



RÉSUMÉ

Propriétés électroniques et magnétiques d'interfaces hybrides. Des molécules isolées aux films moléculaires ultra-minces sur des substrats métalliques.

Manuel Gruber

Au cours des dernières décennies, un important effort de recherche a porté sur l'émergence de nouvelles technologies pour l'après CMOS. Les avancées majeures seront probablement issues de la synergie entre différents champs disciplinaires comme la physique du solide et la chimie, avec par exemple la spintronique moléculaire. La spintronique (électronique de spin), déjà largement utilisée dans des dispositifs technologiques tels que les têtes de lecture de nos disques durs, exploite le spin des électrons en plus de leur charge. Transposer la spintronique dans des systèmes moléculaires permettrait d'augmenter la durée de vie du spin des électrons dans le but de réaliser d'autres dispositifs, et de surcroît à faible coût. Des difficultés persistent, notamment concernant l'injection d'un courant d'électrons polarisés en spin dans le matériau moléculaire, et ce qui demande par conséquent une meilleure compréhension des interfaces hybrides molécules/métal.

Les objectifs de mon travail étaient doubles; d'une part d'étudier l'évolution des propriétés électroniques et magnétiques de systèmes moléculaires déposés sur un substrat ferromagnétique; d'autre part, d'étudier des molécules fonctionnelles, *i.e.* des molécules présentant plusieurs états caractérisés par différentes propriétés physiques, sur des substrats métalliques dans l'ultime but de réaliser des dispositifs à une seule molécule.

La première partie expérimentale de cette thèse est focalisée sur l'étude des propriétés magnétiques et électroniques de molécules de phtalocyanine de manganèse (MnPc) et de films de cobalt. A l'aide du dichroïsme linéaire naturel et du dichroïsme circulaire magnétique de rayons X, nous avons mis en évidence que les premières couches moléculaires forment des colonnes verticales sur la surface de Co(100). La première couche moléculaire est ferromagnétiquement couplée au Co et les couches suivantes montrent un arrangement antiferromagnétique observé jusqu'à température ambiante. Ces résultats sont corroborés par des calculs *ab initio*. Par ailleurs, un matériau antiferromagnétique couplé à un ferromagnétique est un prérequis pour l'anisotropie d'échange (exchange bias), pierre angulaire de la spintronique encore manquante dans le domaine moléculaire. Nous avons testé ce dernier point en effectuant des mesures d'effet Kerr. Les résultats montrent un décalage du cycle d'aimantation à basse température, *i.e.* de l'anisotropie d'échange. Ce résultat constitue la première observation d'une anisotropie d'échange induite par un antiferromagnétique moléculaire. De manière alternative, nous avons mis en évidence que le couplage magnétique entre les molécules de MnPc et le Co(100) peut persister à température ambiante, même lorsque nous les séparons par un espaceur non-magnétique de Cu.

La seconde partie expérimentale de cette thèse porte sur l'étude d'une molécule à transition de spin, la Fe(phen)₂(NCS)₂. Les molécules à transition de spin, constituées d'un métal de transition entouré de ligands, peuvent passer d'un état de haut spin (HS) à un état de bas spin (LS) par l'application de différents stimuli externes. Ces molécules bistables sont ainsi un candidat potentiel pour les futures mémoires. A l'aide d'un microscope à effet tunnel opéré sous ultra-vide à 4K et de la spectroscopie d'absorption des rayons X, nous avons identifié les deux états de spin d'une molécule unique de Fe(phen)₂(NCS)₂ sur une surface de Cu(100). De plus, nous avons pu commuter l'état de spin d'une molécule unique de manière sélective et déterministe à l'aide d'impulsions de tension, pourvu que la molécule

soit suffisamment découplée du substrat à l'aide d'une monocouche de CuN. En examinant de plus près les commutations, nous avons pu mettre en avant des modèles physiques expliquant le mécanisme de la transition observée. Par ailleurs, nous avons également observé et interprété la transition de spin pour des molécules de la deuxième couche, découplées du substrat par la première couche.