champ magnétique, tension de grille). La technique de mesure standard à quatre points est principalement la même quel que soit le cryostat utilisé, et est résumée dans la figure 2.4. Le même montage est utilisé pour mesurer la résistance longitudinale, et la résistance transverse (effet Hall) en connectant un deuxième voltmètre sur l'échantillon dans la direction perpendiculaire au courant (V_{Hall} sur la figure).

Pour les mesures en courant alternatif (AC), la source est un générateur basse fréquence (typiquement 15 Hz) branché sur une résistance de polarisation R_P grande devant la ré-



FIGURE 2.4 – Schéma de câblage pour les mesures de résistance des échantillons. À gauche : montage utilisant une source de tension (AC ou DC). Le voltmètre aux bornes de R_I mesure le courant traversant l'échantillon. À droite : montage utilisant une source de courant (DC). L'intensité du courant est donnée directement par la source. Le circuit de polarisation de l'électrode de grille est également représenté sur les deux montages.

sistance totale de l'échantillon (typiquement 1 M Ω). La résistance de précision $R_I = 1 \ \mathrm{k}\Omega$ permet de mesurer le courant traversant l'échantillon avec un voltmètre (ici un amplificateur à détection synchrone, synchronisé avec la source de tension basse fréquence). La tension aux bornes de l'échantillon est mesurée par un autre voltmètre identique.

Pour les mesures en courant continu (DC), le même montage peut être utilisé en remplaçant la source par une source de tension continue (par exemple un générateur de tension ou une pile), et les amplificateurs à détection synchrone par des voltmètres standard. Il est également possible de remplacer la source de tension par une source de courant, et ainsi d'imposer directement le courant. Dans les deux cas, les mesures doivent être effectuées en courant positif et en courant négatif pour supprimer les effets de forces électromotrices (f.e.m.) thermiques lors des mesures à basse température. Ce montage est également utilisé pour mesurer les caractéristiques courant-tension des échantillons supraconducteurs.

Les mesures en courant alternatif effectuées avec un amplificateur à détection synchrone sont d'une meilleure précision, et sans f.e.m. thermique. Elles permettent donc de faire passer moins de courant dans l'échantillon, ce qui est crucial lors des mesures à très basse température pour éviter les effets d'électrons chauds. Cependant, les mesures DC sont plus adaptées lorsque l'échantillon devient très résistif à basse température (en fonction de la tension de grille par exemple).

2.2.2 Mesures de Capacité

Pour comprendre l'effet du contrôle de la tension de grille sur le gaz d'électrons nous avons été amenés à mesurer la capacité entre l'électrode de grille et le gaz. En effet, la géo-
métrie de l'échantillon muni de son électrode de grille correspond à celle d'un condensateur dont les plans chargés sont le gaz d'électrons et l'électrode grille, avec pour diélectrique le substrat de SrTiO₃. Pour cela nous avons réalisé un montage de mesure d'impédance complexe différentielle permettant de mesurer la capacité de l'échantillon en fonction de la tension de grille. Ce montage est constitué de la source de tension de grille, imposant sa tension continue sur une résistance de polarisation, auquel nous ajoutons une tension alternative basse fréquence de petite amplitude devant la tension de grille par l'intermédiaire d'un transformateur (figure 2.5). Le voltmètre (un amplificateur à détection synchrone) aux bornes de la résistance R_I mesure la partie oscillante du courant, et celui connecté à l'échantillon la partie oscillante de la tension imposée aux bornes du condensateur. Les deux tensions mesurées sont en quadrature de phase pour un condensateur pur. Diminuer la fréquence de mesure permet de limiter l'influence de la variation de la résistance de l'échantillon en fonction de la tension de grille, néanmoins l'amplitude du courant alternatif et donc la précision de la mesure s'en trouvent diminuées.



FIGURE 2.5 – Schéma de câblage pour les mesures de capacité des échantillons.

L'inconvénient majeur de cette technique est que la mesure de capacité ne permet pas de compenser directement la capacité des câbles de mesures. Cette technique a donc été utilisée conjointement à une mesure absolue de la densité de porteurs (effet Hall) pour enlever la capacité parasite mesurée.

Notons que les appareils commerciaux de mesures "LCR" fonctionnent sur le même principe, mais ne permettent pas toujours d'ajouter une tension continue.

2.2.3 Cryostats utilisés

Cryostat à dilution

Le cryostat utilisé principalement dans ces travaux est un cryostat à dilution permettant de refroidir des échantillons jusqu'à environ 12 mK. Le cryostat est utilisé dans un Dewar à hélium liquide contenant une bobine supraconductrice permettant de générer des champs magnétiques de 7 Teslas.

Mesures en champ magnétique pulsé

Nous avons également été amenés à mesurer la résistance des échantillons à très haut champ magnétique au laboratoire des champs magnétiques intenses de Toulouse avec C. Proust et D. Leboeuf. Ces mesures ont été effectuées dans un cryostat à bain d'hélium liquide. L'échantillon, placé dans le bain d'hélium, est au centre d'une bobine de cuivre refroidie à l'azote liquide. Une batterie de condensateurs chargée à quelques dizaines de kilo-Volts permet de créer une impulsion de champ magnétique au cœur de la bobine d'une durée de quelques centaines de milli-secondes. La résistance est mesurée en DC suivant le montage de la figure 2.4 (gauche), le générateur de tension étant une pile 9 V. La tension et le courant traversant l'échantillon sont mesurés en fonction du temps par une carte d'acquisition à 500 MHz. Le champ magnétique est mesuré en intégrant la tension aux bornes d'une spire captant le flux au niveau de l'échantillon (loi de Lenz). Une mesure dans les deux sens du courant est nécessaire pour supprimer les effets de champs électriques induits par la loi de Lenz dans le circuit de l'échantillon. La figure 2.6 présente un exemple typique de la tension mesurée pour les deux sens du courant ainsi que la tension corrigée.



FIGURE 2.6 – Mesure typique de la tension aux bornes de l'échantillon pendant une impulsion de champ magnétique en fonction du temps, pour les deux sens du courant (I+et I-), ainsi que la tension corrigée pour tenir compte de la tension induite par le champ magnétique (Corr). L'encart montre les mêmes mesures en fonction du champ magnétique, et les flèches indiquent le sens du temps.

Mesures en angle (PPMS)

Certaines études ont également été effectuées sur un système automatisé de mesure de propriétés physiques "PPMS" (développé par la société Quantum Design) au LPEM. Cet

instrument est optimisé pour contrôler la température entre 1.5 et 400 K et le champ magnétique jusqu'à 14 Teslas. Le système de mesure de résistivité originalement implanté sur la machine a été supplanté par notre propre système décrit précédemment. Ce système est également doté d'un rotateur pouvant faire tourner les échantillons par rapport au champ magnétique. Nous avons utilisé ce dispositif pour les expériences décrites au chapitre 5.

Chapitre 3

Étude et contrôle électrostatique de l'état normal

Ce chapitre est consacré à l'étude des propriétés de transport dans l'état normal (*i.e.* non supraconducteur) des interfaces $LaTiO_3/SrTiO_3$, en particulier leur comportement métallique ainsi que le contrôle du gaz d'électrons par effet de champ électrostatique. Nous avons également développé un modèle de courbure de la bande de conduction du $SrTiO_3$ pour expliquer les différents phénomènes observés.

3.1 Résistivité et nombre de porteurs

Parmi les différents échantillons testés, seules les épaisseurs de LaTiO₃ de 10 u.c. et 15 u.c. se sont révélées métalliques. Les épaisseurs plus faibles, bien qu'en théorie plus intéressantes notamment par la présence prédite d'ordres orbitaux et magnétiques [93], ne sont pas conductrices aux basses températures, de même que les épaisseurs supérieures à 15 u.c. Le travail s'est donc focalisé sur des échantillons de ces épaisseurs, et en particulier ceux de 15 u.c. dont le comportement en fonction de la grille est mieux contrôlé.

La figure 3.1 montre la résistance des échantillons LTO-10uc et LTO-15ucA en fonction de la température. Trois régimes de températures sont mis en évidence :

- Les deux échantillons ont un comportement métallique $(\partial R/\partial T > 0)$ depuis 300 K jusqu'à une température d'environ 20 K.
- En dessous de 20 K, la résistance augmente $(\partial R/\partial T < 0)$ à cause de la localisation faible qui s'ajoute au comportement métallique. Les corrections de localisation seront détaillées au chapitre 5.
- Les échantillons sont supraconducteurs aux très basses températures (T < 0.4 K). La supraconductivité sera étudiée plus en détail au chapitre 4.

3.1.1 Comportement de type liquide de Fermi

Le comportement métallique peut être décrit par une parabole d'équation $R(T) = R_0 + AT^2$ dans une gamme de température intermédiaire (30 à 100 K) comme le montre



FIGURE 3.1 – Résistance en fonction de la température de deux échantillons de $LaTiO_3/SrTiO_3$ avec une épaisseur de $LaTiO_3$ de 10 et 15 u.c. (LTO-10uc et LTO-15ucA). Encart : zoom sur la partie basse température en échelle logarithmique.



FIGURE 3.2 – Résistance en fonction de la température des échantillons LTO-10uc et LTO-15ucA et courbe ajustée en $R(T) = R_0 + AT^2$.

la figure 3.2. Ce comportement typique d'un liquide de Fermi n'est visible que dans une gamme restreinte de température car il est masqué à basse température par la localisation faible et est détruit à haute température par les interactions électrons-phonons qui deviennent prédominantes. Le paramètre de Landau A est caractéristique des interactions électron-électron dans la bande de conduction du matériaux considéré[124]. Une estimation de l'épaisseur du gaz par l'anisotropie du champ critique de la supraconductivité qui sera développée au chapitre 4 donne une valeur typique de 10 nm [14](en accord avec les résultats obtenus sur LaAlO₃/SrTiO₃ [102, 30]). Cette estimation permet de comparer nos résultats mesurés en deux-dimensions aux données de la littérature mesurées sur des échantillons massifs. Il apparaît alors que les paramètres A mesurés sur ces deux échantillons sont de l'ordre de grandeur de ceux mesurés dans des cristaux de SrTiO₃ dopés (à dopage équivalent), alors que ceux mesurés sur des cristaux de LaTiO₃ sont environ 100 fois plus faibles (table 3.1.1). Nous en avons déduit que le gaz d'électrons s'étend principalement du coté SrTiO₃, la partie LaTiO₃ restant *a priori* isolante.

Table 3.1.1 : récapitulatif des coefficients de Landau mesurés pour	
des échantillons de $SrTiO_3$ dopés et La TiO_3 dopés (à dopage équi-	
valent), et comparaison avec les coefficients mesurés sur des échan-	
tillons de LTO-10uc et LTO-15ucA.	
composé	$A \left(\Omega \mathrm{cm}/\mathrm{K}^2\right)$
Ox. LaTiO ₃ $(*)$	8×10^{-9}
Sr. LaTiO ₃ (†)	2×10^{-9}
$LaTiO_3$ (10 u.c.)/SrTiO_3	$3.6 imes 10^{-7}$
$LaTiO_3 (15 u.c.)/SrTiO_3$	$1.3 imes 10^{-7}$
La. SrTiO ₃ $0.877 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (‡)	3.7×10^{-7}
La. SrTiO ₃ $2.31 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}(\ddagger)$	2.6×10^{-8}
(*) LaTiO ₃ dopé Oxygène (Taguchi <i>et al.</i> [117])	
(†) LaTiO ₃ dopé Stronitum (Tokura <i>et al.</i> [121])	
(‡) SrTiO ₃ dopé Lanthane (Okuda <i>et al.</i> [95])	

3.1.2 Effet Hall et densité de porteurs

Le nombre de porteurs à l'interface de l'échantillon LTO-15ucA a été mesuré par effet Hall à faible champ magnétique (B < 5 T) jusqu'à basse température. Dans les modèles semi-classiques simples, lorsqu'un courant circulant dans un conducteur métallique bidimensionnel est soumis à un champ magnétique qui lui est perpendiculaire, il se crée une tension (dite de Hall) perpendiculaire au courant et au champ magnétique dont l'amplitude est donnée par :

$$R_{\text{Hall}} = \frac{V_{\text{Hall}}}{I} = \frac{B}{qn_{\text{Hall}}} \tag{3.1}$$

où n_{Hall} est la densité surfacique de charge et q la charge des porteurs (+/- la charge élémentaire e). Le signe de la tension est donné par la polarité des porteurs de charges (positifs ou négatifs) lorsque le courant, le champ magnétique et la tension sont orientés pour former un trièdre direct. Cette mesure et la mesure de la résistance longitudinale R_S donne accès à la mobilité de Hall définie comme $\mu_{\text{Hall}} = 1/(en_{\text{Hall}}R_S)$.

D'un point de vue expérimental, la tension transverse mesurée n'est pas toujours strictement proportionnelle au champ magnétique mais elle est superposée à une résistance résiduelle. Cette résistance parasite peut avoir plusieurs origines, la première étant le mauvais alignement des contacts de mesure de tension, ceux-ci mesurant alors une partie de la résistance longitudinale de l'échantillon. La seconde est l'anisotropie de l'échantillon qui peut déformer les lignes de champ dans le gaz d'électrons, créant ainsi un mauvais alignement effectif des contacts. En effet, les échantillons mesurés ont montré des signes d'anisotropie de résistance aux basses températures, celle-ci étant due à une anisotropie de mobilité. Cette caractéristique contrôlable par effet de champ électrostatique sera discutée dans la partie 3.2. La contribution de résistance longitudinale est également dépendante du champ magnétique, ce qui correspond à la magnétorésistance de l'échantillon. Cette contribution de résistance longitudinale doit donc être retirée de la tension transverse mesurée, ce qui est fait en enlevant la partie symétrique de la tension par rapport au champ magnétique : la magnétorésistance est en effet symétrique par rapport au champ alors que l'éffet Hall est asymétrique.



FIGURE 3.3 – Résistance de Hall de l'échantillon LTO-15uc A mesurée entre -2 T et +2 T à différent es températures.

Comme le montre la figure 3.3 l'effet Hall (anti-symétrisé) est bien linéaire dans la gamme de champs magnétiques considérée, et son signe indique que les porteurs de charges ont un signe négatif, c'est-à-dire de type électron. La densité de porteurs n_{Hall} extraite de ces données par la formule (3.1) est montrée dans la figure 3.4. Cette densité diminue faiblement entre 250 et 80 K puis chute de manière abrupte. Cette chute semble intervenir dans la gamme de température où le comportement de la constante diélectrique du SrTiO₃ augmente et devient fortement dépendant du champ électrique.

Ce comportement a été observé dans plusieurs échantillons et également dans l'interface $LaAlO_3/SrTiO_3$ [90, 17, 42, 30, 105]. Nous allons ici montrer que la chute brutale en dessous de 80 K est en réalité une chute apparente et que la vraie densité de porteurs suit le même comportement qu'à haute température. Pour cela, l'effet Hall du même échantillon a été mesuré en champ magnétique pulsé jusqu'à 45 T au Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses de Toulouse.



FIGURE 3.4 – Axe de gauche : densité de porteurs extraite des mesures d'effet Hall bas champ (n_{Hall}) et densité totale extraite de l'analyse à deux porteurs des mesures haut champ présentées dans la figure 3.5 (n_{Total}) . Axe de droite : constante diélectrique du SrTiO₃ à champ électrique nul mesurée par Neville *et al.*[86].

3.1.3 Effet Hall à haut champ magnétique

La figure 3.5 montre que l'effet Hall mesuré à haut champ magnétique n'est pas linéaire en champ en dessous de 90 K mais fait clairement apparaitre deux pentes distinctes à basse température. La non-linéarité de l'effet Hall peut avoir plusieurs origines, comme l'apparition d'un ordre magnétique (l'effet Hall est alors qualifié "d'anormal"); ou la présence de deux types de porteurs ayant des mobilités différentes. L'apparition de la non-linéartié étant associée à des comportements spécifiques dans la conductivité (ceci sera particulièrement évident en fonction de la tension de grille, comme montré dans la section suivante) nous avons retenu l'hypothèse du transport à plusieurs bandes, comme dans le cas des super-réseaux LaTiO₃/SrTiO₃ [60]. Un effet Hall non-linéaire a également été observé dans les interfaces LaAlO₃/SrTiO₃ [7] et plusieurs études semblent montrer des indices de transport à plusieurs porteurs [107, 36, 35], ce qui tend à confirmer que la chute du nombre de Hall en dessous de 80 K a la même origine dans les deux interfaces.

Un modèle simple à deux porteurs en parallèle donne la formule suivante pour la résistance de Hall en fonction du champ magnétique [59] :

$$R_{H} = \frac{B}{e} \frac{\frac{n_{1}\mu_{1}^{2}}{1+\mu_{1}^{2}B^{2}} + \frac{n_{2}\mu_{2}^{2}}{1+\mu_{2}^{2}B^{2}}}{\left[\frac{n_{1}\mu_{1}}{1+\mu_{1}^{2}B^{2}} + \frac{n_{2}\mu_{2}}{1+\mu_{2}^{2}B^{2}}\right]^{2} + \left[\frac{n_{1}\mu_{1}^{2}B}{1+\mu_{1}^{2}B^{2}} + \frac{n_{2}\mu_{2}^{2}B}{1+\mu_{2}^{2}B^{2}}\right]^{2}}$$
(3.2)

où n_1 , n_2 , μ_1 et μ_2 sont les densités et mobilités des deux types de porteurs. Ces paramètres sont contraints par la relation $\sigma = 1/R_S = en_1\mu_1 + en_2\mu_2$ pour en donner une valeur unique.

L'ajustement du modèle aux mesures de la figure 3.5 montre que la densité totale de porteur $n_{\text{total}} = n_1 + n_2$ suit bien le comportement observé à haute température (c'està-dire une légère décroissance), et peut être considéré comme un phénomène de piégeage des porteurs en fonction de la température.

En revanche, la chute du nombre de porteurs apparente dans l'effet Hall à bas champ est en fait due à la séparation du gaz en deux types de porteurs : les porteurs "1" sont majoritaires et ont une mobilité relativement faible, et les porteurs "2" sont minoritaires mais ont une mobilité plus élevée.

Nous verrons dans la prochaine section que cette séparation en deux types de porteurs est fondamentale pour les propriétés du gaz.



FIGURE 3.5 – Effet Hall mesuré en champ pulsé à différentes températures, et modèle à deux porteurs ajusté selon l'équation (3.2) (traits pleins).

3.2 Contrôle électrostatique du nombre de porteur et irréversibilité

L'une des propriétés les plus intéressantes du gaz d'électrons bi-dimensionnel à l'interface LaTiO₃/SrTiO₃ est la possibilité de changer continument sa densité de porteurs par l'application d'un potentiel électrostatique sur une grille métallique. Nos échantillons ont une géométrie naturellement orientée vers l'utilisation d'une grille métallique à l'arrière du substrat de SrTiO₃, celui-ci servant de diélectrique. Nous allons montrer dans cette section qu'une telle grille métallique permet effectivement de contrôler la densité de porteurs, mais également la forme du potentiel de confinement, ce qui affecte d'autres propriétés du gaz, comme par exemple la mobilité des porteurs de charges. En particulier deux effets majeurs ont été mis en évidence :

- L'influence de la tension de grille sur la mobilité des porteurs de charges dans le gaz.
- La saturation et la fuite des porteurs de charge dans le substrat à grille positive.

3.2.1 Suppression des porteurs de haute mobilité à grille négative

L'application d'une tension électrostatique entre le gaz d'électrons et une électrode (grille) métallique permet de contrôler la densité de porteurs dans le gaz par effet capacitif, le gaz lui-même faisant office d'électrode du condensateur. La grille métallique évaporée au dos du substrat de SrTiO₃ (voir chapitre 2) permet donc de contrôler la densité du gaz en utilisant le substrat comme diélectrique. Dans cette géométrie, un échelon positif de tension de grille ajoute des électrons dans le gaz, alors qu'un saut négatif retire des électrons. Nous nous intéresserons tout d'abord aux propriétés de transport du gaz en fonction de la tension de grille en partant d'une grille positive maximale ($V_{\rm G} = +200$ V) vers les tensions de grille négatives pour diminuer la densité de porteurs. La première application à froid d'une tension de grille est en effet un phénomène à part décrit dans la prochaine sous-section.

La figure 3.6 montre les mesures de résistance à basse température de l'échantillon LTO-15ucAxx à différentes tensions de grilles, en partant de la tension maximale $V_{\rm G}$ = +200 V. La résistance augmente lorsque la tension de grille est diminuée, ce qui est, en première approximation, signe que la densité de porteurs du gaz diminue, conformément au modèle électrostatique de charge du condensateur. La supraconductivité aux basses températures est également contrôlée par la tension de grille, l'état fondamental étant supraconducteur à tensions de grille positives et isolant (état métallique localisé) à tensions de grille négatives. L'étude de la transition supraconducteur-isolant sera détaillée au chapitre 4.

La figure 3.7 récapitule les données de résistance dans l'état normal (450 mK) et la température critique de supraconductivité, définie ici comme étant la température à laquelle la résistance à chuté de 15% par rapport à l'état normal. Un comportement singulier au voisinage de $V_{\rm G} = 0$ V apparaît clairement sur la courbe de résistance et semble concomitant avec la disparition de la supraconductivité (la disparition de la supraconductivité sera traitée dans le chapitre 4). Un tel comportement de la résistance avec la tension de grille ne peut s'expliquer par un simple modèle de Drude prenant en compte la variation de densité de porteurs avec la tension de grille. En effet, selon les lois usuelles de l'électrostatique la variation de charge portée par les électrodes avec la tension de grille devrait



FIGURE 3.6 – Résistance de l'échantillon LTO-15ucA en fonction de la température mesurée à différentes tensions de grilles en partant de $V_{\rm G} = +200$ V.



FIGURE 3.7 – Résistance et température critique (chute de 15% de la résistance) de l'échantillon LTO-15ucA en fonction de la tension de grille extraits des données de la figure 3.6.

s'écrire :

$$\delta q = eA\delta n_S = C\delta V_{\rm G} \tag{3.3}$$

C étant la capacité du condensateur et A sa surface (on se place dans l'approximation du condensateur plan). Cette quantité étant strictement positive, une variation continue de $V_{\rm G}$ devrait donner, d'après un modèle de Drude simple $\sigma = 1/R = en\mu$, une variation de

résistivité sans point anguleux.

Effet Hall à haut champ magnétique

L'effet Hall a été mesuré à haut champ magnétique en fonction de la grille à 4.2 K. Comme dans les mesures présentées plus haut, l'effet Hall s'est révélé non linéaire en fonction du champ magnétique, comme le montre la figure 3.8.

L'analyse à deux porteurs révèle (figure 3.9) la présence d'une faible proportion de porteurs à haute mobilité (HMC ou n_2) pour les tensions de grille positives, alors qu'à tension de grille négative l'effet Hall ne montre que des porteurs de faible mobilité (LMC ou n_1). La pente à l'origine de l'effet Hall donne un nombre apparent de porteurs (n_{Hall} sur la figure 3.9) dont la variation est non-monotone avec la tension de grille ce qui est a priori incompatible avec une charge électrostatique du gaz. La mobilité extraite de l'analyse à deux porteurs est également très révélatrice. En effet, si la mobilité des LMC semble assez régulière et varie peu sur la gamme de tension considérée, la mobilité des HMC varie considérablement et de façon quasi-linéaire avec la tension de grille dans la partie $V_{\rm G} > 0$. Ce comportement atypique tends à exclure un scénario à deux bandes de masses différentes pour expliquer l'existence (et la suppression) des HMC à grille positive, car les masses des sous-bandes n'ont *a priori* pas de variations en fonction de la grille.



FIGURE 3.8 – Résistance de Hall de l'échantillon LTO-15ucA mesurée à 4.2 K jusqu'à 45 T à différentes tensions de grille, et ajustement du modèle à deux porteurs.



FIGURE 3.9 – Haut : Résistance (gauche) et densité de porteurs totale (n_{totale}) , de faible mobilité (n_1) , de haute mobilité (n_2) et apparente à bas champ (n_{Hall}) extraites de l'analyse à deux porteurs de l'effet Hall mesuré à haut champ. Bas : Mobilité des porteurs de faible mobilité (μ_1) , de haute mobilité (μ_2) et apparente à bas champ (μ_{Hall}) .

Mesure de capacité et densité de porteur totale.

Notons de plus que ce modèle à deux porteurs réconcilie la densité de porteurs avec la charge électrostatique du condensateur. En effet, la densité totale de porteurs extraite de l'analyse à deux porteurs précédente donne bien une variation monotone de la densité de charge avec la tension de grille. La forme particulière de cette courbe est due à la dépendance de la constante diélectrique du SrTiO₃ avec la tension de grille. Nous avons mesuré la capacité du condensateur formé par le substrat de SrTiO₃ entouré du gaz et de la grille comme électrodes à différentes températures en fonction de la tension de grille (figure 3.10). La forme des courbes et la valeur de capacité sont en accord avec le comportement de la constante diélectrique du SrTiO₃ [53, 86]. À basse température (T < 60 K) la capacité diminue avec l'amplitude de la tension de grille, alors qu'elle est indépendante de $V_{\rm G}$ à haute température.



FIGURE 3.10 – Capacité de l'échantillon en fonction de la tension de grille mesurée à différentes températures.

La figure 3.11 montre la réconciliation de mesures d'effet Hall bas et haut champ avec des mesures de capacité en fonction de la tension de grille. En effet, les mesures de capacité ne donnent qu'une variation de densité de charge (par la forme intégrale de l'équation (3.3)) :

$$\Delta n_{S} = \frac{1}{eA} \int_{V_{1}}^{V_{2}} C(V_{\rm G}) \mathrm{d}V$$
(3.4)

Les courbes de densité extraites des mesures de capacités doivent donc être ajustées par une constante pour coïncider aux mesures par effet Hall à $V_{\rm G} = -200$ V, tension pour laquelle l'effet Hall bas champ donne réellement la densité de porteur. A 4.2 K, l'accord entre les deux courbes est excellent depuis $V_{\rm G} = -200$ V jusqu'aux tensions proches de $V_{\rm G} = 0$ V qui marque l'apparition de porteurs de haute mobilité dans le gaz, et sépare les deux courbes. La courbe obtenue par mesure de capacité est également en accord avec la densité de porteur totale donnée par l'analyse à deux porteurs de l'effet Hall à haut champ magnétique.



FIGURE 3.11 – Haut : Densité de porteurs apparente mesurée par effet Hall bas champ (lignes pointillées) et densité de porteurs obtenue par mesure de capacité ajustée sur la partie $V_{\rm G} < 0$ (symboles ouverts à T = 4.2 K et 80 K). Les symboles fermés montrent les densités de Hall bas champ et totales extraites de l'analyse à deux porteurs de l'effet Hall haut champ. Bas : Mobilité apparente bas champ à différentes températures.

Comportement en température.

Les mesures à différentes températures montrent que l'effet Hall apparent devient non monotone et dévie de la densité totale en dessous de $T \sim 60$ K. Notons qu'aux plus hautes températures, la constante diélectrique est indépendante de la tension de grille, et l'accord entre la densité de porteurs mesurée par effet Hall bas champ et la variation de densité mesurée par la capacité est parfait dans toute la gamme de tension. Ceci montre que l'apparition des HMC est liée au comportement en température de la constante diélectrique du SrTiO₃.

Les mesures de mobilité apparente de Hall montrent également qu'à haute température seuls les porteurs de faible mobilité sont présents dans toute la gamme de tension, et la mobilité est constante en fonction de la tension de grille. Néanmoins, sans mesure d'effet Hall à haut champ magnétique, il n'est *a priori* pas possible de déterminer indépendamment les quatre paramètres $(n_1, \mu_1, n_2, \text{ et } \mu_2)$ aux différentes températures. En effet, les autres données mesurables à bas champ donnent le système de trois équations suivant :

$$n_{1} + n_{2} = n_{\text{total}}$$

$$n_{1}\mu_{1} + n_{2}\mu_{2} = \frac{1}{eR_{S}}$$

$$n_{1}\mu_{1}^{2} + n_{2}\mu_{2}^{2} = \frac{1}{e^{2}R_{S}^{2}n_{\text{Hall}}}$$
(3.5)

Cependant, en faisant l'hypothèse que la mobilité des LMC est suffisamment constante, la résolution de ce système permet d'extraire les trois autres paramètres avec un bon degré de confiance pour les tensions de grilles les plus fortes (50 à 200 V), c'est-à-dire lorsque la différence de mobilité entre HMC et LMC est la plus grande. Les résultats suggèrent que la mobilité des HMC diminue quand la température augmente (figure 3.12), rendant la frontière entre HMC et LMC plus difficile à discerner. La densité de HMC semble néanmoins raisonnablement constante en fonction de la température (encart figure 3.12).



FIGURE 3.12 – Mobilité des HMC μ_2 extraite des mesures d'effet Hall bas champ, de densité totale et de résistivité à différentes températures, et du système d'équations (3.5). La résolution du système diverge pour les tensions proches de $V_{\rm G} = 0$ V mais reste raisonnablement stable aux grandes valeurs de $V_{\rm G}$ pour un choix assez large (±20%) de mobilité μ_1 . La mobilité μ_1 ayant servi au calcul est d'environ 30 cm²/(V.s) pour les courbes à $T \leq 40$ K. Les deux mobilités μ_1 et μ_2 sont égales à T = 60 K et 80 K. Encart : Densité des HMC n_2 extraite par la même méthode pour $T \leq 40$ K. Pour $T \geq 60$ K la densité de porteurs de haute mobilité est nulle.

Anisotropie

Avant de conclure cette section ajoutons que les échantillons montrent une anisotropie de résistivité dépendant de la grille. Celle-ci étant plus prononcée aux tensions de grille négatives (figure 3.13), les LMC semblent donc plus anisotropes que les HMC. Ce phénomène particulier sera expliqué par le modèle de courbure de bande décrit plus loin.



FIGURE 3.13 – Résistance en fonction de la tension de grille pour deux directions perpendiculaires (xx et yy) de deux échantillons : LTO-15ucA et LTO-15ucB.

Toutes ces mesures montrent la complexité du système et de son contrôle par une tension de grille, qui ne modifie pas uniquement la densité de porteurs du gaz, mais également la proportion et la mobilité d'une partie des électrons. L'apparition et la mobilité des porteurs mobiles semblent en effet intrinsèquement liés à la valeur de la tension de grille, ces porteurs étant absents dans la partie négative. De plus, leur mobilité est une fonction croissante (quasi-linéaire) de la tension de grille dans la partie positive, ce qui tend à exclure une origine orbitalaire (ou de masse) de la séparation en deux porteurs. Nous verrons au chapitre 4 que ces porteurs sont d'une importance cruciale en particulier pour la supraconductivité.

3.2.2 Irréversibilité lors de l'application d'une grille positive

Comme montré dans la section précédente, la tension de grille permet de supprimer les porteurs à haute mobilité (et la supraconductivité) présents à grille positive, jusqu'à leur disparition aux grilles proches de $V_{\rm G} = 0$ V. Cependant, nous avons montré précédemment que les HMC (ainsi que la supraconductivité) apparaissent à basse température lorsque les échantillons sont refroidis à tension de grille nulle (ou sans tension de grille). Cette sous-section est consacrée à l'étude et à l'explication de ce comportement hystérétique en fonction de la grille.

Saturation apparente de la résistance et de la densité de porteur.



FIGURE 3.14 – Résistivité de l'échantillon LTO-15ucA en fonction de la tension de grille à 4.2 K en partant de l'état refroidi sans tension de grille.

La figure 3.14 montre le comportement de la résistance de l'échantillon LTO-15ucA en fonction de la tension de grille, en partant de l'état refroidi sans tension de grille. Lors de la première montée en tension de grille, la résistance décroît rapidement avant de saturer. Lorsque la tension est ensuite diminuée, la résistance s'écarte de la première courbe et décrit le comportement détaillé dans la section précédente.

L'analyse à deux porteurs de l'effet Hall à haut champ montre que la densité totale d'électrons dans le gaz est en fait constante pendant toute la première polarisation (figure 3.15) et le ratio HMC/LMC change peu. La chute rapide de résistance au début de la polarisation correspond à une augmentation de la mobilité des HMC qui sature également par la suite (figure 3.16).

Ce comportement est tout à fait particulier, puisque, comme montré dans la section précédente, lorsque la tension de grille est balayée depuis la tension maximale jusqu'aux tensions négatives, la densité de porteurs suit parfaitement la loi de charge d'un condensateur de manière réversible. Il semblerait donc que cette loi ne soit pas suivie lors de la



FIGURE 3.15 – Densités des HMC, LMC et densité totale extraites de l'analyse à deux porteurs de l'effet Hall haut champ lors d'une première polarisation de l'échantillon LTO-15ucA.



FIGURE 3.16 – Mobilités des HMC et LMC extraites de l'analyse à deux porteurs de l'effet Hall haut champ lors d'une première polarisation de l'échantillon LTO-15ucA.

première polarisation.

Cette ambiguïté est levée par l'hypothèse suivante : les électrons du gaz sont confinés dans un puits quantique à l'interface entre le LaTiO₃ et le SrTiO₃ comme schématisé dans la figure 3.17. La profondeur du puits est déterminée par l'équilibre de charge lors du

refroidissement, le puits est alors quasiment rempli. Ainsi, lors d'une polarisation positive de la grille, les électrons apportés par le générateur de tension jusqu'au gaz ne peuvent rester dans le puits et s'échappent dans le substrat de $SrTiO_3$ par dessus la barrière de potentiel. Les expériences décrites ci-après ont été effectuées pour vérifier cette hypothèse.



FIGURE 3.17 – Schéma illustrant le mécanisme de fuite des électrons en dehors du puits de confinement formé par la bande conduction du $SrTiO_3$ (en noir) et le $LaTiO_3$ à l'interface. Au centre : puits quantique de l'échantillon refroidi sans tension de grille, le niveau de Fermi (en vert) est presque au sommet du puits. A droite : fuite irréversible des électrons dans le $SrTiO_3$ lors d'une première polarisation positive de la tension de grille. A gauche : lorsque la tension de grille est polarisée négativement, il n'y a pas de fuite des électrons et la polarisation est réversible.

Asymétrie de polarisation

La figure 3.18 résume le schéma de polarisation que nous avons effectué pour vérifier notre hypothèse :

- l'échantillon est en premier lieu refroidi sans tension de grille depuis la température ambiante. Puis la tension de grille est amenée à -200 V par saut de 10 V et ramenée à 0 V de manière réversible.
- La tension est ensuite augmentée jusqu'à une première tension maximale $V_{\rm G}^{max1} = 50$ V et commence à saturer.
- Après cette première saturation, la tension est ramenée jusqu'à -200 V puis de nouveau ramenée jusqu'à $V_{\rm G}^{max1}$ réversiblement.
- La tension est ensuite augmentée jusqu'à une deuxième tension maximale $(V_{\rm G}^{max^2})$, puis une troisième $(V_{\rm G}^{max^3})$ en répétant le procédé.

Cette expérience montre que la tension de grille agit réversiblement et sans saturation tant qu'elle n'excède pas la tension maximale ayant été appliquée à la grille (soit 0 V pour



FIGURE 3.18 – Résistance de l'échantillon LTO-15ucA en fonction de la tension de grille à 4.2 K pour différentes séquences de polarisation : partant de l'état refroidi sans grille (START) la tension est amenée à -200 V (par pas de 10 V) puis réversiblement à 0 V; la tension est ensuite amenée à +50 V (V_G^{max1}) puis redescendue à -200 V marquant une première irréversibilité; le même schéma est répété pour $V_G^{max2} = 100$ V et $V_G^{max3} = 200$ V. Les carrés A, B, C, D et E marquent les positions des tensions pour lesquelles la dépendance temporelle de la résistance après le saut de tension est montrée dans la figure 3.19. Les hexagones rouges marquent les tensions pour lesquelles une relaxation temporelle similaire à celles montrées pour les points C et E a été mesurée.

l'échantillon venant d'être refroidi).

En revanche la tension de grille crée une saturation et une irréversibilité dès qu'elle dépasse la dernière valeur maximale appliquée. Ces mesures sont en accord avec le modèle proposé plus haut : la loi de charge du condensateur est bien respectée lorsque la résistance se comporte de manière réversible avec $V_{\rm G}$ et tous les électrons sont ajoutés (respectivement enlevés) du gaz d'électrons. Puis lorsque la tension est augmentée au delà de la tension maximale précédente, le puits étant rempli, les électrons apportés par la charge du condensateur débordent dans le substrat de SrTiO₃ et ne participent pas à la conduction. Ces électrons perdus ne sont alors plus en contact avec le gaz et lorsque la tension est de nouveau baissée ce sont bien les porteurs dans le gaz qui sont retirés.

Étude de la dynamique de fuite des électrons

La fuite des électrons surnuméraires dans le substrat de $SrTiO_3$ n'est en fait pas instantanée. En effet, pendant la séquence de polarisation décrite dans la figure 3.18 nous avons mesuré la dépendance temporelle de la résistance pendant le saut de tension de grille, avec un échantillonnage temporel de l'ordre de 15 ms. Deux comportements ont été mis en évidence (figure 3.19) :



FIGURE 3.19 – Dépendance temporelle de la résistance (normalisée) après un saut de tension pour les points marqués d'une lettre dans la figure 3.18. L'échelon de tension est à t = 0. A gauche, les points de mesures se situent dans une plage de tension où la résistance varie réversiblement avec $V_{\rm G}$. A droite, les points de mesures se situent dans une plage de tension de grille irréversible et montrent une relaxation temporelle.

- Quand le saut de tension de grille s'effectue dans une plage de tension réversible, la résistance présente une marche, positive ou négative suivant le signe de $\Delta V_{\rm G}$, et la valeur finale est temporellement stable (figure 3.19 panneau de gauche).
- Lorsque le saut s'effectue dans une zone irréversible, c'est-à-dire quand le saut dépasse la précédente tension maximale, la résistance présente une chute rapide au moment du saut puis une relaxation vers des valeurs plus grandes en fonction du temps (figure 3.19 panneau de droite).

Ce dernier comportement a été observé pour les tensions de grille entourées d'un losange rouge dans la figure 3.18. Nous avons vérifié expérimentalement que la chute initiale de résistance (comme le changement brutal de résistance dans le cas réversible) est bien dû à l'effet de charge du condensateur par la tension de grille. En effet la figure 3.20 montre que cette chute peut être ralentie en augmentant la résistance de polarisation de grille $R_{\rm G}$, ce qui correspond à une charge exponentielle de condensateur en réponse à un échelon de tension avec une constante de temps $\tau = R_{\rm G}C$. La résistance de 100 k Ω utilisée pour le reste des mesures donne ainsi une constante de temps trop courte pour être observée avec la résolution temporelle de l'expérience.

La relaxation temporelle observée dans le cas irréversible est en première approximation de la forme $\alpha + \beta \log(t)$. Nous présentons ci-dessous un modèle développé au cours de cette thèse pour décrire cette fuite des électrons et cette dépendance temporelle particulière.



FIGURE 3.20 – Dépendance temporelle de la résistance (normalisée) après un saut de tension excédant la tension maximale précédente, avec deux résistances de polarisation de grille $R_{\rm G}$ différentes. La chute initiale correspond à la charge du condensateur dont le temps caractéristique est $\tau = R_{\rm G}C$.

Modèle de fuite thermique des électrons.

Considérons un puits quantique bi-dimensionnel (de forme quelconque) avec une hauteur de barrière finie E_B et un nombre n_L de sous-bandes paraboliques d'énergies E_L^i $(i=1,...,n_L)$. Nous faisons l'hypothèse que les électrons au niveau de Fermi peuvent sauter par dessus la barrière avec une cinétique du premier ordre :

$$\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = -kn \tag{3.6}$$

où n est la densité d'électrons dans le puits en fonction du temps et k un facteur cinétique. Pour un processus activé thermiquement ce dernier suit une loi d'Arrhénius de la forme $k = \nu \exp(-\Delta/k_{\rm B}T)$ où l'énergie d'activation est la hauteur énergétique à franchir : $\Delta = E_B - E_{\rm F}$, et ν est une fréquence de saut caractéristique (inconnue). Ainsi, en prenant en compte la densité d'états constante de chaque sous bande $N = m/\pi\hbar^2$, et considérant que le niveau de Fermi reste toujours au-dessus de la dernière sous bande en fonction du temps (le puits est presque totalement rempli), la densité d'électrons est donnée par $n = \sum_{i=1}^{n_L} N(E_{\rm F} - E_L^i)$. L'équation sur $E_{\rm F}$ est donc :

$$\frac{\mathrm{d}E_{\mathrm{F}}}{\mathrm{d}t} = -\nu \mathrm{e}^{-\frac{E_{\mathrm{B}}-E_{\mathrm{F}}}{k_{\mathrm{B}}T}} (E_{\mathrm{F}} - \frac{1}{n_{L}} \sum_{i=1}^{n_{L}} E_{L}^{i})$$
(3.7)

Ce problème peut être simplifié en un modèle équivalent à une seule bande $E_L = \sum_{i=1}^{n_L} E_L^i / n_L$ avec une densité d'états multipliée par n_L . Aux basses températures ($k_BT \ll E_F - E_L$) la variation de $E_{\rm F}$ peut être négligée dans le terme $(E_{\rm F} - E_L)$ au premier ordre, ce qui donne la solution :

$$E_{\rm F}(t) = E_{\rm F}^{0+} - k_B T \ln\left(1 + \frac{t}{t_E}\right)$$
(3.8)

où $E_{\rm F}^{0+}$ est le niveau de Fermi au temps t = 0+ (c'est-à-dire juste après l'échelon de tension) et t_E un temps caractéristique de la forme :

$$t_E = \frac{k_B T}{\nu (E_{\rm F}^{0+} - E_L)} e^{\frac{E_B - E_{\rm F}^{0+}}{k_{\rm B} T}} = \frac{k_B T N(E_{\rm F})}{\nu n_{0+}} e^{\frac{E_B - E_{\rm F}^{0+}}{k_{\rm B} T}}$$
(3.9)

où $N(E_{\rm F}) = n_L m / \pi \hbar^2$ est la densité d'état totale au niveau de Fermi.

Il s'en suit que le niveau de Fermi est constant pour $t < t_E$ puis décroit de manière logarithmique aux temps longs. Ainsi, la dépendance temporelle de la conductivité calculée à partir d'un simple modèle de Drude avec une mobilité constante μ (les variations de nétant faibles) décroît également logarithmiquement :

$$\sigma(t) = e\mu \left[n_{0+} - N(E_{\rm F})k_B T \ln \left(1 + \frac{t}{t_E} \right) \right]$$
(3.10)

Le pré-facteur du logarithme étant de l'ordre de 10^{11} cm⁻², il est suffisamment faible devant la densité totale d'électrons pour autoriser le développement limité au premier ordre :

$$R_S(t) = R_{0+} \left[1 + \frac{N(E_F)k_BT}{n_{0+}} \ln\left(1 + \frac{t}{t_E}\right) \right]$$
(3.11)

où $R_{0+} = (e\mu n_{0+})^{-1}$ est la résistivité juste après l'échelon de tension.

Cette forme de relaxation est tout à fait particulière et provient directement du fait que l'énergie d'activation thermique augmente avec le temps, à mesure que le puits quantique se vide. À l'opposé, d'autres phénomènes thermiquement activé ont une énergie d'activation fixée, définie par exemple par le maximum de potentiel lors du saut d'un ions entre deux positions dans un cristal. Une énergie d'activation bien déterminée ne peut produire que des relaxations exponentielles des propriétés physiques, comme les relaxations de diffusions ioniques observées à haute température [119, 106].

Validation expérimentale du modèle.

La figure 3.21 montre le très bon accord entre les mesures de relaxation et ce modèle. Le comportement aux temps longs $(t \gg t_E)$ peut se mettre sous la forme :

$$R_S(t) = \alpha + \beta \log(t) \tag{3.12}$$

avec :

$$\alpha = R_{0+} \left(1 - \frac{N(E_{\rm F})k_B T}{n_{0+}} \ln t_E \right)$$

$$\beta = \frac{N(E_{\rm F})k_B T R_{0+}}{2.3n_{0+}}$$
(3.13)

La figure 3.22 montre la linéarité du coefficient β avec la température, confirmant l'activation thermique du processus.



FIGURE 3.21 – Relaxation de la résistance à différentes tensions de grille ajustée par l'expression (3.11). L'échelon de tension $\Delta V_{\rm G}$ est 10 V pour toutes les courbes. Les temps caractéristiques t_E sont indiqués par des triangles noirs sur chaque courbe.



FIGURE 3.22 – Paramètre de relaxation β extrait des courbes de relaxation à différentes températures et pour différents échelons de tension.

Le comportement du temps caractéristique de fuite t_E a été étudié plus en détail. Considérons un échelon de tension ΔV_G apportant des électrons au gaz à t = 0 depuis une densité initiale n_{0-} jusqu'à une densité n_{0+} immédiatement après le saut :

$$n_{0+} = n_{0-} + \frac{1}{e} \int_{V_G^{0-}}^{V_G^{0+}} C_a(V_G) \mathrm{d}V$$
(3.14)

où $C_a(V_G)$ est la capacité surfacique de l'échantillon. Il faut pour cela faire l'hypothèse qu'il y a suffisamment d'états disponibles dans le puits pour accueillir tous les électrons apportés, ce qui est vrai aux faibles ΔV_G . Une deuxième hypothèse est que le temps caractéristique de charge du condensateur est infiniment petit devant le temps caractéristique de fuite t_E . Ceci est également vrai aux faibles ΔV_G comme le montre l'équation (3.16) ci-dessous. En négligeant les variations de C_a sur la plage de tension ΔV_G (rappelons que la constante diélectrique du SrTiO₃ dépend fortement de V_G , en particulier près de 0 V) le niveau de Fermi après l'échelon de tension est donné par :

$$E_{\rm F}^{0+} = E_{\rm F}^{0-} + \frac{C_a(V_G)\Delta V_G}{eN(E_{\rm F})}$$
(3.15)

Ainsi les variations de t_E prennent la forme :

$$\ln(t_E) = \gamma - \kappa C_a(V_G) \Delta V_G \tag{3.16}$$

Avec :

$$\gamma = \ln\left(\frac{N(E_{\rm F})k_BT}{\nu n_{0+}}\right) + \frac{E_B - E_{\rm F}^{0-}}{k_B T}$$

$$\kappa = \frac{1}{eN(E_{\rm F})k_B T}$$
(3.17)

La figure 3.23 montre le très bon accord entre le modèle et les relaxations expérimentales pour différentes valeurs de ΔV_G . Le comportement de t_E est également en accord avec l'équation (3.16) pour les petits sauts de de tension de grille (≤ 20 V) comme illustré à la figure 3.24. Pour les sauts de tension plus importants il est possible que le modèle ne prennent pas en compte un débordement initial du puits à t = 0 lorsque celui-ci ne peut pas accepter toutes les charges apportées par le générateur de tension.

Le comportement de t_E avec $C_a(V_G)$ à ΔV_G constant est présenté dans la figure 3.24. Il est également en accord avec l'équation (3.16) pour $V_G > 60$ V.

Nous avons également mesuré une relaxation sur des temps plus longs (figure 3.25). Le comportement logarithmique semble se poursuivre pendant plus de 14 h de mesure, et ne semble pas saturer. Cette expérience montre que la saturation des propriétés du gaz pendant la première polarisation positive n'est qu'apparente puisque le système n'est en fait pas à l'équilibre, mais varie de plus en plus lentement en fonction du temps. La résistance semble donc saturer à l'échelle du temps de mesure, mais pourrait encore augmenter aux temps plus longs. Bien que ce modèle très simple prédirait une augmentation ininterrompue de la résistance en fonction du temps, nous ne pouvons cependant pas exclure la présence d'autres mécanismes ralentissant la fuite des électrons pour des temps encore plus longs.

Ce modèle de fuite thermique dans le $SrTiO_3$ semble donc bien rendre compte de la saturation des propriétés du gaz lors d'une première polarisation positive. Insistons sur le



FIGURE 3.23 – Relaxation de la résistance à $V_{\rm G} = 200$ V après différents sauts de tensions de grille ajustée par l'expression (3.11). Les temps caractéristiques t_E sont indiqués par des triangles noirs sur chaque courbe.



FIGURE 3.24 – Temps caractéristiques de fuite des électrons en fonction de la hauteur de l'échelon de tension à $V_{\rm G} = 200$ V (gauche) et de la capacité de l'échantillon (droite). Les lignes rouges montrent le bon accord avec l'expression (3.16) à $V_{\rm G}$ fixé (gauche) ou $\Delta V_{\rm G}$ fixé (droite).

fait que les électrons surnuméraires sautent par dessus la barrière du $SrTiO_3$ et sont de fait attirés par l'électrode de grille (qui est à un potentiel positif donc attractif) mais ne



FIGURE 3.25 – Relaxation mesurée à $V_{\rm G} = +200$ V pendant 14 h à 4.2 K ajustée par l'expression (3.11). Le comportement de relaxation logarithmique se poursuit pendant toute la durée de la mesure.

l'atteignent pas. En effet, le substrat de $SrTiO_3$ est un isolant de bande avec une grande bande interdite (3.2 eV), et la densité de porteurs injectée par le débordement du puits est trop faible pour le rendre conducteur en masse. Les électrons ayant fui sont donc diffusés dans les couches de $SrTiO_3$ proches du gaz jusqu'à être piégés dans les défauts du cristal. De plus, bien que ces électrons ne soient pas en contact avec le gaz et ne participent pas à la conduction, ils sont essentiels pour maintenir la polarisation entre le gaz et l'électrode de grille.

Il est possible de ré-injecter les électrons perdus dans le gaz en chauffant, ce qui confirme leur proximité au gaz d'électrons. En effet, la figure 3.26 montre que lorsque l'échantillon est réchauffé à $V_{\rm G} = 0$ V après avoir été polarisé à +200 V à basse température, les électrons piégés lors de la polarisation rejoignent le gaz à deux températures, 70 K et 170 K, alors que les courbes en chauffage après avoir polarisé à -200 V et 0 V ne montrent pas d'effet de dé-piégeage. L'origine de ces deux températures est encore indéterminée mais pourrait correspondre à une énergie de confinement des défauts propres au SrTiO₃.

Irréversibilité à l'interface LaAlO₃/SrTiO₃

Ces protocoles de mesures ont également été appliqués à l'échantillon LAO-5uc (échantillon constitué de 5 u.c. de LaAlO₃ épitaxiées sur $SrTiO_3$). Les résultats de saturation et de relaxation lors d'une première polarisation à grille positive présentés à la figure 3.27 sont tout à fait semblables à ceux mesurés sur les échantillons de LaTiO₃/SrTiO₃.

Les courbes de relaxations (encart figure 3.27) sont très bien décrites par le modèle de fuite thermique que nous avons développé. Cependant à la différence des interfaces de $LaTiO_3/SrTiO_3$ la courbe de dé-piégeage des porteurs ayant débordés ne montre pas uni-



FIGURE 3.26 – Résistance en fonction de la température à $V_{\rm G} = 0$ V lors d'un refroidissement et lors de réchauffements après différentes polarisations à basse température. La courbe de chauffage après avoir effectué une polarisation à +200 V montre deux températures bien déterminées de dé-piégeage des électrons ayant débordés.



FIGURE 3.27 – Saturation et irréversibilité de la résistance d'une couche LaAlO₃/SrTiO₃ en fonction de la tension de grille à 4.2 K lors d'une première polarisation positive. Encart : courbes de relaxation ajustée par l'expression (3.11) pour des valeurs de tensions de grille dans la gamme d'irréversibilité.

quement deux températures bien définies, mais de nombreuses températures (figure 3.28).

Ces températures de dé-piégeage supplémentaires pourraient révéler l'existence de défauts spécifiques à l'interface $LaAlO_3/SrTiO_3$ qui ne sont pas présents à l'interface avec $LaTiO_3$, donc potentiellement dûs à l'aluminium. Néanmoins cette expérience n'a été menée que sur un seul échantillon de $LaAlO_3/SrTiO_3$.



FIGURE 3.28 – Mesures de résistance en fonction de la température à $V_{\rm G} = 0$ V de l'interface LaAlO₃/SrTiO₃ après différentes polarisations à basse température. La courbe de dé-piégeage après la polarisation à $V_{\rm G} = +200$ V montre des températures caractéristiques de dé-piégeage à 70 (presque invisible), 130, 170, 210, et 280 K.

Ces résultats, communs aux deux types d'interfaces, sont révélateurs de la nature du confinement du gaz à l'interface : un puits quantique dont le niveau de Fermi est quasiment au maximum, et auquel on ne peut pas rajouter d'électrons. Ce phénomène pose de sérieuses limitations au contrôle du gaz par la tension de grille car le gaz refroidi sans grille est intrinsèquement à la densité maximale atteignable avec une grille au dos du substrat. Ceci limite toutes les propriétés du gaz, comme la mobilité, mais aussi la supraconductivité (figure 3.29) et sans doute l'effet Rashba. Cependant, le modèle de courbure de bande, décrit dans la section suivante, que nous avons développé pour modéliser le gaz et l'effet de la grille électrostatique, donne une solution naturelle pour contourner la limitation du nombre de porteurs : l'utilisation conjointe d'une grille au dos du substrat et d'une grille au-dessus d'un isolant couvrant le LaTiO₃ (ou LaAlO₃) pourrait permettre de courber la bande dans le SrTiO₃ grâce à la grille du dessus.



FIGURE 3.29 – Résistance en fonction de la température lors de la première polarisation aux très basses températures de l'échantillon de LaAlO₃/SrTiO₃. Encart : température critique (définie à 10% de chute de résistance) au cours de la première polarisation montrant une saturation.

3.3 Modèle de courbure de la bande de conduction du $SrTiO_3$

Nous avons modélisé le gaz d'électrons à l'interface entre les deux isolants par un puits quantique issu de la courbure de la bande de conduction du $SrTiO_3$. Ce type de modèle, initialement développé pour les semi-conducteurs [115, 1], s'appuie sur la résolution de l'équation de Schrödinger dans l'approximation de la masse effective, et de l'équation de Poisson.

Position du problème

Nous commençons par considérer l'équation de Schrödinger suivante :

$$\left[\frac{1}{2}\sum_{i,j}w_{i,j}p_ip_j - e\Phi(z)\right]\Psi = E\Psi$$
(3.18)

où $w_{i,j}$ est le tenseur de masse réciproque et $p_i = -i\hbar\partial/\partial x_i$ l'impulsion suivant l'axe x_i . Le potentiel créé par la courbure de la bande de conduction est noté $\Phi(z)$ et ne dépend que de la coordonnée spatiale z. Ce potentiel vérifie également l'équation de Poisson :

$$\nabla \left(\epsilon_0 \epsilon_R(F(z)) \nabla(\Phi(z))\right) = -\rho(z) \tag{3.19}$$

F étant le champ électrique vérifiant $F = -\nabla(\Phi)$. Cette forme particulière de l'équation de Poisson (qui est en fait l'équation de Maxwell-Gauss) tient compte des variations spatiales de la constante diélectrique. En effet, le potentiel étant supposé avoir une courbure finie à l'interface et une courbure nulle loin de l'interface (à tension de grille nulle), le champ électrique associé suivra donc également ces variations spatiales. La constante diélectrique du SrTiO₃ dépend fortement du champ électrique à basse température[86, 53], et va donc également suivre les variations spatiales du champ dues à l'interface. Le comportement de la constante diélectrique avec le champ électrique est de la forme :

$$\epsilon_R(F) = \frac{1}{A + BF} + \epsilon_R(F = \infty) \tag{3.20}$$

où A et B sont des constantes mesurées par Neville *et al.* [86]. Néanmoins, la valeur des champs électriques présents à l'interface est beaucoup plus grande que la gamme de mesure accessible dans la littérature. La valeur de saturation $\epsilon_R(F = \infty)$ est donc inconnue. Une valeur de $\epsilon_R(F = \infty)=1$ a été prise par d'autres auteurs [123, 7], nous avons pris une valeur plus réaliste de $\epsilon_R(F = \infty)=300$ qui est proche de la valeur la plus basse mesurée sur cet oxyde. Notons cependant que la valeur précise de ce paramètre ne change pas le comportement décrit plus loin.

La densité totale de charge ρ dans l'équation (3.19) tient compte de toutes les charges du système. Pour le cas des semi-conducteurs il faut donc tenir compte des impuretés ionisées et de la zone de déplétion (zone où les électrons et les trous créés par l'étalement de la fonction de Fermi-Dirac ne se compensent pas), en plus de la densité de charges du gaz d'électrons. Dans le cas des interfaces d'oxydes, il n'y a, *a priori*, pas de zone de déplétion à basse température (la bande interdite du SrTiO₃ est de 3.2 eV soit environ 3700 K) ni de dopants ionisés. Néanmoins, les données de transport électronique, en particulier l'effet Hall en fonction de la température et au cours d'une première polarisation positive, ont montré l'existence d'électrons piégés dans le système. Cette densité (inconnue) d'électrons n'est pas négligeable, et se révèle nécessaire en particulier pour les calculs avec une tension de grille positive (nous reviendrons sur l'importance de ces charges dans une prochaine sous-section).

Le gaz d'électrons étant confiné dans la partie $SrTiO_3$ de l'interface d'après les résultats présentés plus haut, nous avons pris comme condition aux limites des fonctions d'ondes $\Psi(z = 0) = 0$, la partie LaTiO₃ est ainsi considérée comme une barrière infinie. La condition aux limites du coté $SrTiO_3$ est que la fonction s'éteint de manière évanescente dans le substrat. Dans un modèle d'électrons libres, Φ ne dépendant que de z, les solutions de l'équation (3.18) sont de la forme :

$$\Psi(x,y,z) = \zeta(z)e^{i\theta(k_x,k_y)z}e^{i(k_xx+k_yy)}$$
(3.21)

La fonction enveloppe ζ étant solution de l'équation :

$$\frac{d^2\zeta}{dz^2} + \frac{2m_z}{\hbar^2} [E^0 + e\Phi(z)]\zeta(z) = 0$$
(3.22)

et les énergies associées sont :

$$E(k_x, k_y) = E^0 + \frac{\hbar^2}{2} \left(\frac{k_x^2}{m_{xx}} + \frac{k_x k_y}{m_{xy}} + \frac{k_y^2}{m_{yy}}\right)$$
(3.23)

Les différentes énergies et fonctions enveloppes des sous-bandes sont notées E_i^0 et ζ_i . La densité d'électrons dans le puits est alors donnée par :

$$n(z) = \sum_{i} \frac{m_t^i}{\pi \hbar^2} k_B T \ln\left[1 + \exp\left(\frac{E_F - E_i^0}{k_B T}\right)\right] |\zeta_i(z)|^2$$
(3.24)

où m_t^i est la masse effective dans le plan de la sous-bande *i*.

Les masses des sous-bandes utilisées sont les masses de la bande de conduction du SrTiO₃, qui est formée par l'hybridation des orbitales t2g du titane $(d_{xy}, d_{yz} \text{ et } d_{xz})$ la bande de valence étant formée par les orbitales 2p des oxygènes [75]. Comme expliqué au chapitre 1, le recouvrement des orbitales t2g donne une asymétrie prononcée des intégrales de saut dans les directions perpendiculaires et parallèles au plan de l'orbitale (figure 3.30), c'est-à-dire que les orbitales d_{xy} , par exemple, se recouvrent bien dans le plan xy et mal dans la direction z. Il en résulte une forte anisotropie des masses effectives dans les différentes valeurs trouvées dans la littérature selon les techniques de mesures, nous avons pris $0.7m_0$ pour la masse légère et $14m_0$ pour la masse lourde [103].

Dans la phase cubique haute température, les trois sous-bandes sont dégénérées au point Γ de l'espace réciproque. A basse température, cette dégénérescence est levée par la distorsion tétragonale (en dessous de 110 K) et par le couplage spin-orbite [75, 125].

Cette anisotropie de masse effective donne lieu à l'interface à une différenciation entre les différentes orbitales. En effet, le terme d'énergie cinétique de l'équation (3.22) impose que les orbitales ayant une masse m_z plus grande soient plus confinées (c'est-à-dire plus bas dans le puits) que celles ayant une masse m_z faible. Ainsi, d'après le rapport des masses de confinement du SrTiO₃, les orbitales d_{xy} , qui ont une masse m_z lourde, seront dominantes dans le puits, et en première approximation, seules ces orbitales seront considérées.



FIGURE 3.30 – Représentation schématique des orbitales d_{xy} du titane montrant une forte anisotropie entre le recouvrement dans le plan xy par rapport à la direction z.

Résolution numérique

La résolution auto-cohérente des équations (3.19) et (3.22) ne peut se faire de manière analytique, à moins de considérer un modèle particulier pour la courbure de bande. Un modèle de puits triangulaire a été proposé par Ueno [123], Bell [7], et Santander [103] pour résoudre ce problème. Cependant ce modèle souffre d'une difficulté majeure : il est d'une hauteur infinie par définition et ne peut donc pas rendre compte du raccordement avec la bande de conduction du SrTiO₃ loin de l'interface. Ce raccordement est crucial dans notre analyse, car nous avons vu précédemment (chapitre 3.2) que le niveau de Fermi est situé près du maximum du puits. Nous avons donc opté pour une résolution numérique continue de la courbure de bande avec un raccordement naturel avec la bande loin de l'interface.

La résolution pratique de ces équations se fait de manière itérative et prend en compte le nombre de porteurs mesurés expérimentalement par effet Hall à chaque tension de grille.

- 1. Partant d'un potentiel de courbure de bande à l'itération $n : \Phi(z) = \Phi_{in}^{n}(z)$ (pour tout z appartenant à [0; L], L étant suffisamment grand), les solutions de l'équation (3.22) sont calculées numériquement par la formule de Noumerov [16] (résolution pas-à-pas itérative similaire à Euler), en trouvant les énergies E_i^0 qui satisfont aux conditions aux limites en z = 0 et z = L. La condition en z = 0 est imposée au début de la résolution par $\zeta(0) = 0$, l'autre condition étant une condition d'évanescence $(|\zeta(z)|$ diminue et ne s'annule pas) dans la partie $-e\Phi(z) > E_i^0$. De manière pratique, les E_i^0 sont trouvées par dichotomie pour maximiser le comportement évanescent de la fonction enveloppe jusqu'à une précision en énergie donnée. Les fonctions enveloppes sont alors normalisées par $\int |\zeta(z)|^2 dz = 1$.
- 2. Les fonctions d'ondes et les énergies étant calculées, le niveau de Fermi est déterminé en remplissant les sous-bandes pour atteindre le nombre de porteurs considéré, en

tenant compte de la densité d'état de chaque niveau (celle-ci est dans nos hypothèse identique et constante pour chaque niveau 2D). La fonction de Fermi-Dirac est ici considérée comme un échelon parfait (calcul à température nulle). L'équation (3.24) donne alors le profil de densité de porteurs n(z).

3. Une fois la densité de porteurs obtenue, celle-ci permet de calculer le profil de potentiel par l'équation de Poisson (3.19). Comme mentionné plus haut, la densité de charge à prendre en compte est la somme de la densité de porteurs dans le gaz d'électrons et de la densité de charges piégées. Cette densité de charges étant inconnue nous l'avons modélisée par un profil exponentiel de charges négatives, introduisant ainsi deux paramètres (densité totale et longueur de distribution), pouvant ou non varier avec la densité de porteurs ou la tension de grille. La densité totale de charge est intégrée numériquement en prenant en compte la variation de la constante diélectrique avec le champ électrique par un algorithme de type Runge-Kutta à l'ordre 4. Il faut pour cela donner la valeur à l'origine de la première dérivée du potentiel électrique (*i.e.* : le champ électrique à l'interface). Cette dernière est calculée en intégrant l'équation (3.19) entre z = 0 et z = L ce qui donne :

$$\epsilon_R(0)\Phi'(0) = -\frac{e(n_S + N_S)}{\epsilon_0} + \epsilon_R(L)\Phi'(L)$$
(3.25)

où n_s et N_s sont respectivement la densité surfacique de porteurs dans le gaz et la densité surfacique de porteurs piégés. Le terme en $\Phi'(L)$ est la condition aux limites en z = L, et donne la pente de la bande de conduction loin de l'interface. En particulier ce terme est nul sans tension de grille, mais a une valeur finie autrement. Ce paramètre permet donc d'intégrer la valeur de la tension de grille dans le calcul en prenant $\Phi'(L) \approx -eV_{\rm G}/L_{\rm phys}$ où $L_{\rm phys}$ est l'épaisseur physique de l'échantillon. Une seconde intégration permet de calculer le potentiel de sortie du pas d'intégration : $\Phi_{out}^n(z)$.

4. La procédure est recommencée au pas n + 1 avec un nouveau potentiel $\Phi_{in}^{n+1}(z) = (1 - f)\Phi_{in}^n + f\Phi_{out}^n$, le facteur d'amortissement f < 1 permettant de converger de manière contrôlée vers une solution stable.

Cette procédure est répétée (en partant d'un potentiel d'essai) jusqu'à ce que l'intégrale de l'erreur quadratique entre les potentiels d'entrées et de sorties soit suffisamment faible.

Importance des charges piégées

Ce modèle soulève en particulier une question qui lui est plus générale : la présence de porteurs piégés près de l'interface. Celle-ci semble bien démontrée par certaines expériences, en particulier celles décrites au chapitre 3.2. En revanche, il est difficile d'en estimer la densité totale, et encore moins la distribution spatiale, qui rentrent de manière non-triviale dans la résolution de l'équation de Poisson.

Cependant cette densité de charge supplémentaire est absolument nécessaire dans la résolution du calcul, en particulier pour les tensions de grille positives. En effet, si on considère uniquement les charges du gaz à grille nulle, l'équation de Poisson impose que le profil du potentiel ne varie plus quand la densité de porteurs tombe à zéro. Un tel
calcul donnerait une solution stable pour un niveau de Fermi exactement au maximum de la bande de conduction, celui-ci étant situé à l'infini (L dans le cas présent). Il s'en suit qu'il est impossible d'obtenir une solution stable uniquement avec les charges du gaz et en imposant une tension de grille positive. En effet, on peut considérer que la tension de grille ajoute une pente (négative!) au profil du potentiel et donc que le potentiel total a un maximum à une distance finie de l'interface et d'une valeur inférieure au niveau de Fermi original sans tension de grille. Il est donc impossible d'y accommoder autant de particules que dans le puits initial. Le calcul du potentiel ne peut donc pas converger dans le cas d'une tension de grille positive en ne considérant que les charges du gaz. Ce constat mathématique semble se retrouver dans le phénomène de fuite observé lors d'une première polarisation positive de la grille : le puits est rempli au maximum à grille nulle, toutes les charges ajoutées par effet capacitif sont alors ajoutées aux charges piégées.

Il n'existe cependant pas de cartographie précise de la densité et de la position des charges fixes dans ces interfaces. La décroissance exponentielle choisie dans ce calcul permet néanmoins de limiter le nombre de paramètres ajustables à deux : densité totale et extension, tout en restant un choix raisonnable : il y a *a priori* plus de charges piégées près de l'interface. La résolution du calcul pour différents paramètres, en particulier l'extension, montre qu'il y a une plage de paramètres acceptable pour la convergence du calcul pour la tension de grille la plus positive $V_{\rm G} = +200$ V (et donc la plus difficile à stabiliser). Cette exploration montre que l'extension des charges piégées permet de stabiliser des porteurs loin de l'interface en dessous d'une certaine valeur, mais ne permet pas de convergence du calcul si elle est trop courte. La distribution des charges piégées a donc été prise pour être cohérente dans toute la gamme de tension de grille et permettre la convergence du calcul aux tensions positives.

Résultats des calculs

Nous avons calculé la forme du puits et la distribution de charge pour différentes tensions de grille en utilisant les densités de porteurs totales de l'échantillon LTO-15ucA mesurées à basse température après avoir effectué une première polarisation à +200 V.

La figure 3.31 montre le résultat pour la tension $V_{\rm G} = 0$ V. Le puits admet 4 sousbandes et les porteurs sont confinés près de l'interface sur une profondeur de ~ 3 nm. La croissance du potentiel entre 4 nm et 15 nm est due à la présence des charges piégées. L'amplitude du champ électrique est grande dans toute la zone où le gaz est présent ce qui y diminue fortement la constante diélectrique.

Le résultat à $V_{\rm G} = -200$ V est qualitativement similaire à celui à 0 V (figure 3.32). Seuls trois niveaux électroniques sont remplis à cette tension de grille, et le gaz est confiné sur ~ 3 nm près de l'interface. La bande de conduction loin de l'interface est inclinée par la différence de potentiel imposée par la grille.

Le résultat est différent pour les tensions de grille positives comme le montre la figure 3.33 pour $V_{\rm G} = +200$ V. Le puits admet 7 sous-bandes électroniques remplies jusqu'en haut du puits. La densité est forte près de l'interface et présente une queue assez longue s'étendant jusqu'à 7 nm. L'amplitude du champ électrique diminue plus rapidement depuis l'interface comparativement au cas d'une polarisation négative. Le gaz s'étend alors assez loin dans le substrat pour être proche de la zone où la courbure du potentiel s'inverse. Près de ce point, le champ électrique est nul et par conséquent, la constante diélectrique



FIGURE 3.31 – Calcul de courbure de bande pour $V_{\rm G}$ = 0 V.



FIGURE 3.32 – Calcul de courbure de bande pour $V_{\rm G}$ = -200 V.

y est maximale.

Discussion

Les résultats des calculs permettent de dégager deux comportements distincts en fonction de la tension de grille :

– A tension de grille négative le gaz est toujours confiné près de l'interface sur une



FIGURE 3.33 – Calcul de courbure de bande pour $V_{\rm G} = +200$ V.

profondeur d'environ 3 nm. La constante diélectrique dans la région du gaz est toujours très faible à cause du fort champ électrique.

- A tension de grille positive le bord du puits devient de plus en plus évasé, permettant au gaz de s'étendre plus loin dans le SrTiO₃. Le comportement de la constante diélectrique du SrTiO₃ augmente l'effet de dé-confinement des électrons : le bord du puits devient suffisamment évasé pour permettre à la constante diélectrique de retrouver une valeur plus grande et ainsi aider à dé-confiner les électrons des derniers niveaux électroniques.

La tension de grille semble donc jouer un rôle supplémentaire : elle permet à tension de grille positive de laisser les derniers niveaux électroniques s'étendre dans le SrTiO₃, et à tension de grille négative de confiner le gaz contre l'interface. La donnée importante est donc la profondeur à laquelle s'étendent les derniers niveaux du gaz d'électrons. Nous l'avons estimée en prenant le point de croisement entre la bande de conduction et l'énergie de Fermi à chaque tension de grille, ce qui est reporté dans la figure 3.34. L'extension du gaz est quasiment constante à tension de grille négative et augmente avec $V_{\rm G}$ à tension de grille positive.

Ce dé-confinement des porteurs avec la tension de grille permet d'expliquer la séparation en deux types de porteurs du gaz d'électrons à tension de grille positive. Les LMC correspondent ici à la majorité des porteurs présents dans les sous-bandes les plus profondes du puits et sont toujours confinés au plus près de l'interface. Les HMC sont issus des sous-bandes les plus hautes et leur maximum de probabilité de présence est plus éloigné de l'interface. L'existence des HMC est contrôlée par la tension de grille et le remplissage du puits.

La mobilité dépend de la distance à l'interface, celle-ci étant un fort centre de diffusion, ce qui explique qu'elle augmente avec la tension de grille.



FIGURE 3.34 – Extension du gaz calculée en fonction de la tension de grille et nombre de porteurs de haute mobilité mesurée par effet Hall. La zone de supraconductivité est indiquée en orange.

Une autre explication, qui n'est pas en contradiction avec la précédente, est la forte diminution de la constante diélectrique près de l'interface, et sa restauration progressive dans le substrat. En effet, les LMC confinés près de l'interface voient toujours une faible constante diélectrique, alors que les HMC voient une constante diélectrique plus forte à mesure qu'ils s'éloignent de l'interface. La section efficace des diffuseurs ioniques est donc diminuée pour les HMC par rapport aux LMC.

Ceci peut également expliquer la différence d'anisotropie entre les LMC et HMC (cf chapitre 3.2.1). En effet, les LMC étant proches de l'interface ils sont plus sensibles au détails microscopiques de celle-ci. En particulier, il a été montré que le SrTiO₃ subit des reconstructions de surfaces lorsqu'il est élevé à des températures proches de celles utilisées lors de la fabrication des échantillons, notamment des reconstructions anisotropes [28]. Ces reconstructions de type 2×1 pourraient être à l'origine de la mobilité anisotrope des LMC, alors que les HMC plus loin de l'interface y sont moins sensibles.

Conclusion

Les résultats présentés dans ce chapitre nous ont révélé beaucoup d'informations essentielles sur le gaz d'électrons présent à l'interface $LaTiO_3/SrTiO_3$, en particulier le nombre de porteurs à l'interface et leur séparation en deux groupes de mobilités différentes. Le contrôle de la densité par la tension de grille est cohérent avec la modélisation du gaz que nous avons effectuée par un modèle de courbure de bande, et montre que le gaz d'électrons est confiné sur quelques nanomètres près de l'interface. Le puits quantique accueillant le gaz est intrinsèquement rempli presque à son maximum et la séparation du gaz en deux types de porteurs est essentiellement due à l'extension des sous-bandes électroniques les plus hautes en énergie loin de l'interface. L'extension et le remplissage de ces sous-bandes sont contrôlés par l'action conjuguée de la tension de grille sur la densité de porteurs et la courbure de la bande de conduction loin de l'interface.

Ces caractéristiques, dont une partie est commune aux interfaces $LaAlO_3/SrTiO_3$, sont capitales pour la compréhension et la description de ces interfaces, car elles conditionnent leurs propriétés physiques les plus intéressantes, comme la supraconductivité et le couplage spin-orbite décrits dans les chapitres suivants.

Chapitre 4

Supraconductivité

La supraconductivité est un des rares phénomènes quantiques où la cohérence du système apparaît dans des dimensions macroscopiques. Depuis sa découverte il y a plus d'un siècle, elle a fait l'objet de nombreuses recherches, et est toujours intensément étudiée. La découverte de la supraconductivité à l'interface LaAlO₃/SrTiO₃ en 2007 [102] a grandement accentué l'intérêt de la communauté scientifique pour les interfaces d'oxydes. En effet, ce système intrinsèquement bi-dimensionnel permet également un contrôle par effet de champ électrostatique, ce qui lui confère une versatilité unique par rapport aux couches minces de supraconducteurs conventionnels. Les supraconducteurs 2D sont des systèmes de choix pour étudier des phénomènes physiques fondamentaux comme les transitions Berezinskii-Kosterlitz-Thouless et les transitions de phases quantiques. Ces interfaces permettent donc une nouvelle approche de ces problèmes, par leurs capacités à changer continument leurs propriétés physiques.

Dans ce chapitre, nous allons d'abord nous intéresser au caractère bi-dimensionnel de la supraconductivité, avant d'étudier l'effet de la tension de grille sur son comportement. Plusieurs transitions de phases quantiques seront ensuite analysées.

4.1 Supraconductivité bi-dimensionnelle

La résistance des échantillons refroidis sans tension de grille a été mesurée jusqu'à très basse température, montrant une transition supraconductrice autour de 200 mK. Les figures 4.1 et 4.2 montrent la résistance des échantillons de LTO-10ucA et LTO-15ucAxx à basse température pour différents champs magnétiques appliqués perpendiculairement au plan de l'échantillon.

Le champ magnétique détruit la supraconductivité, et le système transite sous l'action du champ d'un état supraconducteur à un état dissipatif, ce dernier étant un état métallique bi-dimensionnel localisé (la localisation sera décrite plus loin dans le chapitre 5). La figure 4.3 montre que le champ critique de la supraconductivité en fonction de la température (défini ici comme le champ qui supprime 90% de la supraconductivité à une température donnée) suit raisonnablement un comportement de type Ginzburg-Landau près de T_C (trait rouge), c'est-à-dire que la longueur de cohérence de la supraconductivité dans le plan suit le comportement de champ moyen $\xi_{\parallel} \propto 1/\sqrt{T_C - T}$ et donne le champ critique :

$$B_C^{\perp}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}^2}$$
(4.1)



FIGURE 4.1 – Résistance de l'échantillon LTO-10ucA en fonction de la température pour différents champs magnétiques perpendiculaires.



FIGURE 4.2 – Résistance de l'échantillon LTO-15ucAxx en fonction de la température pour différents champs magnétiques perpendiculaires.

L'extrapolation à température nulle du champ critique de la supraconductivité permet d'extraire les longueurs de cohérence de la phase supraconductrice à T = 0 K, pour lesquelles nous obtenons $\xi_{\parallel}^{10uc} = 38$ nm $(B_C^{\perp} = 220 \text{ mT})$ et $\xi_{\parallel}^{15uc} = 42$ nm $(B_C^{\perp} = 210 \text{ mT})$. De façon similaire, des mesures avec le champ magnétique appliqué parallèlement au plan de l'échantillon permettent de déduire le champ critique dans le plan, qui s'exprime en



FIGURE 4.3 – Champ magnétique critique en fonction de la température pour l'échantillon LTO-10ucA. Le trait rouge indique le comportement linéaire de type Ginzburg-Landau proche de T_C .

fonction des paramètres microscopiques du système comme :

$$B_C^{\parallel}(T) = \frac{\sqrt{3}\Phi_0}{\pi d\xi_{\parallel}} \tag{4.2}$$

où d est l'épaisseur du gaz supraconducteur. L'alignement expérimental de l'échantillon et du champ magnétique n'étant pas parfait, ces mesures permettent d'extraire une limite haute à l'épaisseur du gaz : $d^{10uc} = 12 \text{ nm} (B_C^{\parallel} = 2.15 \text{ T}) \text{ et } d^{15uc} = 13.5 \text{ nm} (B_C^{\parallel} = 2.2 \text{ T})$, en accord avec différentes mesures expérimentales [30, 26] et notre modèle présenté au chapitre 3.

Remarquons ici que les valeurs du champ critique parallèle sont élevées en comparaison de la température critique. En effet, pour un supraconducteur de type BCS et des électrons libres dont le facteur de Landé est g = 2, le champ magnétique critique permettant de briser les paires de Cooper par effet Zeeman est donné par $B_{\rm P} = 1.84T_C$ [25, 24]. Cette limite purement énergétique, dite de Pauli¹, est donc indépendante de l'orientation du champ magnétique. Les valeurs des températures critiques du gaz supraconducteur étant de l'ordre de 0.3 K, la limite de Pauli associée est donc d'environ 0.5 T, bien en dessous des champs critiques parallèles mesurés. Néanmoins, les électrons dans le gaz ne sont pas forcément bien décrits par le modèle d'électrons libres. En particulier, il a été montré dans les hétérostructures de semi-conducteurs que le facteur de Landé pouvait être modifié par la forme du puits de potentiel près d'une interface[110]. Ne pouvant mesurer le facteur de Landé directement, il est alors difficile de dire si la limite de Pauli est dépassée ou non en champ magnétique parallèle. De plus, la présence d'un fort couplage spin-orbite de type Rashba a été montré à l'interface LaAlO₃/SrTiO₃ [22, 8] et à l'interface LaTiO₃/SrTiO₃ (cf chapitre 5). Le manque de centre d'inversion et la présence de couplage

^{1.} ou également appelée Chandrasekhar-Clogston

spin-orbite peuvent théoriquement être à l'origine d'un appariement mixte singulet-triplet [46, 39, 116] pouvant supprimer la limite de Pauli. Miechaeli *et al.* ont récemment proposé que la création d'une phase de type Fulde-Ferrel-Larkin-Ovchinikov (FFLO) avec un moment d'appariement fini pouvait expliquer la coexistence du ferromagnétisme et de la supraconductivité à l'interface LaAlO₃/SrTiO₃ [79]. La symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur n'ayant pas encore été mesurée dans ces interfaces, ces questions restent à l'heure actuelle totalement ouvertes.

Ces résultats montrent cependant le caractère bi-dimensionnel de la supraconductivité dans ces interfaces car $\xi_{\parallel} > d$. Elle devrait donc entrer dans la catégorie des transitions de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (BKT)[66]. En effet, il a été montré qu'il ne peut exister de phase ordonnée à longue portée en deux dimensions [78, 57], interdisant ainsi les transitions dites classiques à la Landau. Néanmoins, un "ordre topologique" à grande distance peut apparaître à partir d'un ordre à courte distance, dans lequel les excitations sont des paires vortex/anti-vortex, dont le désappariement en fonction de la température détruit la supraconductivité [66]. Cette transition particulière est difficile à mettre en évidence et a souvent fait l'objet de controverses dans la communauté. Comme nous allons le voir par la suite, elle peut *a priori* être observée en analysant la paraconductivité au-dessus de la température de transition. En effet, la longueur de cohérence de la supraconductivité diverge de manière exponentielle près de la transition dans le cas d'une transition BKT et non pas en loi de puissance comme dans une transition de type Ginzburg-Landau.

4.1.1 Analyse BKT de la transition supraconductrice

Schneider *et al.* [104] ont proposé que la paraconductivité dans les interfaces $LaAlO_3/SrTiO_3$ prenne la forme mathématique (les notations sont transposées pour être cohérentes avec [10]) :

$$\frac{R(T)}{R_N} = A^2 \exp\left(-2b\sqrt{\frac{1}{t}}\right) \tag{4.3}$$

où R_N est la résistance de l'état normal, et t est la température normalisée par rapport à la température de transition 2D T_{KT} , c'est-à-dire $t = (T - T_{KT})/T_{KT}$. Le paramètre best lié à l'énergie de création de vortex, et A est un paramètre d'ordre unité. La figure 4.4 montre les données à champ nul de l'échantillon LTO-15ucAxx réorganisées pour extraire le paramètre b et la température de transition T_{KT} . La régression linéaire à haute température donne b = 0.00287 et $T_{KT} = 0.31$ K.

Selon [104], la courbe dévie de ce comportement aux basses températures à cause de la taille finie des domaines homogènes dans l'échantillon, ce qui les amène à considérer une renormalisation de taille finie pour expliquer la queue de résistivité en dessous de T_{KT} de la forme :

$$\frac{R(T)}{R_N} \exp\left(2b\sqrt{\frac{1}{t}}\right) = g\left(\frac{1}{R_N L^2} \exp\left(2b\sqrt{\frac{1}{t}}\right)\right)$$
(4.4)

où L est la taille typique des domaines homogènes et g la fonction de renormalisation. Lorsque la longueur de cohérence ξ devient plus grande que la taille homogène L la fonction de renormalisation passe d'un comportement où g(x) = 1 à un comportement où



FIGURE 4.4 – Extraction du paramètre b à partir de la résistance de l'échantillon LTO-15ucAxx. Encart : mise en évidence du régime à haute température (ligne rouge : g(x) = 1) et du régime de renormalisation par la taille typique des domaines homogènes L (ligne pointillée bleue : $g(x) \propto x$).

 $g(x) \propto x$, ce qui est montré dans l'encart de la figure 4.4. Ce modèle ne donne malheureusement pas d'expression de la fonction de renormalisation g permettant un ajustement des courbes près de T_{KT} , néanmoins il est possible d'ajuster la partie haute température par l'équation (4.3) comme montré dans la figure 4.5.

Cependant de nombreuses questions ont été soulevées concernant la pertinence de ce modèle. En particulier, il a été montré par une approche de théorie de groupe de renormalisation [10] que le paramètre b est lié à la température critique de champ moyen T_C du condensat superfluide par $b = 2.1\sqrt{(T_C - T_{KT})/T_{KT}}$. Le paramètre b = 0.00287 extrait de l'analyse ci-dessus donnerait donc une température de champ moyen T_C extrêmement proche de T_{KT} avec une différence de seulement 0.6 μ K. Cette très faible différence est en contradiction directe avec les hypothèses de l'ajustement à haute température montré ci-dessus, celui-ci étant alors dominé par des fluctuations d'amplitudes de type Ginzburg-Landau (GL) et non de phases de type BKT. Les mêmes remarques peuvent être appliquées aux résultats de [104].

4.1.2 Analyse BKT-GL et inhommogénéités

Le modèle alternatif proposé par Benfatto *et al.* [10] se base sur la formule proposée par Halperin et Nelson [47] décrivant la transition entre des fluctuations GL à haute température et les fluctuations de phases BKT à basse température.

Rappelons tout d'abord que dans la partie GL haute température, les fluctuations sont de type Azlamasov-Larkin, c'est-à-dire des fluctuations d'amplitude du paramètre d'ordre



FIGURE 4.5 – Ajustement à haute température des paramètres à la courbe de résistance de l'échantillon LTO-15ucAxx par la formule (4.3) avec $T_{KT} = 0.31$ K et b = 0.00287.

supraconducteur, et donnent à la résistance la forme [4] :

$$\frac{R(T)}{R_N} = 1 - R_N \frac{e^2}{16\hbar} \left(\frac{T - T_C}{T_C}\right)^{-1}$$
(4.5)

Ce comportement en loi de puissance est bien distinct des fluctuations de phases décrites par l'équation (4.3). L'interpolation entre ces deux régimes proposée par Halperin et Nelson est basée sur le modèle suivant [47] :

$$\frac{\xi(T)}{\xi_0} = \frac{2}{A} \sinh\left(b\sqrt{\frac{T_{KT}}{T - T_{KT}}}\right) \quad , \quad T \gtrsim T_{KT} \tag{4.6}$$

Les effets de tailles finies près et en dessous de T_{KT} sont calculés par la résolution des équations de renormalisation, en prenant en compte la fugacité des vortex $g = 2\pi e^{\mu(T)/k_BT}$ $(\mu(T)$ étant l'énergie de cœur des vortex) et la rigidité de la phase supraconductrice J(T). La longueur de corrélation se comporte alors comme :

$$\frac{\xi(T)}{\xi_0} = e^{\mu(T)/2k_B T} \left(\frac{L}{\xi_0}\right)^{\pi J(T)/2T} , \quad T \lesssim T_{KT}$$
(4.7)

Ce modèle montre que les effets de tailles finies ne peuvent rendre compte de la queue de résistivité observée expérimentalement, même en prenant des tailles limites L beaucoup plus petites que la taille physique des échantillons. Il a été proposé de traiter cette queue dissipative en terme d'inhomogénéité de la rigidité de phase, liée à des inhomogénéités de températures critiques d'après les équations de groupe de renormalisation.

Le modèle d'inhomogénéité se décompose en deux parties (le détail des calculs est donné dans [10]) :

1. La valeur moyenne des paramètres pertinents (T_{KT}, b) est déterminée en ajustant la formule (4.6) à la partie haute température en prenant :

$$\frac{R}{R_N} = \frac{1}{1 + \left(\frac{\xi}{\xi_0}\right)^2} \tag{4.8}$$

Cet ajustement permet alors d'en déduire la température de champ moyen T_C par la formule obtenue dans [10] : $b = 2.1\sqrt{(T_C - T_{KT})/T_{KT}}$. La rigidité de phase près de la transition est alors calculée à partir du saut universel attendu pour les transitions KT : $J_S(T_{KT}) = 2T_{KT}/\pi$ [85] et en prenant en compte un comportement BCS du paramètre d'ordre supraconducteur près de T_C , ce qui donne :

$$\sqrt{\frac{T_C - T_{KT}}{T_{KT}}} = \frac{8T_C}{\pi^3 J_0} \tag{4.9}$$

Cet ajustement est en fait multivalué, une large gamme de trios (T_{KT}, A, b) donnant une même courbe. Cette ambigüité est levée par la donnée du paramètre de rigidité de phase J_0 . Ce paramètre est lié à la densité superfluide et *a priori*, ne peut être mesuré que par la mesure de la longueur de pénétration du champ magnétique λ . Cette mesure n'étant pas accessible expérimentalement à l'heure actuelle, nous utilisons la formule suivante proposée dans [10] :

$$k_B J_0 = \frac{\hbar}{e^2} \frac{\pi \Delta(0)}{4R_S} \tag{4.10}$$

où l'énergie caractéristique de la supraconductivité est donnée par son estimation BCS : $\Delta(0) = 1.76k_BT_C$. Cette estimation permet pour l'échantillon donné de réduire la plage des paramètres autour de $J_0 \sim 1.65$ K. Cette valeur impose un écart entre T_C et T_{KT} d'environ 0.2%, les deux températures étant alors presque indiscernables expérimentalement. Notons que des valeurs plus faibles de J_0 donneraient un écart plus grand entre ces deux températures, comme le montre l'équation (4.9) et inversement. Nous avons néanmoins utilisé ce critère pour donner un sens physique au résultat.

2. Une fois les paramètres moyens calculés, les inhomogénéités sont décrites par un profil gaussien de probabilité autour de la valeur moyenne J_0 de la forme :

$$P(J) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\delta}} e^{-\frac{(J-J_0)^2}{2\delta^2}}$$
(4.11)

Une approximation linéaire est ensuite utilisée pour calculer chaque température GL associée $T_C^J = T_C J/J_0$, puis la formule (4.9) est utilisée pour calculer T_{KT}^J , permettant ainsi de calculer $\xi_J(T)$ par la formule (4.6) (les effets de tailles finies sont ici négligés).

Enfin la valeur moyenne du terme correctif est calculée en utilisant :

$$\left\langle \left(\frac{\xi_0}{\xi}\right)^2 \right\rangle = \int \left(\frac{\xi_0}{\xi_J}\right)^2 P(J) \mathrm{d}J$$
(4.12)

(en pratique une intégrale discrète sur un nombre raisonnable de points autour de J_0 est utilisée), puis la formule :

$$\frac{R}{R_N} = \frac{1}{1 + 1/\langle \left(\frac{\xi_0}{\xi}\right)^2 \rangle} \tag{4.13}$$



permet de reconstruire la résistance en fonction de la température.

FIGURE 4.6 – Ajustement des paramètres à la courbe de résistance par le modèle d'inhomogénéités. L'encart montre la très faible différence entre T_C et T_{KT} .

La figure 4.6 montre le résultat de cette procédure d'ajustement sur les mêmes données que la figure 4.5. Le grossissement du pied de la transition de la courbe sans inhomogénéité ("hom.") montre la très faible différence entre T_C et T_{KT} , ce qui indique que la transition est dominée par les fluctuations de type GL, la plage de température où les fluctuations de phases BKT dominent étant extrêmement réduite. L'introduction des inhomogénéités gaussiennes permet de rendre compte de la queue de résistance finie en dessous de T_{KT} avec un étalement de l'ordre de $\delta = 0.15J_0$. Néanmoins ce modèle montre des écarts prononcés en haut et en bas de la transition. Il est possible de compenser ces écarts en prenant une distribution de probabilité légèrement asymétrique. La courbe "inh. asym." a été ajustée avec un modèle où la distribution de probabilité de J est donnée par une distribution Gaussienne asymétrique :

$$P(J) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\delta}} e^{-\frac{(J-J_0)^2}{2\delta^2}} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\alpha \frac{J-J_0}{\sqrt{2\delta}}\right) \right]$$
(4.14)

où le paramètre α contrôle l'asymétrie (la courbe est symétrique pour $\alpha=0$). Cette distribution permet de répartir le poids résistif des inhomogénéités vers les basses températures, en accord avec les données. La figure 4.7 montre la différence entre les deux distributions de probabilités, la distribution asymétrique est légèrement plus large que celle symétrique.

Notons tout de même que l'apparente asymétrie de distribution de J n'est pas un paramètre libre, mais dépend, comme les autres paramètres, du choix de la rigidité moyenne J_0 choisie à haute température : un J_0 plus grand donnerait en effet un ajustement plus symétrique (α plus petit) ainsi qu'une plus petite différence entre T_C et T_{KT} . La mesure directe de la densité superfluide a très récemment été mise au point par le groupe de



FIGURE 4.7 – Densité de probabilité symétrique et asymétrique utilisée pour ajuster les données de la figure 4.6. La ligne noire verticale représente le paramètre moyen J_0 ajusté à haute température.

K. Moler [11, 12] et appliquée à l'interface LaAlO₃/SrTiO₃. La densité superfluide extraite de cette étude donnerait une rigidité de phase autour de $J_0 \approx 10$ K ce qui diminuerait encore la plage de température où les fluctuations de phases sont dominantes.

4.1.3 Saut de densité superfluide

Une autre caractéristique des transitions BKT est le "saut universel" de densité superfluide à T_{KT} [85]. En effet, en augmentant la température, la théorie BKT prévoit que la densité superfluide ne s'annule pas continument mais vérifie $\pi J_S(T_{KT})/T_{KT} = 2$ exactement à la transition, et $J_S(T > T_{KT}) = 0$ juste au-dessus pour un échantillon homogène de taille infinie. Ce saut de densité devrait être visible dans les caractéristiques I - V des échantillons, la théorie prévoyant en effet la relation :

$$V \propto I^{1+\pi J_S(T)/T} \tag{4.15}$$

Le comportement en loi de puissance de la caractéristique V(I) devrait donc passer brutalement d'une loi cubique à une loi linéaire à la transition. Cependant, Benfatto *et al.* [10] ont montré que les inhomogénéités qui élargissent la transition font de même avec le saut de densité. La figure 4.8 montre les caractéristiques I-V de l'échantillon LTO-15ucA à basse température. En accord avec le modèle d'inhomogénéité, cette mesure ne permet pas une détermination claire de la température de transition, car il n'y a pas de saut visible.

Les analyses précédentes de transitions de type BKT et BKT-GL inhomogènes ont montré que la transition peut être globalement bien décrite par une distribution de densité inhomogène, dont les fluctuations dominantes sont de type GL, la plage de température où les fluctuations BKT dominent étant très réduite et beaucoup plus petite que la largeur



FIGURE 4.8 – Caractérisitiques I - V de l'échantillon LTO-15ucAyy à différentes températures. La ligne pointillée montre le comportement cubique en I.

de la transition.

Ces inhomogénéités masquent probablement le saut universel de densité superfluide caractéristique des transitions BKT dans les courbes I - V mesurées. De plus, les mesures directes de densité superfluide à l'interface LaAlO₃/SrTiO₃ [12] ne montrent pas de saut de densité à leur niveau de précision.

4.2 Contrôle électrostatique de la transition supraconductrice



FIGURE 4.9 – Résistance de l'échantillon LTO-15ucAxx en fonction de la température pour différentes tensions de grille.

Comme montré au chapitre 3 et dans la figure 4.9, la résistance et la supraconductivité du gaz à l'interface $\text{LaTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ peuvent être contrôlées par un potentiel électrostatique appliqué à une grille métallique au dos de l'échantillon. La température critique de la transition supraconductrice forme un dôme en fonction de la tension de grille (figure 4.10). Avec une grille à l'arrière du substrat, il est intrinsèquement impossible de fermer ce dôme du côté des tensions de grille très positives à cause du phénomène de saturation de la densité et du débordement du puits quantique décrit au chapitre 3.

La fermeture du dôme du côté des faibles densités est plus intéressante. En effet, malgré la similitude de la courbe $T_C(V_G)$ avec la forme du dôme supraconducteur présent dans le SrTiO₃ dopé, le seul argument de la densité ne suffit pas à expliquer la chute de T_C . La figure 4.11 montre que la densité volumique moyenne des porteurs (calculée à partir des densités surfaciques et d'une épaisseur moyenne du gaz issue du modèle de courbure de bande décrit au chapitre 3) est toujours dans une gamme de densité où le titanate de strontium dopé est supraconducteur [64].

Le caractère bi-dimensionnel de la supraconductivité fournit également d'autres mécanismes pour expliquer la suppression de la supraconductivité. En particulier il a été montré que le désordre en deux dimensions pouvait faire baisser la température critique dans des films homogènes de supraconducteurs amorphes comme MoGe [32]. Ce mécanisme prend en compte l'action les fluctuations de densité ainsi que la diffusion par les impuretés pour calculer la dépendance de T_C avec le désordre par la théorie de groupe de renormalisation,



FIGURE 4.10 – Résistance et température critique (chute de 15% de la résistance) en fonction de la tension de grille extraits des données de la figure 4.9.



FIGURE 4.11 – Température critique de la supraconductivité mesurée dans $SrTiO_3$ dopé repris de Koonce *et al.* [64], et équivalent en densité volumique de porteurs de l'échantillon LTO-15ucA en fonction de la grille (calculée en prenant l'épaisseur qui inclut 99% des porteurs dans le calcul de courbure de bandes). La bande de couleur borne la zone de densité qu'il est possible de calculer en prenant d'autres modèles.

et donne :

$$\frac{T_C}{T_C^0} = e^{-1/\gamma} \left(\frac{\gamma - t/4 + \sqrt{t/2}}{\gamma - t/4 - \sqrt{t/2}} \right)^{1/\sqrt{2t}}$$
(4.16)

où $t = R_S/R_C^0$ avec $R_C^0 = 2\pi^2\hbar/e^2$ et $\gamma = 1/\ln(T_c^0\tau)$ avec T_C^0 la température critique dans la limite propre, et τ le temps de diffusion élastique. Néanmoins, comme montré par la figure 4.12, ce modèle seul ne peut rendre compte de la suppression de T_C observée dans nos échantillons de LaTiO₃/SrTiO₃. En effet, la courbure observée expérimentalement dans la courbe $T_C(R_S)$ est négative, contrairement à la courbure obtenue dans le calcul de Finkel'shtein [21].



FIGURE 4.12 – Gauche : Température critique en fonction de la résistivité de l'échantillon LTO-15ucA. Droite : suppression de résistivité par un mécanisme de type Finkel'shtein, repris de [21] en utilisant la formule (4.16) et les paramètres $T_C^0 = 0.23$ mK et $\tau = 5 \times 10^{-7}$ mK⁻¹ pour se rapprocher des ordres de grandeurs de R_S et T_C dans les mesures LaTiO₃/SrTiO₃.

Nous avons montré au chapitre 3 que la tension de grille ne contrôle pas seulement la densité de porteurs mais également la forme du puits de potentiel dans la bande de conduction du $SrTiO_3$. Ceci induit une séparation des électrons en deux types de porteurs : la majorité des porteurs (LMC) se trouve dans les sous-bandes les plus profondes et donc les plus proches de l'interface et ont une mobilité relativement faible; alors qu'une minorité de porteurs (HMC) remplissant les sous-bandes plus hautes en énergie peuvent, selon la tension de grille, s'étendre suffisamment loin de l'interface et ainsi acquérir une mobilité plus grande. Comme le montre la figure 4.13 le dôme de supraconductivité est concomitant à la présence des HMC à l'interface, ce qui tend à montrer que la suppression de la supraconductivité est majoritairement due à la disparition des HMC.

La séparation spatiale des HMC et des LMC donne une explication possible au lien entre la supraconductivité et la densité de HMC. En effet, les HMC ont un maximum de probabilité de présence plus éloigné de l'interface que les LMC, ce qui leur confère leur surplus de mobilité. Ils se trouvent également au bord de la courbure du puits de potentiel, c'est-à-dire dans une région où le champ électrique de confinement est moins important qu'à l'interface, ce qui augmente la constante diélectrique locale de la matrice du SrTiO₃.



FIGURE 4.13 – Densité de porteurs de haute mobilité et dôme de supraconductivité de l'échantillon LTO-15ucAxx. L'extension du gaz calculée par le modèle développée au chapitre 3 montre l'importance de l'extension du gaz pour l'existence et la mobilité des HMC.

L'origine de la supraconductivité dans le titanate de strontium est toujours sujette à controverse, néanmoins le comportement particulier de ses propriétés diélectriques et des fluctuations quantiques associées sont *a priori* un ingrédient essentiel pour l'établissement de la supraconductivité [2, 63, 118]. Il semble donc pertinent de supposer que les HMC déclenchent la supraconductivité dans ces interfaces, les LMC seuls ne pouvant être supraconducteurs pour une ou plusieurs raisons. Parmi celles-ci, la supraconductivité pourrait être supprimée par le désordre à l'interface par un mécanisme de type Finkel'shtein comme présenté plus haut. D'autres part, la chute drastique de la constante diélectrique due aux champs à l'interface pourrait également être un facteur limitant la supraconductivité des LMC.

Ce lien entre supraconductivité et porteurs mobiles pose néanmoins la question de la cohabitation spatiale de deux fluides électroniques dont l'un devient supraconducteur. En particulier la question est de savoir si tous les électrons (LMC et HMC) condensent dans la phase superfluide ou si les deux fluides se comportent comme des canaux distincts.

Selon Caprara *et al.* [20] un couplage infinitésimal (dans l'espace réciproque) entre deux bandes supraconductrices de différentes températures critiques suffit à induire la condensation des porteurs des deux bandes à la température critique la plus haute. Ainsi, même si la température critique des LMC est nulle, un couplage avec la ou les bandes des HMC devrait leur permettre de condenser jusqu'à la température critique des HMC.

Les mesures de densité superfluide des interfaces $LaTiO_3/SrTiO_3$, *a priori* nécessaire pour répondre à cette question, ne sont pas accessibles actuellement. Néanmoins une mesure de densité superfluide à l'interface $LaAlO_3/SrTiO_3$ (figure 4.14 extraite de [12]) montre que la densité superfluide est de l'ordre de ~ 10^{12} cm⁻², ce qui serait plus en accord avec le scénario où seul les HMC sont supraconducteurs. Remarquons que cette



FIGURE 4.14 – Température critique (a) et densité superfluide (b) d'une interface $LaAlO_3/SrTiO_3$ en fonction de la tension de grille à l'arrière du substrat. Figure réimprimée d'après Bert *et al.* [12]. American Physical Society, Copyright 2012.

mesure directe du condensat superfluide dans $LaAlO_3/SrTiO_3$ est en remarquable accord avec nos mesures de la densité de HMC dans l'état normal de l'interface $LaTiO_3/SrTiO_3$. Les deux densités sont en effet du même ordre de grandeur, représentant une partie minoritaire (environ un dixième) de la densité totale mesurée, et leur variation quasi-linéaire en fonction de la tension de grille est similaire dans les deux interfaces.

4.3 Transition de phase quantique supraconducteur-isolant et comportement critique

Nous avons montré que la supraconductivité à l'interface LaTiO₃/SrTiO₃ peut être contrôlée par deux paramètres extérieurs : le champ magnétique, et le potentiel électrostatique de l'électrode de grille. Dans les deux cas, le paramètre de contrôle peut changer l'état fondamental supraconducteur en un état de type isolant $(\partial R/\partial T < 0)$ et ce à des températures quasi-nulles. Les transitions de phases quantiques sont des transitions de phase à température nulle qui ne sont pas contrôlées par les fluctuations thermiques des différentes grandeurs, comme c'est le cas dans les transitions de phases classiques, mais par les fluctuations quantiques d'un des termes de l'Hamiltonien du système. Une signature particulière de ces transitions supraconducteur-isolant (SIT) est l'existence d'un point critique quantique à une certaine valeur du paramètre de contrôle, pour laquelle la résistance devient indépendante de la température proche de T = 0.



FIGURE 4.15 – Gauche : Résistance en fonction de la température pour l'échantillon LTO-15ucA à $V_{\rm G}$ = +80 V (pour cette séquence de mesure, la tension maximale de polarisation a été de +100 V) à différents champs magnétiques (de 0 à 300 mT par pas de 10 mT). Droite : mêmes données tracées en fonction du champ magnétique pour différentes valeurs de la température (de 100 à 200 mK par pas de 5 mK). Un point de croisement apparaît à B_{\times} = 0.185 T.

La figure 4.15 montre qu'un point de croisement en champ magnétique apparaît dans les mesures de résistance en fonction du champ et de la température, indiquant la présence d'un point critique quantique, et ainsi la possibilité d'étudier cette transition dans le cadre des transitions de phases quantiques.

4.3.1 Les transitions de phase quantique

Dans les transitions de phase quantique [112, 45], la dimensionnalité effective du système, c'est-à-dire la dimension de l'espace où ont lieu les corrélations de fluctuations, est supérieure à sa dimensionnalité spatiale, la (ou les) dimension(s) supplémentaire(s) étant des dimensions temporelles imaginaires². Près de la transition la longueur de corrélation des fluctuations diverge comme $\xi \propto |K - K_C|^{-\nu}$, K_C étant la valeur du paramètre de contrôle K au point critique et ν l'exposant associé. La longueur de corrélation dynamique (*i.e.* : dans la dimension temporelle) diverge près de la transition comme $\tau \propto \xi^z$, z dépendant principalement de la portée des interactions et donnant la dimension effective du système d + z, où d est sa dimensionnalité spatiale (figure 4.16). Par exemple, z=1 pour des interactions à longues portées comme l'interaction Coulombienne [54]. Les exposants critiques ν et z ne dépendent a priori que de certains paramètres macroscopiques du système (dimension, symétrie, portée des interactions,...) définissant la classe d'universalité de la transition, et non des mécanismes microscopiques mis en jeu. Ainsi, la longueur de cohérence des fluctuations d'un système bi-dimensionnel avec des interactions longues portées divergera au point critique à température nulle avec les exposants de son équivalent classique tri-dimensionnel.



FIGURE 4.16 – Diagramme de phase schématique d'une transition de phase quantique. Le paramètre K contrôle le passage de la phase "ordonnée", à la phase "désordonnée". Pour tout $K < K_C$, la transition de phase classique à température finie a les caractéristiques d'une transition en dimension d. Au point critique quantique $K = K_C$, la transition a les caractéristiques de la dimension d + z, z étant l'exposant critique dynamique.

A température finie, la longueur de la dimension temporelle imaginaire L_{τ} est limitée par les fluctuations thermiques à une longueur (temporelle) \hbar/k_BT . Ainsi la dimension du système n'est d+z qu'à température strictement nulle, et d pour toute température T > 0. Néanmoins, le système n'explore son espace de phase qu'à l'échelle de ses longueurs de

^{2.} au sens des nombres complexes

corrélations ξ et τ , et donc ne se "rend compte" de la taille finie de la dimension temporelle que lorsque $\tau > \hbar/k_B T$. Il est alors possible d'inférer le comportement à température nulle par une étude de renormalisation de taille finie aux températures accessibles expérimentalement. Les observables du système comme la résistance prennent ainsi la forme :

$$\frac{R(T,K)}{R_C} = F\left(\frac{(K-K_C)}{T^{1/z\nu}}\right) \tag{4.17}$$

où F est une fonction non universelle bi-valuée telle que F(0) = 1.



FIGURE 4.17 – Illustration de la procédure de renormalisation utilisée pour extraire les exposants critiques. **a** : Résistance normalisée en fonction de l'écart au point critique K_C à la température la plus basse T_0 et une deuxième température $T_1 > T_0$. La couleur rouge est du côté "ordonné" du point critique, et la couleur verte du côté "désordonné". **b** : Mêmes données avec l'abscisse contractée par le coefficient t dépendant de la température. Par définition $t(T_0) = 1$, et $t(T_1)$ est optimisé pour maximiser le recouvrement des deux courbes (la valeur est donnée à titre indicatif). **c** : Les résultats sont en général affichés sur une abscisse logarithmique en valeur absolue de l'écart au point critique. Les exposants critiques sont donnés par le comportement de t en fonction de T.

Une des procédures utilisée pour déduire le produit des exposants critiques $z\nu$ des mesures expérimentales consiste à réécrire l'équation (4.17) en $R(T, K) = R_C G((K - K_C)t)$ et à considérer t comme un paramètre ajustable à chaque température. En pratique, l'abscisse en $(K - K_C)$ de chaque courbe R(T, K) à T fixé (figure 4.17.a) est contractée par le coefficient t pour se rapprocher au maximum de la courbe à la température la plus basse T_0 (figure 4.17.b). La renormalisation permet alors de retrouver $z\nu$ si le paramètre t présente bien la dépendance attendue en $t = (T/T_0)^{-1/z\nu}$, ce qui confirme la validité du modèle de renormalisation. Cette procédure a pour avantage d'effectuer la renormalisation sans connaître à l'avance les exposants critiques.

4.3.2 Application à la transition en champ magnétique.

Tensions de grille positives



FIGURE 4.18 – Renormalisation des données de la figure 4.15 pour $V_{\rm G} = +80$ V autour de $B_{\times} = 0.185$ T. Encart : comportement en loi de puissance du paramètre de renormalisation t avec la température.

La figure 4.18 montre le résultat de cette procédure appliquée aux données de la figure 4.15 autour du point de croisement B_{\times} . Les points expérimentaux se superposent sur une même courbe bi-valuée, la branche du bas représentant le côté supraconducteur ($B < B_{\times}$) et la branche du haut le côté isolant ($B > B_{\times}$). Le comportement du paramètre t permet d'extraire le produit $z\nu = 0.66$ dans la plage de température considérée (100 à 200 mK).

Cette valeur est proche des résultats expérimentaux mesurés sur différents films supraconducteurs comme le bismuth amorphe [74] ou NbSi [5]. Elle est également proche des exposants théoriques du modèle XY propre en dimension (2+1) avec z=1 et $\nu = 2/3$ [69]. Le modèle XY est un modèle de vecteurs unitaires couplés, présentant une transition entre la phase ordonnée dans laquelle tous les vecteurs ont la même orientation, et la phase désordonnée, où l'orientation de chaque vecteur n'a pas d'ordre à longue portée. En deux dimensions, ce modèle peut être décrit par un Hamiltonien minimal $H = -J \sum_{\langle i,j \rangle} \cos(\phi_i - \phi_j)$ où $\langle i, j \rangle$ représente la somme sur les premiers voisins, et ϕ l'angle (ou phase) de chaque vecteur dans le plan. Ce modèle est typique des transitions BKT et est analogue aux transitions supraconductrices en 2D, l'angle de chaque vecteur étant l'équivalent de la phase du paramètre d'ordre supraconducteur. Il n'est donc *a priori* pas aberrant de voir apparaître ces exposants dans le cas d'une transition supraconducteur-isolant.

Néanmoins, dans les hétéro-structures étudiées ici, ce résultat peut apparaître singulier, car si l'exposant dynamique est en général toujours considéré égal à 1 à cause de la portée des interactions Coulombiennes [54, 5, 45], la valeur de ν va à l'encontre du critère de Harris [49, 34, 33]. Ce critère énonce de manière très générale que pour une transition de phase dans un milieu inhomogène l'exposant critique ν est lié à la dimensionnalité spatiale par la relation $d\nu - 2 \ge 0$, ce qui imposerait donc ici $\nu \ge 1$. Cet exposant anormalement bas semble indiquer que du point de vue des fluctuations de supraconductivité associées au champ magnétique le système apparaît propre dans cette plage de température, alors que les mesures de résistances et les modèles de supraconductivité à champ nul semblent plutôt indiquer que le système est inhomogène.

Cet élément pourrait expliquer la plage restreinte de température permettant d'effectuer la renormalisation. En effet, la renormalisation présentée dans la figure 4.18 n'est possible que dans une gamme de température supérieure à 100 mK, haute par rapport aux gammes de températures mesurées (jusqu'à 40 mK). La figure 4.19 montre les données de la figure 4.15 aux plus basses températures. La courbe mesurée à $B = B_{\times}$ montre bien le plateau entre 100 et 200 mK permettant l'analyse de renormalisation présentée dans la figure 4.18 mais chute en dessous de 100 mK, interrompant le plateau. Un deuxième point de croisement apparaît néanmoins aux températures plus basses pour un champ $B_C > B_{\times}$ qui marque la dernière trace de supraconductivité en fonction du champ.



FIGURE 4.19 – Gauche : Zoom des données de résistance en fonction de la température de la figure 4.15. La ligne horizontale pointillée marque le plateau de résistance permettant la renormalisation présentée plus haut. Droite : mêmes données tracées en fonction du champ magnétique à différentes températures (de 40 à 70 mK par pas de 1 mK). Un point de croisement apparaît à $B_C = 0.235 \text{ T} > B_{\times}$.

Ce deuxième point de croisement permet également d'effectuer une analyse de renormalisation (figure 4.20). La plage de température révélant ce comportement est très réduite car elle est limitée à basse température par la puissance du cryostat utilisé, et à haute température par la transition vers le comportement décrit plus haut autour de B_{\times} . Néanmoins, cette analyse permet d'extraire le produit des exposants critiques $z\nu = 1.5$ avec une marge d'erreur de ± 0.3 . Comme énoncé précédemment, l'exposant dynamique est *a priori* toujours z = 1, ce qui donne une exposant critique $\nu > 1$, en accord avec le critère de Harris.



FIGURE 4.20 – Renormalisation des données de la figure 4.19 pour $V_{\rm G} = +80$ V autour de $B_C = 0.235$ T dans la plage de température 0.04 à 0.07 K. Encart : comportement en loi de puissance du paramètre de renormalisation t avec la température.

Un tel comportement de transition double à deux champs critiques a été mis en évidence à toutes les tensions de grilles entre +100 V et +0 V, avec des exposants critiques similaires. Le comportement à tension de grille négative est légèrement différent, comme décrit ci-après.

Tensions de grille négatives

Lorsque la tension de grille est mise à une valeur négative il n'y a plus qu'un seul champ critique B_C créant un plateau de résistance jusqu'aux plus basses températures, comme le montre la figure 4.21 pour $V_{\rm G} = -15$ V.

Ce plateau de résistance permet de faire une analyse de renormalisation depuis les plus basses températures (figure 4.22). Néanmoins, le paramètre de renormalisation t ne suit pas une simple loi de puissance en fonction de la température. Comme le montre la figure 4.22 a), il est possible de mettre en évidence deux régimes de loi de puissance en fonction de la température :

- le régime "haute température" entre 70 et 120 mK donne un produit d'exposants critiques autour de 2/3, cohérent avec le modèle XY en limite propre. Par analogie au cas présenté plus haut à $V_{\rm G} = +80$ V, nous appellerons le champ critique dans cette plage de température B_{\times} .
- le régime basse température entre 40 et 60 mK donne un produit d'exposants critiques autour de 1.4, cohérent avec le critère de Harris.



FIGURE 4.21 – Gauche : Résistance en fonction de la température à différents champs magnétiques à $V_{\rm G} = -15$ V. Il n'y a qu'un seul point de croisement jusqu'au plus basses températures. L'encart présente un zoom des mêmes mesures. Droite : mêmes données tracées en fonction du champ magnétique à différentes températures.



FIGURE 4.22 – Analyse de renormalisation des données de la figure 4.21 à $V_{\rm G} = -15$ V. a) comportement du paramètre de renormalisation t en fonction de la température, montrant deux lois de puissance. b) Renormalisation dans la plage de température "haute" (70 à 120 mK). c) Renormalisation dans la plage de température basse (40 à 60 mK).

Comme pour les exposants trouvés aux tensions de grille positives, la plage de température utilisée dans l'analyse de renormalisation est assez restreinte, mais permet néanmoins de distinguer clairement les deux régimes. Ce comportement à été observé pour les tensions de grille de -30 V à 0 V.

Diagramme de phase des champs critiques

La figure 4.23 montre les mesures de B_{\times} et B_C en fonction de la tension de grille. Deux régimes apparaissent :

- Région I : pour $V_{\rm G} < 10$ V, il n'y a qu'un seul champ magnétique $B_{\times} = B_C$ jusqu'aux plus basses températures.
- Région II : Pour $V_{\rm G} > 10$ V, il est possible de distinguer deux champs critiques différents en fonction de la température. Le champ critique haute température B_{\times} est quasi-indépendant de la tension de grille et prend la valeur $B_d = 185$ mT.



FIGURE 4.23 – Champs critiques B_{\times} et B_C en fonction de la tension de grille et comparaison avec la température de transition T_C . Deux régions sont mises en évidence : pour $V_{\rm G}$ < 10 V il n'y a qu'un seul champ critique, alors qu'il y a deux champs critiques distincts pour $V_{\rm G} > 10$ V.

Il est intéressant de noter ici que le champ critique B_C suit la même tendance en V_G que la température critique T_C (prise ici à la température de chute de 10% de résistance), ce qui indique que les deux grandeurs sont intrinsèquement liées.

Les exposants critiques extraits des procédures de renormalisation sont reportés dans la figure 4.24. Dans toute la gamme de tension, il est possible de trouver une plage "haute" température ($\approx 100 \text{ mK}$) dans laquelle les exposants critiques sont en accord avec le modèle XY en limite propre, et une plage de température plus basse ($\approx 60 \text{ mK}$) avec des exposants critiques en accord avec un modèle en limite désordonnée selon le critère de Harris.



FIGURE 4.24 – Exposants critiques issus des renormalisations en limite désordonnée à basse température autour de B_C (en rouge) et à haute température en limite propre autour de B_{\times} (en noir).

Les exposants extraits en limite désordonnée prennent des valeurs comprises entre $z\nu = 1.4$ et 2.3 avec une certaine indétermination due à la faible gamme de température accessible (figure 4.24). Notons que des exposants 1.3 et 2.3 ne sont pas étrangers aux transitions de phase supraconducteur-isolant. En effet, Steiner *et al.* [114] ont classifié les transitions quantiques mesurées dans plusieurs films supraconducteurs désordonnés de manière homogène (InOx, et MoGe) :

- Dans la limite de faible désordre, c'est-à-dire $R_S < R_Q$ $(R_Q = h/(2e)^2$ est le quantum de résistance pour des porteurs de charge 2e), le champ critique de la transition est proche du champ critique du système tri-dimensionnel, et les exposants critiques donnent $z\nu \approx 4/3$ ce qui est cohérent avec les exposants de la percolation classique $(z = 1 \text{ et } \nu = 4/3)$.
- Dans la limite de désordre fort, c'est-à-dire $R_S \approx R_Q$, le champ critique est fortement diminué par rapport à la limite 3D, et les exposants critiques $z\nu \approx 7/3$ sont cohérent avec la transition de percolation quantique (z = 1 et $\nu = 7/3$).

Selon leur analyse, ces deux limites correspondent respectivement aux modèles de transitions fermioniques et bosoniques.

Dans les modèles fermioniques, les paires de Cooper sont brisées à la transition, et la physique de l'état isolant est reliée aux électrons seuls. L'état désordonné est faiblement isolant et peut-être un métal localisé.

Dans le modèle bosonique, les paires de Cooper sont toujours liées dans l'état isolant, mais sont localisée dans une matrice de vortex [34]. La dualité entre l'état de bosons localisés dans la phase isolante et l'état de vortex localisés dans la phase superfluide est une des particularités de ce modèle qui devrait imposer une valeur universelle à la résistance critique égale à R_Q [33].

D'après les valeurs des résistances critiques observées dans $LaTiO_3/SrTiO_3$, ce système rentre *a priori* dans la catégorie des transitions fermioniques. Néanmoins, les valeurs disparates des exposants critiques dans la limite basse température ne concordent pas complètement avec les exposants de la percolation classique. De plus, ces théories ne prévoient d'aucune manière l'existence d'une double transition avec plusieurs régimes critiques.

Scénario de flaques supraconductrices

Pour expliquer l'existence des deux champs critiques ainsi que les différents exposants critiques en fonction de la température, nous avons modélisé le gaz d'électrons par un réseau de flaques supraconductrices couplées par un métal normal localisé, comme représenté schématiquement sur la figure 4.25. Ce modèle et son analyse sont largement basés sur les travaux de Feigel'mann *et al.*[31] et Spivak *et al.*[113].



FIGURE 4.25 – Représentation schématique des flaques supraconductrices (en bleu) couplées par le gaz d'électrons (en jaune). La taille typique des flaques est L_d .

Compte tenu des résultats montrés au chapitre 4.2, nous transposons ce modèle à l'interface LaTiO₃/SrTiO₃ en supposant l'existence de flaques supraconductrices de taille mésoscopique L_d constituées des porteurs de haute mobilité décrits précédemment. En effet, ces porteurs ayant une faible densité, ils sont plus sensibles aux variations de densités. Ceci est en accord avec les récentes mesures locales de supraconductivité inhomogènes dans les interfaces LaAlO₃/SrTiO₃ [11]. Les flaques sont couplées par effet de proximité par les parties métalliques du gaz, c'est-à-dire les porteurs de faibles mobilité près de l'interface. La supraconductivité étant bi-dimensionnelle, elle est décrite par la physique du modèle

XY.

Les études théoriques de ce type de modèle montrent qu'il peut y avoir une transition supraconducteur-métal localisé avec des caractéristiques particulières. Notamment, le champ critique de la supraconductivité est proportionnel à la température critique[31], comme nous l'avons fait remarquer plus haut dans la figure 4.23. Il faut également noter que dans ce modèle, le paramètre essentiel qui règle le couplage inter-flaques, et donc la physique associée à la transition supraconductrice, est la conductivité du gaz d'électrons[113]. Deux régimes de couplage se dégagent de ces études :

- En régime de couplage fort (grande conductivité), chaque flaque peut développer localement de la supraconductivité, et de fait, avoir son propre champ critique. Le couplage inter-flaques renforce la supraconductivité du réseau de flaques et le champ critique du système entier est plus grand que celui d'une flaque. Ce régime correspond à la région II de la figure 4.23. Dans ce régime, le comportement du champ critique avec la conductivité du gaz est de la forme $B_C = B_{C2}(0)(1 + \alpha G_S^{1/4})$.
- En régime de couplage faible (faible conductivité), les fluctuations à l'intérieur d'une flaque sont trop importantes pour pouvoir développer une supraconductivité locale. Néanmoins, le couplage permet de développer la supraconductivité du réseau. Il n'y a alors qu'un seul champ critique. Ce régime correspond à la région I de la figure 4.23. Dans ce régime le comportement du champ critique avec la conductivité du gaz est de la forme $B_C = B_{C2}(0)(1 + \alpha G_S)$.

Notons qu'en régime de couplage fort, le champ critique "intra"-flaque est lié à la taille mésoscopique des flaques. Dans le modèle XY que nous considérons ici, la supraconductivité est détruite par le déphasage du paramètre d'ordre sur la flaque. Une estimation simple de cette taille peut être réalisée en considérant que la supraconductivité d'une flaque est détruite lorsqu'un quantum de flux y pénètre, déphasant ainsi le paramètre d'ordre de 2π . Cette estimation donne $L_d \approx 100$ nm ce qui est plus grand que la longueur de cohérence supraconductrice (cf chapitre 4.1).

Ce modèle prévoit également que le champ critique de la supraconductivité se comporte différemment dans les deux régimes : en couplage fort, l'expression du champ critique est de la forme $B_C = B_{C2}(0)(1 + \alpha G_S^{1/4})$; alors qu'en couplage faible $B_C = B_{C2}(0)(1 + \alpha G_S)$. Ce passage d'une loi linéaire à une loi de puissance est remarquablement vérifié dans nos mesures, comme le montre la figure 4.26, ce qui est une forte indication de la présence de ce mécanisme dans ces interfaces.

Nous pouvons également interpréter le comportement en température des exposants critiques. En effet, dans une transition de phase quantique, la longueur de corrélation temporelle des fluctuations quantiques est coupée à température finie par les fluctuations thermiques, ce qui donne le comportement de renormalisation. La longueur de corrélation spatiale étant liée à la longueur de cohérence temporelle par $\tau \propto \xi^z$, il existe une longueur spatiale $L_{\Phi} \propto T^{-1/z}$, dite de "déphasage", limitant la cohérence spatiale en température [112].

La dépendance en température de L_{Φ} est représentée schématiquement sur la figure 4.27 (z = 1). Cette dépendance introduit naturellement deux plages de températures par



FIGURE 4.26 – Champ critique B_C en fonction de la conductivité du gaz. Les lignes pointillées montrent les lois de puissance d'exposant 1 et 1/4 correspondant respectivement aux couplages faible et fort.



FIGURE 4.27 – Représentation schématique du comportement en température de la longueur de déphasage L_{Φ} par rapport à la taille des flaques supraconductrices L_d .

comparaison avec la taille typique des flaques supraconductrices L_d :

– Au-dessus d'une certaine température T_d , $L_{\Phi} < L_d$ et la longueur de corrélation des fluctuations quantiques est confinée dans les flaques. Le système apparaît alors homogène du point de vue des fluctuations et $\nu = 2/3$ correspond à la limite propre du modèle XY.

– En dessous de la température T_d , les corrélations quantiques s'étendent sur plusieurs flaques supraconductrices. Le système apparaît donc inhomogène, et $\nu > 1$ comme attendu pour un système désordonné au sens du critère de Harris.

Notons ici que la transition quantique vue à haute température autour de B_{\times} n'est pas une transition quantique au sens strict du terme. Néanmoins, l'analyse de renormalisation montre que les fluctuations sont cohérentes avec un point critique quantique à température nulle, lequel pourrait donner lieu à une vraie transition si le système apparaissait homogène jusqu'à basse température.

L'analyse du comportement critique de la transition supraconducteur-isolant induite par le champ magnétique nous a donc permis d'établir que le gaz d'électrons à l'interface LaTiO₃/SrTiO₃ pouvait être modélisé par des flaques supraconductrices mésoscopiques couplées. Celui-ci présente également une transition de l'état supraconducteur à l'état isolant en fonction d'un autre paramètre : la tension de grille, qui sera l'objet du paragraphe suivant.

4.3.3 Transition quantique induite par la tension de grille.

La tension de grille permet également de changer l'état fondamental supraconducteur en un état isolant (ou métal localisé). La figure 4.28 présente les mesures décrites plus haut (chapitre 4.2, la tension maximale de polarisation de la grille est de 200 V dans cette série de mesure), en focalisant sur la transition. L'encart montre qu'un point de croisement apparaît à $V_{\rm G} = -15.5$ V ce qui permet *a priori* d'analyser ces données par renormalisation de taille finie comme dans le cas de la transition magnétique.



FIGURE 4.28 – Résistance en fonction de la température à différentes tensions de grille. Encart : mêmes données affichées en fonction de la tension de grille à différentes températures.

La même procédure a donc été appliquée à la transition en fonction de la tension de grille. La figure 4.29 montre le résultat de la procédure pour la gamme de température 100 mK à 150 mK. Remarquons que la gamme de température est assez restreinte et que, contrairement au champ magnétique, la tension de grille change considérablement la résistance haute température du gaz d'électrons, ce qui limite fortement le recouvrement en température des données à différentes tensions de grilles. D'autre part, la température minimale à partir de laquelle l'analyse est applicable est assez élevée par rapport à la gamme de mesure accessible. De plus, contrairement à la renormalisation haute température en champ magnétique, les exposants critiques trouvés ici sont $z\nu \approx 1.6$ (au lieu de 2/3), et nous n'avons pas trouvé de plage basse température permettant une renormalisation avec des exposants différents, comme cela avait été le cas en champ magnétique.

Ce résultat peut apparaître surprenant, notamment parce que les exposants critiques en champ magnétique et en tension de grille sont différents. En effet, des mesures sur des films de bismuth amorphes [45] ont montré les mêmes exposants en champ magnétique et en densité de porteurs (contrôlée par la tension de grille) autour de $z\nu \sim 2/3$, résultat attendu pour la transition (2+1)D XY, les deux transitions appartenant à la même classe d'uni-



FIGURE 4.29 – Renormalisation des mesures de la figure 4.28 autour du point $V_{\rm G} = -15.5$ V. Encart : loi de puissance du paramètre de renormalisation en fonction de la température.

versalité. Notons par ailleurs que la renormalisation présentée ici est faite en tension de grille et non en nombre de porteurs. Le résultat obtenu dans les interfaces $LaTiO_3/SrTiO_3$ semble donc montrer que les actions du champ magnétique et de la tension de grille sont suffisamment différentes pour que les deux transitions supraconducteur-isolant n'appartiennent pas à la même classe d'universalité.

L'action de la tension de grille est double : elle contrôle la densité totale de porteurs par effet capacitif, mais également la densité et la mobilité des HMC (ces deux dernières étant intrinsèquement liées) par la courbure de bande. Or, nous avons montré plus haut que la supraconductivité est liée à l'apparition des HMC aux tensions de grille positives. Nous allons développer ci-après des indices permettant de s'orienter vers une transition contrôlée par les fluctuations de densité de HMC plutôt que par les fluctuations supraconductrices.

Rappelons tout d'abord qu'à l'approche de la transition supraconducteur - isolant, les transitions supraconductrices deviennent incomplètes. En effet, aux tensions de grilles proches de la transition, la résistance reste finie même aux plus basses températures (figure 4.28), ce qui peut s'interpréter en terme de percolation d'îlots supraconducteurs dans une matrice résistive. Ceci nous amène à considérer une séparation de phase à basse température entre des régions où la densité de HMC est suffisante pour établir la supraconductivité et des régions non-supraconductrices. L'observation d'un exposant $\nu = 1.6$ (en considérant z = 1 comme précédemment) qui ne correspond pas aux valeurs habituelles des modèles de percolations classiques ($\nu = 4/3$) ou quantiques ($\nu = 7/3$) est surprenante. Nous avons donc envisagé la possibilité que les fluctuations dominantes soient les fluctuations de densité, et non celles du paramètre d'ordre supraconducteur. Nous nous sommes donc tournés vers une analogie avec la séparation liquide-gaz. Dans ces systèmes, la séparation de phase est supposée avoir un comportement critique régie par les fluctuations de densité, dont la dynamique à courte portée impose z = 3 [108]. L'idée est donc que les fluctuations de densité définissent un paysage de densité dynamique dans lequel se développe la supraconductivité. Le comportement dynamique des fluctuations supraconductrices serait alors "enveloppé" par la dynamique des fluctuations de densité, ce qui lui donne l'exposant critique apparent z = 3. D'après la théorie des transitions de phase quantique, la dimension effective du système est donc d + z = 5, ce qui est supérieur à la dimension critique basse $d_C = 4$ au delà de laquelle le modèle de champ moyen est supposé exact. L'exposant critique de la longueur de corrélation serait donc l'exposant de champ moyen $\nu = 1/2$ ce qui est en très bon accord avec les exposants mesurés plus haut de $z\nu = 1.6$ (figure 4.29).

Le comportement critique présent dans ce modèle est alors intrinsèquement haute température et les fluctuations s'éteignent à mesure que la séparation de phase s'établit, ce qui explique que le comportement de renormalisation ne se voit qu'au-dessus de 100 mK.

Notons que l'exposant critique dynamique z = 3 n'est *a priori* pas physiquement possible dans les fluides chargés, à cause des interactions Coulombiennes à longue portée qui imposent z = 1 [54]. Cependant, la supraconductivité étant intrinsèquement liée aux HMC et non à la densité totale de porteurs, la dynamique des fluctuations de densité de HMC n'est pas obligatoirement soumise aux interactions Coulombiennes. En effet, il est possible de faire fluctuer spatialement la densité de HMC et de LMC tout en gardant une densité totale (HMC+LMC) homogène, en particulier au seuil d'apparition des HMC. Ceux-ci étant crées par la courbure de bande, de légères variations spatiales de la forme du potentiel pourraient, à densité constante, moduler la densité et mobilité des HMC. Une origine possible de ces variations locales de courbure de bande pourrait venir des fluctuations quantiques intrinsèques à SrTiO₃ qui sont responsables du comportement particulier de sa constante diélectrique.

Cette théorie est à l'heure actuelle toujours en développement, et devrait potentiellement pouvoir se raccorder aux transitions en champ magnétique.

Conclusions sur la supraconductivité

Dans ce chapitre nous avons montré que le gaz d'électrons à l'interface $LaTiO_3/SrTiO_3$ est un supraconducteur bi-dimensionnel. Néanmoins, la plage de température présentant les fluctuations de phases caractéristiques des transitions 2D est réduite à cause des inhomogénéités du système.

L'analyse du comportement de la supraconductivité avec la tension de grille a en effet montré que celle-ci est intrinsèquement liée à la faible densité de porteurs de haute mobilité qui apparaît au bord du puits quantique confinant le gaz, ces derniers étant plus sensibles aux variations de densité. De très récentes mesures de susceptibilité locale dans la phase supraconductrice d'interfaces LaAlO₃/SrTiO₃ sont parfaitement en accord avec ces conclusions [11, 12].

De plus l'analyse de la transition supraconducteur-isolant induite par champ magnétique est en accord avec un modèle de flaques supraconductrices couplées développé récemment[113].

L'analyse de la transition induite par la tension de grille devrait se poursuivre prochainement et révéler la nature des fluctuations dans cette partie du diagramme de phase.
Chapitre 5

Couplage Spin-Orbite

Les propriétés de couplage spin-orbite aux interfaces d'oxydes font parties des intérêts majeurs pour ces systèmes. En effet, la possibilité de contrôler de manière cohérente le flux de spins dans un dispositif équivalent à un transistor à effet de champ est l'une des principales alternatives au contrôle de flux de charge utilisé actuellement. Cette électronique de spin (ou spintronique) à base d'oxydes est une candidate privilégiée pour remplacer l'électronique conventionnelle à base de semi-conducteurs.

Ce chapitre est consacré à l'étude des effets de cohérence quantique sur les propriétés de transport et magnéto-transport du gaz à basse température. Ces mesures montrent l'existence d'un fort couplage spin-orbite dans ces interfaces, contrôlable par la tension de grille.

5.1 Localisation faible

5.1.1 Rupture du comportement semi-classique à basse température

La localisation faible est un phénomène d'interférences quantiques qui se manifeste dans les systèmes métalliques aux basses températures. Sa conséquence la plus directe s'observe sur le comportement de la résistivité en fonction de la température. Les systèmes métalliques sont usuellement caractérisés par une dérivée positive de la résistance par rapport à la température, celle-ci s'expliquant par la diminution du nombre de centres de diffusion et des collisions quand la température diminue. Cependant, en fonction du désordre et de la dimensionnalité, certains systèmes métalliques présentent aux basses températures une dérivée $\partial R/\partial T$ négative, comme illustré dans la figure 5.1, qui n'est pas imputable à une augmentation des collisions.

5.1.2 Interférences quantiques et rétro-diffusion

Ce comportement est dû à la nature quantique des électrons dans le cristal. En effet, les électrons en tant qu'objets quantiques sont décrits par des fonctions d'ondes qu'il est possible de faire interférer. Dans le cas classique, la probabilité $W_{M\to N}$ d'un électron de diffuser d'un point M à un point N par des collisions élastiques est la somme du carré des amplitudes de probabilité de chaque chemin de diffusion menant de M à N. En revanche, dans le cas quantique, la même probabilité se calcule en prenant le carré de la somme des amplitudes, comme décrit par les équations suivantes [43] :



FIGURE 5.1 – Mesure de la résistivité de l'échantillon LTO-15ucAxx en fonction de la température. Aux basses températures les corrections de localisation s'ajoutent au comportement métallique classique visible à haute température, donnant ainsi une pente négative pour T proche de zéro.

$$W_{M \to N} = \begin{cases} \sum |A_i|^2 & \text{Classique} \\ |\sum A_i|^2 & \text{Quantique} \end{cases}$$
(5.1)

Dans le cas quantique, la diversité des chemins et des phases pour aller d'un point à un autre annule la plupart des termes croisés de la somme, revenant ainsi au cas classique. Néanmoins, dans le cas particulier où M = N, chaque chemin forme une boucle qu'il est possible de parcourir dans les deux sens (Figure 5.2). Ces deux chemins distincts ont la même géométrie et donc le même déphasage. Le terme croisé correspondant s'ajoute donc constructivement à la probabilité de retourner au même point. Ce phénomène de rétro-diffusion cohérente est à l'origine de la localisation faible d'Anderson : chaque électron ayant une probabilité plus importante de revenir à son point de départ, la mobilité (et donc la conductivité) s'en trouve diminuée.

5.1.3 Comportement en température

Ce phénomène d'interférence n'est possible que lorsque les collisions sont élastiques. En effet, les collisions inélastiques introduisent des déphasages entre les deux chemins empruntant la même boucle. Ces deux chemins ne peuvent donc plus interférer constructivement. La théorie de groupe de renormalisation ainsi que la dépendance en température du temps de diffusion inélastique $\tau_{\phi} \propto T^{-p}$ (p dépendant du mécanisme de collision inélastique) donnent la dépendance en température de la correction de localisation faible en



FIGURE 5.2 – Schéma illustrant les deux sens de rotation d'une boucle de diffusion interférant dans le mécanisme de localisation faible.

fonction de la dimensionnalité du système [67] :

$$\sigma_{3D}(T) = \sigma_0 + \frac{e^2}{a\pi^3\hbar} T^{p/2}$$

$$\sigma_{2D}(T) = \sigma_0 + \frac{p}{2} \frac{e^2}{\pi^2\hbar} \ln\left(\frac{T}{T_0}\right)$$

$$\sigma_{1D}(T) = \sigma_0 - \frac{ae^2}{\pi\hbar} T^{-p/2}$$
(5.2)

Nous avons mesuré la résistance de l'échantillon LTO-15ucAxx jusqu'à très basse température sous un champ magnétique suffisant pour détruire la supraconductivité (260 mT). La figure 5.3 montre que la correction de localisation est logarithmique en température, ce qui confirme le caractère bi-dimensionnel du transport électronique dans ces échantillons. Le coefficient p = 1 extrait de cette mesure montre de plus que le mécanisme de diffusion inélastique est l'interaction électron-électron, comme attendu dans les systèmes 2D en limite sale [67].

5.2 Magneto-transport

5.2.1 Magnétorésistance des métaux

Avant d'étudier l'effet du champ magnétique sur les corrections quantiques de la localisation faible, nous allons ici rappeler la variation de la résistance des métaux sous champ magnétique.

Prenons l'approche semi-classique d'un gaz d'électrons mis en mouvement par l'action d'un champ électrique[111, 72]. Au premier ordre l'application d'un champ magnétique perpendiculaire à la vitesse de dérive des électrons va créer une tension perpendiculaire



FIGURE 5.3 – Mesure de la conductivité de l'échantillon LTO-15ucAxx en fonction de la température. La courbe rouge est un ajustement par le modèle de localisation faible en 2D de l'équation (5.2) avec p = 0.97 proche de la valeur attendue pour l'interaction électron-électron en limite sale (p = 1).Un champ magnétique de 260 mT a été appliqué pour supprimer la supraconductivité.

au courant et au champ magnétique : c'est l'effet Hall.

La correction de la résistance longitudinale, appelée magnétorésistance, est du deuxième ordre en $e\tau B/m$ et peut se mettre sous la forme :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{bB^2}{1+cB^2} \tag{5.3}$$

où b et c dépendent des paramètres du gaz d'électrons (cf [111] formule (57)).

Cette théorie semble bien décrire le gaz d'électrons des interfaces LaTiO₃/SrTiO₃ à haute température lorsque celui-ci montre un comportement métallique à un seul type de porteurs (cf chapitre 3). En effet, les mesures de magnétorésistance de la figure 5.4 montrent que celle-ci est bien quadratique à bas champ magnétique. De plus, cette figure montre que la magnétorésistance normalisée est presque indépendante de la tension de grille malgré le changement de résistance (de 1.58 k Ω à +130 V à 2.17 k Ω à -130 V). Ce comportement correspond à la loi de Kohler [72] qui prévoit que la variation de magnétorésistance est une fonction du produit de la mobilité et de l'amplitude du champ, *i.e.* : $\Delta R/R = f(\mu B)$, ce qui est en accord avec le fait que la mobilité soit indépendante de la tension de la tension de grille à haute température (cf chapitre 3).

Ce modèle de magnétorésistance est bien sûr basé sur les modèles de gaz d'électrons libres où quasi-libres, et ne prennent donc pas en compte les corrections quantiques de localisation décrites au sous-chapitre précédent, et dont le comportement en champ magnétique est décrit ci-après.



FIGURE 5.4 – Mesure de la magnétorésistance de l'échantillon LTO-15ucAxx à 50 K pour différentes tensions de grilles. Le comportement est quadratique comme attendu pour la magnétorésistance d'un métal à bas champ. L'amplitude de la magnétorésistance est constante sur toute la plage de tension de grille ce qui est cohérent avec la loi de Kohler, la mobilité étant indépendante de $V_{\rm G}$ à cette température.

5.2.2 Magnétorésistance en régime de localisation faible

La localisation faible dans les milieux bi-dimensionnels désordonnés présente un comportement caractéristique vis-à-vis du champ magnétique. En effet, comme nous l'avons décrit plus haut, la localisation faible est créée par l'interférence des deux chemins de chaque boucle de rétro-diffusion. Lorsqu'un champ magnétique B est appliqué perpendiculairement au plan du système, il crée un déphasage entre les deux chemins parcourus en sens opposés de $\delta \phi = 2\pi BS/\Phi_0$, où S est la surface de la boucle et Φ_0 le quantum de flux. À faible champ magnétique, le déphasage produit entre les chemins de chaque boucle est faible et l'interférence de localisation est forte. En revanche, à mesure que le champ magnétique augmente, le déphasage des boucles devient non-négligeable et les interférences s'estompent, diminuant la contribution de localisation à la conductivité. Ainsi, un champ magnétique perpendiculaire donne une magnétorésistance négative caractéristique de la localisation puisque la correction de localisation diminue. Le traitement rigoureux de la correction de localisation sous champ magnétique est donné dans la limite diffusive à bas champ par la formule de Hikami, Larkin et Nagoaka [43] :

$$\frac{\Delta\sigma(B)}{G_0} = -\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_{tr}}{B}\right) + \Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_{\phi}}{B}\right)$$
(5.4)

où Ψ est la fonction digamma, $G_0 = e^2/2\pi^2\hbar$ est le quantum de conductance, et les champs magnétiques caractéristiques sont $B_{tr} = \hbar/4eD\tau$ (τ étant le temps inter-collisions élastiques) et $B_{\phi} = \hbar/4eD\tau_{\phi}$ (τ_{ϕ} étant le temps inter-collisions inélastiques). Notons que dans cette formule, $\Delta\sigma(B)$ représente la correction de localisation totale et non pas la magnétoconductance. La valeur $\Delta\sigma(0)$ est donc non nulle et représente la correction par rapport à la conductivité sans correction quantique. La magnétoconductance est donc donnée par $\Delta \sigma(B) - \Delta \sigma(0) = \sigma(B) - \sigma(0)$ où $\sigma(B)$ représente la conductance mesurée.

5.2.3 Influence du couplage spin-orbite

Le modèle présenté ci dessus n'est valide que pour des électrons dont le spin est figé. En effet, l'interférence des deux chemins de boucles ne peut être constructive que si l'électron ne change pas de spin au cours de la boucle. Tout mécanisme ayant une action sur le spin avec un temps caractéristique proche du temps de déphasage aura donc une influence sur le transport d'où le nom de couplage spin-orbite[43].

Il existe deux mécanismes principaux de couplage spin-orbite pouvant intervenir dans les systèmes faiblement localisés. :

- le couplage Elliot-Yafet décrit les retournements de spin dûs aux interactions avec les impuretés.
- le couplage D'Yakonov-Perel' décrit la précession du spin dans les systèmes dépourvus de centre d'inversion.
- Ce dernier est le plus important dans les systèmes bi-dimensionnels à basse température [43].

D'une manière générale, la nature intrinsèquement relativiste du champ électromagnétique implique qu'un électron en mouvement dans un champ électromagnétique dans le référentiel du laboratoire (\vec{E}, \vec{B}) , est soumis à un champ électromagnétique dans son propre référentiel $(\vec{E'}, \vec{B'})$ donné par les équations :

$$\vec{E}'_{\parallel} = \vec{E}_{\parallel}
\vec{E}'_{\perp} = \gamma(\vec{E}_{\perp} + \vec{v} \times \vec{B})
\vec{B}'_{\parallel} = \vec{B}_{\parallel}
\vec{E}'_{\perp} = \gamma(\vec{E}_{\perp} - \vec{v} \times \vec{E}/c^2)$$
(5.5)

où les signes \parallel et \perp réfèrent aux composantes parallèles et perpendiculaires à la vitesse \vec{v} de l'électron dans le référentiel initial, et $\gamma = 1/\sqrt{1 - v^2/c^2}$ est le facteur de dilatation relativiste.

Ainsi un électron dans la limite de vitesse non-relativiste soumis uniquement à un champ électrique dans le référentiel du laboratoire, est soumis à un champ magnétique dans son propre référentiel, comme décrit schématiquement dans la figure 5.5. L'interaction de type Zeeman entre le spin de l'électron et le champ magnétique dans ce référentiel induit donc un couplage entre son mouvement et son spin.

Ce mécanisme présent dans les niveaux électroniques des atomes (couplage fin), peut également être observé dans les solides ne présentant pas de centre d'inversion. Le manque de centre d'inversion peut avoir plusieurs origines : la symétrie de la maille cristalline peut en être dépourvue, c'est le mécanisme de type Dresselhaus; ou il peut être crée artificiellement dans des hétérostructures, c'est le mécanisme de type Rashba. Ce dernier introduit un terme cinétique supplémentaire dans l'Hamiltonien de la forme[18] :

$$H_{SO} = \alpha(\sigma \times \vec{k}) \cdot \vec{n_z} \tag{5.6}$$

où σ représente les matrices de Pauli, \vec{k} le quasi-vecteur d'ondes des électrons, et $\vec{n_z}$ un vecteur unitaire perpendiculaire à la surface. Le facteur α représente la force du couplage



FIGURE 5.5 – Schéma illustrant la relation entre le champ électrique dans le référentiel du laboratoire et le champ magnétique dans le référentiel d'un électron en mouvement (cas d'un électron non-relativiste).

spin-orbite et est proportionnel au champ électrique vu par les électrons.

Contrairement aux couplages conventionnels (ex : Zeeman), le couplage Rashba ne lève pas la dégénérescence de la bande électronique en deux sous-bandes de spin \uparrow ou \downarrow séparées en énergie, mais sépare la bande selon le vecteur d'onde en deux sous-bandes dont le spin est perpendiculaire à \overrightarrow{k} , comme le montre la figure 5.6.

Qualitativement, l'effet du couplage spin-orbite sur les corrections quantiques de localisation est de modifier les motifs d'interférence de certaines boucles de rétro-diffusion à basse température, lorsque le temps de collisions inélastique devient plus grand que le temps caractéristique de retournement de spin dû au couplage spin-orbite. Certaines boucles étant ignorées, la correction de localisation est plus faible. Le comportement en température de la résistance peut alors s'inverser, et la magnétorésistance à bas champ magnétique peut changer de signe, d'où la dénomination "anti"-localisation faible parfois utilisée [43].

La forme de la magnétorésistance en présence de couplage spin-orbite est considérablement plus complexe que celle de la localisation simple. Plusieurs formes mathématiques ont été proposées dans les différents régimes de diffusion et pour les différents types de couplages [43, 55, 62]. Nous avons utilisé la forme proposée par Fukuyama et Maekawa [73] dans la limite diffusive et en considérant que le couplage Zeeman est négligeable dans l'équation. Nous avons également rajouté un terme correspondant à la loi de Kohler de la magnéto-résistance conventionnelle des électrons libres. La correction de localisation prend alors la forme :

$$\frac{\Delta\sigma(B)}{G_0} = -\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_{tr}}{B}\right) + \frac{3}{2}\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_{\phi} + B_{SO}}{B}\right) - \frac{1}{2}\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{B_{\phi}}{B}\right) - A_K \frac{G_0}{\sigma(0)}B^2 \quad (5.7)$$



FIGURE 5.6 – (a) : bande parabolique dégénérée en spin. (b) Levée de dégénérescence en énergie par un mécanisme de type Zeeman. (c) Levée de dégénérescence par le couplage Rashba. (d) Vue 3D du couplage Rashba dans le plan (k_x, k_y) .

où B_{SO} représente la force de l'interaction spin-orbite. L'expression de B_{SO} en fonction des paramètres microscopiques dépend de l'origine de l'interaction.

5.2.4 Magnéto-transport mesuré en fonction de la tension de grille

Nous avons mesuré la magnéto-conductance de l'échantillon LTO-15ucBxx à différentes températures et différentes tensions de grilles ¹. Les mesures sont correctement modélisées par l'équation (5.7) comme le montrent les figures 5.7 et 5.8.

L'analyse de l'évolution des paramètres ajustés permet de dégager plusieurs points importants :

- − Le terme de Kohler est prédominant pour les tensions de grille fortement positives $(V_{\rm G} \ge +100 \text{ V})$ et rend la détermination des autres paramètres intrinsèquement non pertinente dans cette gamme de tension.
- Lorsque l'ajustement des paramètres a un sens ($V_{\rm G} \leq +80$ V) le coefficient B_{ϕ} est quasiment constant en fonction de la grille. Ceci semble indiquer que le nombre de collisions inélastiques dépend faiblement de la densité d'électrons du système, ce qui est *a priori* raisonnable. Son comportement linéaire en fonction de la température (figure 5.9) correspond au comportement attendu pour le temps de diffusion inélastique : $\tau_{\phi} \propto T^{-p}$ avec p = 1 comme déterminé indépendamment au chapitre 5.1.

^{1.} L'échantillon a d'abord subi une première polarisation à $V_{\rm G}$ =+200 V à 4.2 K comme décrit au chapitre 3.2.2.



FIGURE 5.7 – Magnétoconductance de l'échantillon LTO-15ucBxx mesurée à 2 K pour différentes tensions de grille (-200 à +80 V). Les données (ronds gris) ont été modélisées par l'ajustement des paramètres de l'équation (5.7) (lignes colorées).



FIGURE 5.8 – Magnétoconductance de l'échantillon LTO-15ucBxx mesurée à 2 K pour différentes tensions de grille (+80 à +200 V). Les données (ronds gris) ont été modélisées par l'ajustement des paramètres de l'équation (5.7) (lignes colorées).

– Le paramètre B_{SO} augmente fortement entre les grilles négatives et positives (figure 5.10), comme reporté dans les interfaces LaAlO₃/SrTiO₃ [22].

– le paramètre B_{tr} correspond aux diffusions élastiques. La formule utilisée suppose que ce terme soit bien supérieur aux autres (B_{ϕ} et B_{SO}) pour être valide. Lors de la procédure d'ajustement, ce paramètre est effectivement plus grand que la plage de champ magnétique accessible et il n'est donc pas possible d'en déterminer la valeur par cette mesure.



FIGURE 5.9 – Évolution du paramètre de collisions inélastiques en fonction de la température. Le comportement linéaire est en accord avec le processus de collisions électronélectron en limite sale donnant $\tau_{\phi} \propto T^{-p}$ avec p = 1.

La prédominance du terme de Kohler aux grilles positives n'est pas inattendue. En effet, nous avons montré au chapitre 3 que la mobilité du gaz d'électrons augmente fortement aux grilles positives, ce qui, d'après la loi de Kohler décrite précédemment, doit augmenter le pré-facteur A_K . Plus précisément, le pré-facteur A_K est proportionnel au carré de la mobilité des porteurs de haute mobilité (mis en évidence au chapitre 3) comme le montre la figure 5.11, ce qui indique que le terme de Kohler est principalement dû à la magnétorésistance "classique" des porteurs de haute mobilité présents à tension de grille positive.

Cette dissociation du paramètre de Kohler montre que les deux types de porteurs n'ont pas la même influence sur la magnéto-résistance de l'échantillon, les porteurs de faible mobilité ayant une loi de Kohler négligeable contrairement aux porteurs de haute mobilité. A l'inverse, les corrections de localisation auront principalement les propriétés des porteurs de faible mobilité. En effet, Rainer et Bergmann [99] ont montré que la magnétorésistance en régime de localisation faible de deux sous-bandes ayant différents temps caractéristiques de diffusion était équivalente à celle d'une bande unique dont le temps caractéristique est un mélange des temps caractéristiques des deux sous-bandes. Plus précisément, chaque temps caractéristique est moyenné de la façon suivante entre les deux sous-bandes :

$$\frac{N^i + N^{ii}}{\tau^{eq}} = \frac{N^i}{\tau^i} + \frac{N^{ii}}{\tau^{ii}}$$
(5.8)



FIGURE 5.10 – Évolution du paramètre de couplage spin-orbite en fonction de $V_{\rm G}$ à différentes températures.



FIGURE 5.11 – Évolution du terme de Kohler en fonction de $V_{\rm G}$ à différentes températures. Le pré-facteur A_K est proportionnel au carré de la mobilité des HMC (le terme de Kohler est négligeable à tension de grille négative). Le facteur de proportionnalité est $a_K \approx 2$.

où i et ii réfèrent aux deux sous bandes et N représente la densité d'états électroniques de chaque sous-bande. Les corrections de localisation ont donc principalement les mêmes caractéristiques que les porteurs ayant les temps caractéristiques de diffusion les plus courts, ceux-ci étant logiquement les porteurs de faible mobilité.

5.2.5 Origine du couplage spin-orbite

En régime de diffusion la forme de la magnéto-résistance dépend faiblement de la nature du couplage spin-orbite. La donnée du paramètre B_{SO} ne permet donc pas à elle seule de déterminer la nature du couplage. En revanche, chaque mécanisme prévoit différentes dépendances aux autres paramètres du système. En effet, le couplage de type Elliot-Yafet, qui est principalement un modèle de retournement de spin lors d'une collision, prévoit que le temps caractéristique τ_{SO} soit proportionnel aux temps de collision élastique τ [131]. La détermination des temps caractéristiques va donc nécessiter d'extraire le temps de collision élastique et le coefficient de diffusion.

Plusieurs choix étant possibles pour le temps de collision élastique du fait de la séparation en deux types de porteurs, nous allons prendre ici la mobilité "moyenne" $\mu_m = \sigma(0)/en_S$ correspondant à la densité totale d'électrons. Ce choix est cohérent avec la définition du coefficient de diffusion à adopter dans le cas de la localisation à plusieurs bandes [99]. Nous allons de plus prendre la masse effective de la sous-bande légère de SrTiO₃, comme décrite au chapitre 3, c'est-à-dire $m \approx 0.7m_0$. Le temps de diffusion élastique est alors donné par $\tau = \mu_m m/e$ (figure 5.12).



FIGURE 5.12 - Axe de droite : temps inter-collisions élastiques déterminé à partir de la mobilité moyenne. Axe de gauche : coefficient de diffusion déterminé à partir de la mobilité et du modèle de courbure de bande (cf texte).

Le coefficient de diffusion nécessite également l'utilisation d'un modèle de dispersion des électrons. En effet, la mesure expérimentale du coefficient de diffusion ne peut se faire avec la seule mesure de la conductivité, mais requiert la mesure directe de la densité d'états². Nous allons donc utiliser le modèle de courbure de bandes que nous avons dé-

^{2.} Une possibilité serait de mesurer la chaleur spécifique des électrons, mais celle-ci ne nous est pas

veloppé au chapitre 3 pour donner un ordre de grandeur de la densité d'états. Le modèle étant basé sur un éclatement en sous-bandes discrétisées, la densité d'état doit être moyennée par le taux d'occupation de chaque sous-bande pour tenir compte du poids statistique des sous-bandes dans la probabilité de diffusion. Dans cette approximation, le coefficient de diffusion est donné par $D \approx \mu_m \epsilon_{\rm F}/e$ où $\epsilon_{\rm F}$ est l'énergie "cinétique" moyenne pondérée par le taux d'occupation des sous-bandes, c'est-à-dire :

$$\epsilon_{\rm F} = \frac{\sum \epsilon_{\rm Fi}^2}{\sum \epsilon_{\rm Fi}} \tag{5.9}$$

où l'énergie cinétique au niveau de Fermi de chaque sous-bande d'énergie E_L^i est définie par $\epsilon_{\mathrm{F}i} = E_{\mathrm{F}} - E_L^i$.

Ces deux opérations donnent des temps caractéristiques de diffusion élastique raisonnables de l'ordre de 10^{-14} s et des coefficients de diffusion de l'ordre de quelques cm²/s (figure 5.12), ce qui permet de déduire le temps caractéristique du couplage spin-orbite $\tau_{SO} = \hbar/4eDB_{SO}$. Notons que cette détermination de *D* donne des temps τ_{SO} bien supérieurs à τ ce qui valide les hypothèses de l'équation (5.7).

Relaxation de type Elliot-Yafet



FIGURE 5.13 – Évolution du temps caractéristique spin-orbite τ_{SO} mesuré à 4.5 K avec le temps de diffusion élastique τ (à gauche) et son inverse (à droite) pour les tensions de grille entre -200 et +80 V. Un comportement quasi-affine semble apparaitre entre -200 et -20 V (en rouge sur le panneau de gauche).

La figure 5.13 (gauche) montre l'évolution de τ_{SO} avec le temps de collisions élastiques pour différentes tensions de grille. Un comportement quasi-affine peut être mis en évidence entre -200 et -20 V, mais ne correspond pas à la théorie Elliot-Yafet qui prévoit une

accessible.

relation de proportionnalité[131]. De plus, ce comportement s'arrête dans la gamme de tension où l'augmentation du τ_{SO} est la plus forte avec la tension de grille, ce qui montre que le mécanisme de type Elliot-Yafet n'est pas responsable de la croissance du paramètre B_{SO} avec $V_{\rm G}$.

Relaxation de type D'Yakonov-Perel'

Parmi les causes possibles de l'augmentation du terme de spin-orbite, la théorie de précession D'Yakonov-Perel' commune au couplage de type Dresselhaus et Rashba prévoit quant à elle que le temps caractéristique associé au couplage spin-orbite soit inversement proportionnel au temps de diffusion élastique [131]. Bien que le nombre de points expérimentaux soit limité à tension de grille positive (de 0 à 80 V), il semble que cette relation ne soit pas vérifiée dans nos expériences (figure 5.13 (droite)).

Rashba

L'hypothèse la plus probable est en fait l'augmentation du champ électrique vu par les électrons à l'interface. En effet, le terme de couplage Rashba α présent dans l'Hamiltonien est proportionnel au champ électrique F[127]. Ce dernier étant dominé à l'interface par la densité électronique, l'augmentation du nombre de porteurs par la tension de grille devrait augmenter le champ électrique près de l'interface et donc la force du couplage spin-orbite pour les porteurs qui s'y trouvent (c'est-à-dire les LMC). L'augmentation du champ électrique à l'interface peut être estimée en intégrant l'équation de Maxwell-Gauss dans la direction perpendiculaire à l'interface (z):

$$F(z=0) = \frac{e}{\epsilon(z=0)} N_{tot} + \frac{\epsilon(z=L)}{\epsilon(z=0)} F(z=L)$$
(5.10)

où F(z) est la composante suivant z du champ électrique et ϵ la constante diélectrique du SrTiO₃ (dépendante de F et donc de z). L'interface est située en z = 0 et z = Lreprésente le bout du substrat de SrTiO₃. La densité de porteurs surfacique N_{tot} doit a priori prendre en compte toutes les charges libres n_S ou piégées N_S (ce point a été évoqué au chapitre 3.3 dans le calcul de la courbure de bande), et donc $N_{tot} = n_S + N_S$.

Le paramètre $\epsilon(z = 0)$ bouge peu en fonction de la tension de grille car le champ électrique à l'interface est toujours fort. Le terme de densité est dominant par rapport au terme en z = L car plus le champ électrique loin dans le substrat augmente avec la tension de grille, plus la constante diélectrique y diminue.

Il est bien sur difficile d'estimer la densité de porteurs piégés ainsi que leur variation. Nous allons néanmoins supposer que le mécanisme de création de charges piégées dominant est le mécanisme de fuite lors d'une première polarisation positive (cf chapitre 3.2.2), et donc que N_S est constant si nous restons dans la phase réversible du contrôle par la tension de grille (ce qui est le cas dans ce chapitre).

Dans le cadre de ces hypothèses, le champ électrique à l'interface est donc une fonction affine de la densité de porteurs, c'est-à-dire : $F(z = 0) = an_S + b$.

Enfin, en présence de couplage Rashba le temps caractéristique τ_{SO} est théoriquement relié à la constante de couplage par $1/\tau_{SO} \propto \alpha^2$ [131, 22]. Le coefficient de diffusion variant peu entre -200 et +80 V (la plus grosse variation due à la mobilité des HMC est au delà de +100 V) le champ caractéristique spin-orbite varie donc comme :

$$\sqrt{B_{SO}} \propto an_S + b \tag{5.11}$$



FIGURE 5.14 – Évolution de la racine carrée du champ spin-orbite B_{SO} mesuré à 4.5 K avec la densité de porteurs du gaz d'électrons pour les tensions de grilles entre -200 et +80 V. La droite pointillée rouge est un guide visuel.

La figure 5.14 montre le comportement de la racine carrée de B_{SO} en fonction de la densité de porteurs. Le comportement quasi-affine semble en accord avec l'équation (5.11), ce qui montre que la présence d'un couplage de type Rashba est la plus probable dans ces interfaces.

Notons cependant que de nombreuses approximations ont été faites et qu'une analyse quantitative de la variation de B_{SO} n'a pas été effectuée.

5.3 Dépendance angulaire de la magnétorésistance

La dépendance angulaire de la magnétorésistance peut potentiellement révéler de précieuses informations sur la nature et l'importance des différentes composantes du couplage spin-orbite. En effet, la théorie de la magnéto-résistance en régime de localisation faible présentée ci-dessus est essentiellement orbitalaire, c'est-à-dire que les différentes contributions ne sont sensibles qu'à un champ magnétique perpendiculaire au plan du gaz d'électrons. Néanmoins, certaines contributions ne dépendent pas de l'orientation du champ magnétique (comme par exemple l'effet Zeeman) ou présentent une dépendance particulière. Le couplage Rashba associé à l'effet Zeeman fait potentiellement partie de la deuxième catégorie, l'éclatement en deux sous-bandes de spins étant alors dépendant de l'amplitude et de l'orientation du champ par rapport au plan du gaz d'électrons, et également par rapport au sens du courant[9, 40].



FIGURE 5.15 – Schéma décrivant la géométrie de mesure de la magnétorésistance en fonction de l'angle entre le champ magnétique et le plan de l'échantillon. Lorsque le champ magnétique est dans le plan celui-ci est parallèle au courant traversant l'échantillon.

Nous avons mesuré la magnétorésistance de l'échantillon LTO-15ucBxx en fonction de l'angle entre le champ magnétique et le plan de l'interface, comme décrit sur le schéma de la figure 5.15 pour différentes tensions de grille. Les figures 5.16 et 5.17 (panneaux de gauche) montrent les mesures pour deux tensions de grille :

- à -120 V la magnétoconductance perpendiculaire est dominée par la localisation faible avec peu de couplage spin-orbite : elle est donc positive. La magnétoconductance parallèle est négative à bas champ.
- à +160 V la magnétoconductance perpendiculaire est dominée par la loi de Kohler des HMC et est négative. La magnétoconductance parallèle est également négative à bas champ mais sa courbure est inversée.

Ces mesures mettent en évidence deux contributions à la magnétorésistance : une contribution dépendante de la composante perpendiculaire à l'interface du champ magnétique, que nous appellerons ci-après "orbitalaire"; et une contribution indépendante de l'orientation du champ magnétique³, appelée ci-après "isotrope". En effet, ces mesures peuvent se mettre sous la forme :

$$\Delta\sigma(B,\theta) = \Delta\sigma_{\rm orb} \left(B\cos\theta\right) + \Delta\sigma_{\rm iso} \left(B\right) \tag{5.12}$$

comme le montre les panneaux de droite des figures 5.16 et 5.17. Dans ces figures la partie "isotrope" mesurée à $\theta = 90$ ° est retirée des mesures aux autres angles, la différence est alors une fonction de la composante perpendiculaire au plan du champ magnétique

^{3.} Par rapport aux orientations accessibles dans cette expérience. Il est en effet possible que cette contribution puisse avoir une dépendance par rapport à l'orientation du champ dans le plan de l'interface, mais cette expérience n'a pas encore été faite sur ces échantillons.



FIGURE 5.16 – Gauche : magnétoconductance en fonction du champ magnétique mesurée à différents angles pour $V_{\rm G} = -120$ V. Droite : partie orbitale de la magnétoconductance en fonction de la composante perpendiculaire du champ magnétique.



FIGURE 5.17 – Gauche : magnétoconductance en fonction du champ magnétique mesurée à différents angles pour $V_{\rm G} = +160$ V. Droite : partie orbitale de la magnétoconductance en fonction de la composante perpendiculaire du champ magnétique.

 $B\cos(\theta)$, en accord avec l'équation (5.12).

Nous avons également vérifié numériquement que ces mesures sont incompatibles avec la somme de deux contributions dont l'une serait sensible à la composante perpendiculaire et l'autre à la composante parallèle du champ, c'est-à-dire de la forme : $\Delta\sigma(B,\theta) =$

$\Delta \sigma_{\perp} (B \cos \theta)) + \Delta \sigma_{\parallel} (B \sin \theta))$.

Notons ici que la contribution isotrope n'est *a priori* pas incluse dans les théories utilisées pour analyser les courbes de magnétorésistance de la section précédente, mais est en général faible devant la contribution perpendiculaire, ce qui laisse les résultats présentés plus haut essentiellement inchangés.

Les contributions "isotropes" ont été mesurées à plus haut champ et récapitulées dans la figure 5.18. Dans toute la gamme de tension de grille, la magnétoconductance parallèle est négative à bas champ avec une courbure positive. La magnétoconductance devient ensuite positive à plus haut champ.



FIGURE 5.18 – Magnétoconductance mesurée avec le champ magnétique parallèle au courant de mesure à différentes tensions de grille.

Nous n'avons pas de modèle expliquant la forme particulière de cette forme de contribution isotrope à ce jour. Néanmoins, ces données semblent compatibles avec la magnétorésistance mesurée en champ magnétique parallèle sur l'interface LaAlO₃/SrTiO₃ [9]. En effet, ces mesures prises à basse température montre que la résistance peut chuter de 60% lorsqu'un champ magnétique de 14 T est appliqué parallèlement au courant. Ce champ étant beaucoup plus fort que celui appliqué dans nos expériences, les deux variations sont difficiles à comparer. De plus, l'analyse de ces données montre que la variation de la magnéto-résistance dans le plan en fonction de l'angle avec le courant est également nécessaire à l'interprétation en terme de couplage spin-orbite Rashba[37]. Une expérience de ce type est prévue pour les prochains mois.

5.4 Résumé et conclusions sur la magnétorésistance

Les mesures de magnétorésistances à basse température sont un puissant outil pour mesurer l'impact des interactions spin-orbite sur le transport électronique. Néanmoins les mesures en champ perpendiculaire sont ici rendues difficiles par l'apparition des porteurs de haute mobilité dont la magnétorésistance est largement dominante à tension de grille positive. Nous pouvons cependant tirer plusieurs conclusions de ces mesures :

- Le couplage spin-orbite augmente fortement depuis les tensions de grille négatives jusqu'à environ +100 V (il n'est pas possible d'en déterminer la variation au-delà par cette mesure).
- Cette augmentation n'est pas cohérente avec un mécanisme de relaxation type Elliot-Yafet ou D'Yakonov-Perel'.
- Elle est plus probablement liée à l'augmentation du champ électrique à l'interface (par l'augmentation du nombre de porteurs) et est donc de type Rashba.

Les mesures en fonction de l'orientation du champ magnétique sont également très utiles, car elles permettent de mettre en évidence différentes contributions. En effet, nous avons montré qu'une contribution indépendante de l'orientation du champ magnétique était superposée à la contribution orbitale classique de localisation faible.

L'analyse de cette composante est aujourd'hui incomplète mais devrait se poursuivre au sein du laboratoire avec notamment une expérience complémentaire de magnétorésistance dans le plan en fonction de l'orientation du champ magnétique par rapport au courant parcourant l'échantillon. Ces nouvelles analyses devraient permettre de donner plus d'informations sur le couplage spin-orbite et les interactions présentent à ces interfaces.

Conclusions et Perspectives

Nous avons présenté dans ce manuscrit l'étude du transport et magnéto-transport électronique du gaz d'électrons bi-dimensionnel créé à l'interface entre quelques monocouches de LaTiO₃ déposées épitaxialement sur un substrat de $SrTiO_3$.

Ces mesures ont révélé que le gaz est confiné sur quelques nanomètres dans un puits quantique, en accord avec un modèle de courbure de la bande du $SrTiO_3$ que nous avons développé. Le contrôle du remplissage et de la forme du puits quantique par une électrode de grille à l'arrière du substrat de $SrTiO_3$ a montré que la majorité des électrons peuplant les sous-bandes les plus profondes et donc les plus proches de l'interface ont une mobilité électronique relativement faible. Les électrons minoritaires peuplant les sous-bandes plus hautes en énergie peuvent s'étendre plus loin dans le substrat ce qui leur confère une mobilité plus grande. Ces sous-bandes ne sont peuplées qu'à tension de grille positive, lorsque la densité d'électrons est suffisamment grande et la forme du puits suffisamment évasée. Cette différenciation des porteurs électroniques à l'interface s'est avérée essentielle dans l'étude des propriétés électroniques du gaz.

La supraconductivité à l'interface $LaTiO_3/SrTiO_3$ a un caractère bi-dimensionnel, et devrait donc entrer dans la catégorie des transitions BKT. Néanmoins, l'analyse de la para-conductivité dans l'état normal semble montrer que les fluctuations de phases sont noyées par les inhomogénéités à l'interface. De plus, le contrôle de la supraconductivité par la tension de grille a révélé que la supraconductivité est intrinsèquement liée aux porteurs minoritaires de haute mobilité s'étendant loin dans le substrat de $SrTiO_3$. L'étude du possible couplage entre les deux types de porteurs dans la phase supraconductrice est toujours en cours d'étude, mais ce résultat est cohérent avec la récente mesure de densité superfluide à l'interface LaAlO₃/SrTiO₃ [12]. L'étude de la transition de phase quantique supraconducteur-isolant induite par champ magnétique est cohérente avec un modèle de flaques supraconductrices couplées par un métal. Ce modèle explique le comportement critique observé en fonction de la conductivité du gaz et également en fonction de la température. En effet, la taille de la cohérence spatiale des fluctuations critiques doit être comparée à la taille des flaques supraconductrices en fonction de la température. Cette comparaison détermine si le comportement critique est propre ou inhomogène, en accord avec le critère de Harris. La transition induite par la tension de grille a également révélé un comportement critique différent de la transition en champ magnétique. Le lien entre les deux transitions et le modèle de flaques est encore l'objet de discussions.

Le transport sous champ magnétique à basse température dans le régime de localisation faible a montré l'existence d'un fort couplage spin-orbite modulable par la tension de grille. Cependant, l'apparition des porteurs de haute mobilité à tension de grille positive rend cette étude difficile car ces derniers ont une mobilité plus grande et donc une magnétoconductance classique en loi de Kohler. Nous pouvons néanmoins exclure les mécanismes de couplage spin-orbite liés aux impuretés magnétiques ou au spin-orbite intrinsèque du titanate de strontium. Un couplage de type Rashba est en effet attendu dans ce type de puits asymétrique, ce qui semble cohérent avec l'augmentation du champ électrique à l'interface avec la densité de porteurs. Les mesures de magnétorésistance en fonction de l'angle entre le champ et l'interface ont montré l'existence d'une composante indépendante de l'orientation superposée à la composante orbitale. D'autres mesures en fonction de l'orientation du champ magnétique dans le plan devraient permettre d'élucider l'origine de cette composante et son lien avec le couplage Rashba.

Ces résultats forment une base cohérente pour la compréhension des phénomènes présents dans l'interface $LaTiO_3/SrTiO_3$, et certains résultats se sont révélés communs avec l'interface $LaAlO_3/SrTiO_3$. Quelques analyses seront approfondis par de nouvelles expériences et théories dans les mois à venir. Les axes de recherche pour la suite de cette thèse tendront à réduire la taille des systèmes étudiés. En effet, de par son caractère bidimensionnel et modulable par la tension de grille, ce système semble idéal pour réaliser des expériences à la frontière entre la physique des électrons corrélés et la physique mésoscopique.

L'élaboration de dispositifs de taille sub-micrométrique voire nanométrique est en cours de développement au laboratoire sur des couches de $LaAlO_3/SrTiO_3$. Ces travaux sont en partie basés sur les techniques de lithographie et d'implantation ionique développées au sein de l'équipe par J. Lesueur et N. Bergeal en collaboration avec le Laboratoire de Photonique et Nanostructures (LPN) pour la création de jonction Josephson dans les supraconducteurs à haute température critique. Le transfert de ces technologies vers les interfaces du titanate de strontium devrait prochainement permettre la fabrication de nanostructures avec grilles multiples et des dispositifs de type point de contact quantique, en confinant le gaz d'électrons dans la dimension latérale de manière analogue aux interfaces de semi-conducteurs.

Bibliographie

- T Ando, A B Fowler, and F Stern. Electronic properties of two-dimensional systems. *Rev. Mod. Phys.*, 54 :437–672, 1982.
- [2] J Appel. Superconductivity in pseudoferroelectrics. Phys. Rev. Lett., 17:1045–1048, 1966.
- [3] R Arras, V G Ruiz, W E Pickett, and R Pentcheva. Tuning the two-dimensional electron gas at the LaAlO₃/SrTiO₃(001) interface by metallic contacts. *Phys. Rev.* B, 85 :125404, 2012.
- [4] L G Aslamasov and A I Larkin. The influence of fluctuation pairing of electrons on the conductivity of normal metal. *Phys. Lett. A*, 26(6):238 – 239, 1968.
- [5] H Aubin, C A Marrache-Kikuchi, A Pourret, K Behnia, L Bergé, L Dumoulin, and J Lesueur. Magnetic-field-induced quantum superconductor-insulator transition in Nb_{0.15}Si_{0.85}. *Phys. Rev. B*, 73 :094521, 2006.
- [6] M Basletic, J L Maurice, C Carretero, G Herranz, O Copie, M Bibes, E Jacquet, K Bouzehouane, S Fusil, and A Barthelemy. Mapping the spatial distribution of charge carriers in LaAlO₃/SrTiO₃ heterostructures. *Nature Materials*, 7(8) :621– 625, 2007.
- [7] C Bell, S Harashima, Y Kozuka, M Kim, B G Kim, Y Hikita, and H Y Hwang. Dominant mobility modulation by the electric field effect at the LaAlO₃/SrTiO₃ interface. *Phys. Rev. Lett.*, 103(22) :226802, 2009.
- [8] M Ben Shalom, M Sachs, D Rakhmilevitch, A Palevski, and Y Dagan. Tuning spin-orbit coupling and superconductivity at the SrTiO₃/LaAlO₃ interface : A magnetotransport study. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :126802, 2010.
- [9] M Ben Shalom, C W Tai, Y Lereah, M Sachs, E Levy, D Rakhmilevitch, A Palevski, and Y Dagan. Anisotropic magnetotransport at the srtio₃/laalo₃ interface. *Phys. Rev. B*, 80 :140403, 2009.
- [10] L Benfatto, C Castellani, and T Giamarchi. Broadening of the berezinskii-kosterlitzthouless superconducting transition by inhomogeneity and finite-size effects. *Phys. Rev. B*, 80 :214506, 2009.
- [11] J A Bert, B Kalisky, C Bell, M Kim, Y Hikita, H Y Hwang, and K A Moler. Direct imaging of the coexistence of ferromagnetism and superconductivity at the LaAlO₃/SrTiO₃ interface. *Nature Phys.*, 7(September) :767–771, 2011.
- [12] J A Bert, K C Nowack, B Kalisky, H Noad, J R Kirtley, C Bell, H K Sato, M Hosoda, Y Hikita, H Y Hwang, and K A Moler. Gate-tuned superfluid density at the superconducting LaAlO₃/SrTiO₃ interface. *Phys. Rev. B*, 86 :060503, 2012.
- [13] G Binnig, A Baratoff, H E Hoenig, and J G Bednorz. Two-band superconductivity in Nb-doped SrTiO₃. *Phys. Rev. Lett.*, 45 :1352–1355, 1980.

- [14] J Biscaras, N Bergeal, A Kushwaha, T Wolf, A Rastogi, R C Budhani, and J Lesueur. Two-dimensional superconductivity at a mott insulator/band insulator interface LaTiO₃/SrTiO₃. Nature Communications, 1(7) :89, 2010.
- [15] R Bistritzer, G Khalsa, and A H MacDonald. Electronic structure of doped d^0 perovskite semiconductors. *Phys. Rev. B*, 83 :115114, 2011.
- [16] J Blatt. Practical points concerning the solution of the schrödinger equation. Journal of Computational Phys., 1(3):382–396, 1967.
- [17] A Brinkman, M Huijben, M Van Zalk, J Huijben, U Zeitler, J C Maan, W G Van Der Wiel, G Rijnders, D H A Blank, and H Hilgenkamp. Magnetic effects at the interface between non-magnetic oxides. *Nature Materials*, 6(7) :493–6, 2007.
- [18] Y A Bychkov and E I Rashba. Oscillatory effects and the magnetic susceptibility of carriers in inversion layers. *Journal of Phys. C : Solid State Phys.*, 17(33) :6039, 1984.
- [19] P Calvani, M Capizzi, F Donato, S Lupi, P Maselli, and D Peschiaroli. Observation of a midinfrared band in LaTiO_{3-y}. *Phys. Rev. B*, 47 :8917–8922, 1993.
- [20] S Caprara, C Di Castro, and M Grilli. Magnetic and charge-transfer phase separation in the three-band t-J model. Phys. Rev. B, 51 :9286–9293, 1995.
- [21] S Caprara, M Grilli, L Benfatto, and C Castellani. Effective medium theory for superconducting layers : A systematic analysis including space correlation effects. *Phys. Rev. B*, 84 :014514, 2011.
- [22] A D Caviglia, M Gabay, S Gariglio, N Reyren, C Cancellieri, and J-M Triscone. Tunable rashba spin-orbit interaction at oxide interfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :126803, 2010.
- [23] A D Caviglia, S Gariglio, N Reyren, D Jaccard, T Schneider, M Gabay, S Thiel, G Hammerl, J Mannhart, and J-M Triscone. Electric field control of the LaAlO₃/SrTiO₃ interface ground state. *Nature*, 456(7222) :624–627, 2008.
- [24] B S Chandrasekhar. A note on the maximum critical field of high-field superconductors. Appl. Phys. Lett., 1(1):7–8, 1962.
- [25] A M Clogston. Upper limit for the critical field in hard superconductors. Phys. Rev. Lett., 9 :266–267, 1962.
- [26] O Copie, V Garcia, C Bödefeld, C Carrétéro, M Bibes, G Herranz, E Jacquet, J L Maurice, B Vinter, S Fusil, K Bouzehouane, H Jaffrès, and A Barthélémy. Towards two-dimensional metallic behavior at LaAlO₃/SrTiO₃ interfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :216804, 2009.
- [27] M Cwik, T Lorenz, J Baier, R Müller, G André, F Bourée, F Lichtenberg, A Freimuth, R Schmitz, E Müller-Hartmann, and M Braden. Crystal and magnetic structure of LaTiO₃ : Evidence for nondegenerate t_{2g} orbitals. *Phys. Rev. B*, 68 :060401, 2003.
- [28] D S Deak, F Silly, D T Newell, and M R Castell. Ordering of TiO₂-based nanostructures on SrTiO₃(001) surfaces. *The Journal of Phys. Chemistry B*, 110(18) :9246– 9251, 2006.
- [29] D A Dikin, M Mehta, C W Bark, C M Folkman, C B Eom, and V Chandrasekhar. Coexistence of superconductivity and ferromagnetism in two dimensions. *Phys. Rev. Lett.*, 107(5) :056802, 2011.

- [30] A Dubroka, M Rössle, K W Kim, V K Malik, L Schultz, S Thiel, C W Schneider, J Mannhart, G Herranz, O Copie, M Bibes, A Barthélémy, and C Bernhard. Dynamical response and confinement of the electrons at the LaAlO₃/SrTiO₃ interface. *Phys. Rev. Lett.*, 104(15) :156807, 2010.
- [31] M V Feigel'man, A I Larkin, and M A Skvortsov. Quantum superconductor-metal transition in a proximity array. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :1869–1872, 2001.
- [32] A M Finkel'shtein. Superconducting transition temperature in amorphous films. JETP Lett. (Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.), 45(1):46–49, 1987.
- [33] M P A Fisher. Quantum phase transitions in disordered two-dimensional superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 65 :923–926, 1990.
- [34] M P A Fisher, G Grinstein, and S M Girvin. Presence of quantum diffusion in two dimensions : Universal resistance at the superconductor-insulator transition. *Phys. Rev. Lett.*, 64 :587–590, 1990.
- [35] T Fix, F Schoofs, Z Bi, A Chen, H Wang, J L MacManus-Driscoll, and M G Blamire. Influence of SrTiO₃ substrate miscut angle on the transport properties of LaAlO₃/SrTiO₃ interfaces. *Appl. Phys. Lett.*, 99(2) :022103, 2011.
- [36] T Fix, F Schoofs, J L MacManus-Driscoll, and M G Blamire. Charge confinement and doping at LaAlO₃/SrTiO₃ interfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :166802, 2009.
- [37] E Flekser, M Ben Shalom, M Kim, C Bell, Y Hikita, H Y Hwang, and Y Dagan. Magnetotransport effects in polar versus non-polar SrTiO₃ based heterostructures. *ArXiv*, page 1207.6057, 2012.
- [38] H P R Frederikse and W R Hosler. Hall mobility in SrTiO₃. Phys. Rev., 161 :822– 827, 1967.
- [39] P A Frigeri, D F Agterberg, A Koga, and M Sigrist. Superconductivity without inversion symmetry : MnSi versus CePt₃Si. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :097001, 2004.
- [40] A Fête, S Gariglio, A D Caviglia, J-M Triscone, and M Gabay. Rashba induced magnetoconductance oscillations in the LaAlO₃-SrTiO₃ heterostructure. ArXiv, page 1203.5239, 2012.
- [41] A Fujimori. Electronic structure of metallic oxides : band-gap closure and valence control. Journal of Phys. Chemistry of Solids, 53(12) :1595–1602, 1992.
- [42] S Gariglio, N Reyren, A D Caviglia, and J-M Triscone. Superconductivity at the LaAlO₃/SrTiO₃ interface. Journal of Phys. : Condensed Matter, 21(16) :164213, 2009.
- [43] A V Germanenko. Spin effects and quantum corrections to the conductivity of two-dimensional systems. Low Temperature Phys., 35(1):24–31, 2009.
- [44] F Gervais, J Servoin, A Baratoff, J G Bednorz, and G Binnig. Temperature dependence of plasmons in Nb-doped LaTiO₃. Phys. Rev. B, 47 :8187–8194, 1993.
- [45] A M Goldman. Superconductor-insulator transitions of quench-condensed films. Low Temperature Phys., 36(10) :884, 2010.
- [46] L P Gor'kov and E I Rashba. Superconducting 2d system with lifted spin degeneracy : Mixed singlet-triplet state. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :037004, 2001.
- [47] B I Halperin and D R Nelson. Resistive transition in superconducting films. Journal of Low Temperature Phys., 36(5-6):599–616, 1979.
- [48] N Hamada. Electronic band structure of LaNiO₃. Journal of Phys. and Chemistry of Solids, 54(10) :1157 – 1160, 1993.

- [49] A B Harris. Effect of random defects on the critical behaviour of ising models. Journal of Phys. C: Solid State Phys., 7(9) :1671, 1974.
- [50] W A Harrison, E A Kraut, J R Waldrop, and R W Grant. Polar heterojunction interfaces. *Phys. Rev. B*, 18:4402–4410, 1978.
- [51] S Havelia, K R Balasubramaniam, S Spurgeon, F Cormack, and P A Salvador. Growth of La₂Ti₂O₇ and LaTiO₃ thin films using pulsed laser deposition. *Journal* of Crystal Growth, 310(7?9) :1985 – 1990, 2008.
- [52] M W Haverkort, Z Hu, A Tanaka, G Ghiringhelli, H Roth, M Cwik, T Lorenz, C Schüßler-Langeheine, S V Streltsov, A S Mylnikova, V I Anisimov, C de Nadai, N B Brookes, H H Hsieh, H-J Lin, C T Chen, T Mizokawa, Y Taguchi, Y Tokura, D I Khomskii, and L H Tjeng. Determination of the orbital moment and crystal-field splitting in LaTiO₃. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :056401, 2005.
- [53] J Hemberger, P Lunkenheimer, R Viana, R Bohmer, and A Loidl. Electric-fielddependent dielectric-constant and nonlinear susceptibility in SrTiO₃. *Phys. Rev. B*, 52(18) :13159–13162, 1995.
- [54] I F Herbut. Quantum critical points with the coulomb interaction and the dynamical exponent : When and why z = 1. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :137004, 2001.
- [55] S Hikami, A I Larkin, and Y Nagaoka. Spin-orbit interaction and magnetoresistance in the two dimensional random system. *Progress of Theoretical Phys.*, 63(2):707– 710, 1980.
- [56] A Hüller. An electronic mechanism for the hole-hole attraction in ceramic superconductors. Zeitschrift für Physik B Condensed Matter, 76 :445–449, 1989. 10.1007/BF01307893.
- [57] P C Hohenberg. Existence of long-range order in one and two dimensions. *Phys. Rev.*, 158 :383–386, 1967.
- [58] Y Hotta, T Susaki, and H Y Hwang. Polar discontinuity doping of the LaVO₃/SrTiO₃ interface. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :236805, 2007.
- [59] C M Hurd. The Hall effect in metals and alloys, volume 12. Plenum Press, 1972.
- [60] J S Kim, S S A Seo, M F Chisholm, R K Kremer, H U Habermeier, B Keimer, and H N Lee. Nonlinear hall effect and multichannel conduction in LaTiO₃/SrTiO₃ superlattices. *Phys. Rev. B*, 82(20) :201407, 2010.
- [61] M Kim, C Bell, Y Kozuka, M Kurita, Y Hikita, and H Y Hwang. Fermi surface and superconductivity in low-density high-mobility δ -doped SrTiO₃. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :106801, 2011.
- [62] W Knap, C Skierbiszewski, A Zduniak, E Litwin-Staszewska, D Bertho, F Kobbi, J L Robert, G E Pikus, F G Pikus, S V Iordanskii, V Mosser, K Zekentes, and Y B Lyanda-Geller. Weak antilocalization and spin precession in quantum wells. *Phys. Rev. B*, 53 :3912–3924, 1996.
- [63] C S Koonce and M L Cohen. Theory of superconducting semiconductors and semimetals. Phys. Rev., 177:707–719, 1969.
- [64] C S Koonce, M L Cohen, J F Schooley, W R Hosler, and E R Pfeiffer. Superconducting transition temperatures of semiconducting SrTiO₃. *Phys. Rev.*, 163 :380–390, 1967.
- [65] G Koster, B L Kropman, G J H M Rijnders, D H A Blank, and H Rogalla. Quasiideal strontium titanate crystal surfaces through formation of strontium hydroxide. *Appl. Phys. Lett.*, 73(20) :2920–2922, 1998.

- [66] J M Kosterlitz and D J Thouless. Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems. Journal of Phys. C: Solid State Phys., 6(7):1181, 1973.
- [67] P A Lee and T V Ramakrishnan. Disordered electronic systems. Rev. Mod. Phys., 57 :287–337, 1985.
- [68] L Li, C Richter, J Mannhart, and R C Ashoori. Coexistence of magnetic order and two-dimensional superconductivity at LaAlO₃/SrTiO₃ interfaces. *Nature Phys.*, 7(September) :10, 2011.
- [69] Y-H Li and S Teitel. Finite-size scaling study of the three-dimensional classical XY model. Phys. Rev. B, 40 :9122–9125, 1989.
- [70] S-G Lim, S Kriventsov, T N Jackson, J H Haeni, D G Schlom, A M Balbashov, R Uecker, P Reiche, J L Freeouf, and G Lucovsky. Dielectric functions and optical bandgaps of high-k dielectrics for metal-oxide-semiconductor field-effect transistors by far ultraviolet spectroscopic ellipsometry. *Journal of Appl. Phys.*, 91(7) :4500, 2002.
- [71] F W Lytle. X-ray diffractometry of low-temperature phase transformations in strontium titanate. Journal of Appl. Phys., 35(7):2212–2215, 1964.
- [72] D K C Macdonald and K Sarginson. Galvanomagnetic effects in conductors. Reports on Progress in Phys., 15(1):249, 1952.
- [73] S Maekawa and H Fukuyama. Magnetoresistance in two-dimensional disordered systems : Effects of zeeman splitting and spin-orbit scattering. *Journal of the Phys. Society of Japan*, 50(8) :2516–2524, 1981.
- [74] N Marković, C Christiansen, and A M Goldman. Thickness-magnetic field phase diagram at the superconductor-insulator transition in 2d. *Phys. Rev. Lett.*, 81:5217– 5220, 1998.
- [75] L F Mattheis. Energy-bands for KNiF₃, SrTiO₃, KMoO₃, and KTaO₃. *Phys. Rev.* B, 6(12) :4718–4740, 1972.
- [76] W Meevasana, P D C King, R H He, S-K Mo, M Hashimoto, A Tamai, P Songsiriritthigul, F Baumberger, and Z-X Shen. Creation and control of a two-dimensional electron liquid at the bare SrTiO₃ surface. *Nature Materials*, 10 :114–118, 2011.
- [77] G I Meijer, W Henggeler, J Brown, O S Becker, J G Bednorz, C Rossel, and P Wachter. Reduction of ordered moment in strongly correlated LaTiO_{3+ δ} upon band filling. *Phys. Rev. B*, 59 :11832–11836, 1999.
- [78] N D Mermin and H Wagner. Absence of ferromagnetism or antiferromagnetism in one- or two-dimensional isotropic heisenberg models. *Phys. Rev. Lett.*, 17 :1133– 1136, 1966.
- [79] K Michaeli, A C Potter, and P A Lee. Superconducting and ferromagnetic phases in SrTiO₃/LaAlO₃ oxide interface structures : Possibility of finite momentum pairing. *Phys. Rev. Lett.*, 108 :117003, 2012.
- [80] S Miyasaka, T Okuda, and Y Tokura. Critical behavior of metal-insulator transition in $La_{1-x}Sr_xVO_3$. *Phys. Rev. Lett.*, 85:5388–5391, 2000.
- [81] P Moetakef, T A Cain, D G Ouellette, J Y Zhang, D O Klenov, A Janotti, C G Van De Walle, S Rajan, S J Allen, and S Stemmer. Electrostatic carrier doping of GdTiO₃/SrTiO₃ interfaces. *Appl. Phys. Lett.*, 99(23) :232116, 2011.
- [82] P Moetakef, J Y Zhang, A Kozhanov, B Jalan, R Seshadri, S J Allen, and S Stemmer. Transport in ferromagnetic GdTiO₃/SrTiO₃ heterostructures. *Appl. Phys. Lett.*, 98(11) :112110, 2011.

- [83] K A Müller and H Burkard. SrTiO₃ : An intrinsic quantum paraelectric below 4 k. *Phys. Rev. B*, 19 :3593–3602, 1979.
- [84] N Nakagawa, H Y Hwang, and D A Muller. Why some interfaces cannot be sharp. *Nature Materials*, 5(3) :12, 2005.
- [85] D R Nelson and J M Kosterlitz. Universal jump in the superfluid density of twodimensional superfluids. *Phys. Rev. Lett.*, 39 :1201–1205, 1977.
- [86] M C Neville, C A Mead, and B Hoeneise. Permittivity of strontium-titanate. J Appl Phys, 43(5) :2124–&, 1972.
- [87] J H Ngai, Y Segal, D Su, Y Zhu, F J Walker, S Ismail-Beigi, K Le Hur, and C H Ahn. Electric field tuned crossover from classical to weakly localized quantum transport in electron doped SrTiO₃. *Phys. Rev. B*, 81 :241307, 2010.
- [88] J H Ngai, Y Segal, F J Walker, and C H Ahn. Electrostatic modulation of anisotropic magnetotransport in Ar⁺-irradiated SrTiO₃ : Effects of boundary scattering. *Phys. Rev. B*, 83 :045304, 2011.
- [89] K Ogisu, A Ishikawa, Y Shimodaira, T Takata, H Kobayashi, and K Domen. Electronic band structures and photochemical properties of La/Ga-based oxysulfides. *Journal of Phys. Chemistry B*, 112(31) :11978–11984, 2008.
- [90] A Ohtomo and H Y Hwang. A high-mobility electron gas at the LaAlO₃/SrTiO₃ heterointerface. *Nature*, 427(6973) :423–426, 2004.
- [91] A Ohtomo, D A Muller, J L Grazul, and H Y Hwang. Artificial charge-modulationin atomic-scale perovskite titanate superlattices. *Nature*, 419(6905) :378–380, 2002.
- [92] A Ohtomo, D A Muller, J L Grazul, and H Y Hwang. Epitaxial growth and electronic structure of LaTiO_x films. *Appl. Phys. Lett.*, 80(21) :3922, 2002.
- [93] S Okamoto and A J Millis. Electronic reconstruction at an interface between a mott insulator and a band insulator. *Nature*, 428(6983) :630–633, 2004.
- [94] Y Okimoto, T Katsufuji, Y Okada, T Arima, and Y Tokura. Optical spectra in $(La, Y)TiO_3$: Variation of mott-hubbard gap features with change of electron correlation and band filling. *Phys. Rev. B*, 51 :9581–9588, 1995.
- [95] T. Okuda, K. Nakanishi, S. Miyasaka, and Y. Tokura. Large thermoelectric response of metallic perovskites : $Sr_{1-x}La_xTiO_3$. *Phys. Rev. B*, 63 :113104, 2001.
- [96] T Ostapchuk, J Petzelt, V Železný, A Pashkin, J Pokorný, I Drbohlav, R Kužel, D Rafaja, B P Gorshunov, M Dressel, C Ohly, S Hoffmann-Eifert, and R Waser. Origin of soft-mode stiffening and reduced dielectric response in SrTiO₃ thin films. *Phys. Rev. B*, 66 :235406, 2002.
- [97] R Pentcheva, M Huijben, K Otte, W E Pickett, J E Kleibeuker, J Huijben, H Boschker, D Kockmann, W Siemons, G Koster, H J W Zandvliet, G Rijnders, D H A Blank, H Hilgenkamp, and A Brinkman. Parallel electron-hole bilayer conductivity from electronic interface reconstruction. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :166804, 2010.
- [98] P Perna, D Maccariello, M Radovic, U Scotti Di Uccio, I Pallecchi, M Codda, D Marre, C Cantoni, J Gazquez, M Varela, and et al. Conducting interfaces between band insulating oxides : The LaGaO₃/SrTiO₃ heterostructure. Appl. Phys. Lett., 97(15) :152111, 2010.
- [99] D Rainer and G Bergmann. Multiband effects in weak localization. Phys. Rev. B, 32:3522–3529, 1985.
- [100] D W Reagor and V Y Butko. Highly conductive nanolayers on strontium titanate produced by preferential ion-beam etching. *Nature Materials*, 4(8):593–596, 2005.

- [101] N Reyren. Oxide superconducting thin films and interfaces studied using field effect. PhD thesis, Faculté des Sciences de l'Université de Genève, 2009.
- [102] N Reyren, S Thiel, A D Caviglia, L Fitting Kourkoutis, G Hammerl, C Richter, C W Schneider, T Kopp, A S Ruetschi, D Jaccard, M Gabay, D A Muller, J-M Triscone, and J Mannhart. Superconducting interfaces between insulating oxides. *Science*, 317(5842) :1196–1199, 2007.
- [103] A F Santander-Syro, O Copie, T Kondo, F Fortuna, S Pailhès, R Weht, X G Qiu, F Bertran, A Nicolaou, A Taleb-Ibrahimi, P Le Fèvre, G Herranz, M Bibes, N Reyren, Y Apertet, P Lecoeur, A Barthélémy, and M J Rozenberg. Two-dimensional electron gas with universal subbands at the surface of SrTiO₃. *Nature*, 469(7329) :189– 193, 2010.
- [104] T Schneider, A D Caviglia, S Gariglio, N Reyren, and J-M Triscone. Electrostatically-tuned superconductor-metal-insulator quantum transition at the LaAlO₃/SrTiO₃ interface. *Phys. Rev. B*, 79 :184502, 2009.
- [105] F Schoofs, M Egilmez, T Fix, J L MacManus-Driscoll, and M G Blamire. Impact of structural transitions on electron transport at LaAlO₃/SrTiO₃ heterointerfaces. *Appl. Phys. Lett.*, 100(8) :081601, 2012.
- [106] M Schultz and L Klein. Relaxation of transport properties in electron-doped SrTiO₃. Appl. Phys. Lett., 91(15) :151104, 2007.
- [107] S S A Seo, Z Marton, W S Choi, G W J Hassink, D H A Blank, H Y Hwang, T W Noh, T Egami, and H N Lee. Multiple conducting carriers generated in LaAlO₃/SrTiO₃ heterostructures. Appl. Phys. Lett., 95(8) :082107, 2009.
- [108] E D Siggia, B I Halperin, and P C Hohenberg. Renormalization-group treatment of the critical dynamics of the binary-fluid and gas-liquid transitions. *Phys. Rev. B*, 13:2110–2123, 1976.
- [109] R W Simon, C E Platt, A E Lee, G S Lee, K P Daly, M S Wire, J A Luine, and M Urbanik. Low-loss substrate for epitaxial growth of high-temperature superconductor thin films. *Appl. Phys. Lett.*, 53(26) :2677–2679, 1988.
- [110] T P Smith III and F F Fang. g factor of electrons in an InAs quantum well. Phys. Rev. B, 35 :7729–7731, 1987.
- [111] A Sommerfeld and N H Frank. The statistical theory of thermoelectric, galvanoand thermomagnetic phenomena in metals. *Rev. Mod. Phys.*, 3 :1–42, 1931.
- [112] S L Sondhi, S M Girvin, J P Carini, and D Shahar. Continuous quantum phase transitions. *Rev. Mod. Phys.*, 69 :315–333, 1997.
- [113] B Spivak, P Oreto, and S A Kivelson. Theory of quantum metal to superconductor transitions in highly conducting systems. *Phys. Rev. B*, 77 :214523, 2008.
- [114] M A Steiner, N P Breznay, and A Kapitulnik. Approach to a superconductor-tobose-insulator transition in disordered films. *Phys. Rev. B*, 77 :212501, 2008.
- [115] F Stern and W E Howard. Properties of semiconductor surface inversion layers in the electric quantum limit. *Phys. Rev.*, 163 :816–835, 1967.
- [116] Y Tada, N Kawakami, and S Fujimoto. Colossal enhancement of upper critical fields in noncentrosymmetric heavy fermion superconductors near quantum criticality : CeRhSi₃ and CeIrSi₃. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :267006, 2008.
- [117] Y Taguchi, T Okuda, M Ohashi, C Murayama, N Môri, Y Iye, and Y Tokura. Critical behavior in LaTiO₃ in the vicinity of antiferromagnetic instability. *Phys. Rev. B*, 59:7917–7924, 1999.

- [118] Y Takada. Theory of superconductivity in polar semiconductors and its application to n-type semiconducting SrTiO₃. J. Phys. Soc. Jpn, 49(4) :1267–1275, 1980.
- [119] S Thiel, G Hammerl, A Schmehl, C W Schneider, and J Mannhart. Tunable quasitwo-dimensional electron gases in oxide heterostructures. *Science*, 313(5795) :1942– 1945, 2006.
- [120] S P Thiel. Study of Interface Properties in LaAlO₃/SrTiO₃ Heterostructures. PhD thesis, Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Augsburg, 2009.
- [121] Y Tokura, Y Taguchi, Y Okada, Y Fujishima, T Arima, K Kumagai, and Y Iye. Filling dependence of electronic properties on the verge of metal-mott-insulator transition in $Sr_{1-x}La_xTiO_3$. *Phys. Rev. Lett.*, 70(14) :2126–2129, 1993.
- [122] J M Tranquada, A H Moudden, A I Goldman, P Zolliker, D E Cox, G Shirane, S K Sinha, D Vaknin, D C Johnston, M S Alvarez, A J Jacobson, J T Lewandowski, and J M Newsam. Antiferromagnetism in YBa₂Cu₃O_{6+x}. *Phys. Rev. B*, 38 :2477–2485, 1988.
- [123] K Ueno, S Nakamura, H Shimotani, A Ohtomo, N Kimura, T Nojima, H Aoki, Y Iwasa, and M Kawasaki. Electric-field-induced superconductivity in an insulator. *Nat Mater*, 7(11) :855–8, 2008.
- [124] D van der Marel, J L M van Mechelen, and I I Mazin. Common fermi-liquid origin of T^2 resistivity and superconductivity in *n*-type SrTiO₃. *Phys. Rev. B*, 84 :205111, 2011.
- [125] J L M van Mechelen. Titanium perovskites tuned to polaron liquid, ferroelectric and ferromagnetic states of matter, an optical study. PhD thesis, Faculté des Sciences de l'Université de Genève, 2010.
- [126] A Visinoiu, R Scholz, S Chattopadhyay, M Alexe, and D Hesse. Formation of epitaxial BaTiO₃/SrTiO₃ multilayers grown on Nb-doped SrTiO₃ (001) substrates. *Japanese Journal of Appl. Phys.*, 41(Part 1, No. 11B) :6633–6638, 2002.
- [127] R Winkler. Spin-Orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems, volume 191. Springer, 2003.
- [128] H Wu and W Z Shen. Soft mode behavior and phase transition in $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$. Appl. Phys. Lett., 87(25), 2005.
- [129] Y Xie, Y Hikita, C Bell, and H Y Hwang. Control of electronic conduction at an oxide heterointerface using surface polar adsorbates. *Nature communications*, 2(may) :494, 2011.
- [130] A Yamanaka, M Kataoka, Y Inaba, K Inoue, B Hehlen, and E Courtens. Evidence for competing orderings in strontium titanate from hyper-raman scattering spectroscopy. *EPL (EuroPhys. Lett.)*, 50(5) :688, 2000.
- [131] I Zutić, J Fabian, and S Das Sarma. Spintronics : Fundamentals and applications. *Rev. Mod. Phys.*, 76 :323–410, 2004.