

République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique

UNIVERSITE FERHAT ABBAS - SETIF 1



Département : ***physique***

MEMOIRE DE MASTER

DOMAINE : *Science de la matière*

FILIERE : *Physique*

SPECIALITE : *Physique spatiale*

Thème

Etude théorique de l'influence de l'état magnétique sur la polarisation des rayonnements cosmiques : application sur les engins spatiaux

Présenté par :

BENOUARI Djazia

Dirige par

Dr. BOUKELKOUL Mebarek

Promotion: 2020 /2021

Remerciement :

*Je tiens à remercier en premier lieu le bon **Dieu** tout puissant de m'avoir aidé et donné la force et le courage nécessaire afin d'achever ce modeste travail et d'accomplir mes études.*

*Je remercie, en premier lieu, mon encadreur Monsieur le **Docteur Boukelkoul Mebarek**, Maitre de conférences à **Université Ferhat ABBAS Sétif 1**, qui malgré ses nombreuses occupations, à dispenser sans compter son temps et ses conseils pour l'élaboration du mémoire.*

Je tiens à remercier vivement les membres du jury qui ont accepté de juger et examiner ce travail.

Je tiens à remercier vivement ma mère, mon père et tous les membres de ma famille et aussi mon cher mari et sa précieuse famille pour leur encouragement et leur soutien.

*Mes remerciements vont aussi à tous mes amis
Enfin, je remercie tous personnes ont contribué, à la réalisation de ce travail.*

Merci à tous....

Dédicace

Grâce à mon Dieu « el Kadir »

Je dédie ce modeste mémoire à :

Mes très chers parents que j'aime plus que tout le monde

« Dieu les protège ».

Mon cher mari pour son encouragement et son aide moral

A mon frère Diab et à mes sœurs Samia, Ikram , Chaima

A toute ma famille

A tous mes amis

Djazia

SOMMAIRE

La liste de figures	VI
La liste de tableaux	VIII
Liste des abréviations	IX
Introduction générale	1
<i>Chapitre I : les propriétés magnétiques des surfaces</i>	
I .1)	Introduction
3	
I-2) l'origine du magnétisme dans la matière	
5	
I-2-1) Moment magnétique orbital	5
I-2-2) Moment magnétique de spin	5
I-2-2-1) magnéton de Bohr	
6	
I-2-2-2) magnéton nucléaire	6
I-2-2-3) Facture de Landé	6
I 2-3) moments magnétiques totaux d'atome	6
I-3) les phases magnétiques	7
I-3-1) Diamagnétisme	8
I-3-2) Paramagnétisme	8
I-3.3) Antiferromagnétisme	9
I-3-3-1) Quelques matériaux antiferromagnétiques	9
I-3-4) Ferromagnétisme	11
I- 3-4-1) Matériaux Ferrimagnétiques	11
I-3-4-2) Corps ferromagnétiques	12
I-3-4-3) <i>Conséquences</i> de l'hystérésis pour des matériaux ferromagnétiques	12
I-3-4-4) Matériaux magnétiques doux	13
I-3-4-5) Matériaux magnétiques durs	14
I-3-4-6) Origine microscopique du ferromagnétisme	14
I-3-4-7) Domaines de Weiss	14
I-4) Surface et interface	15

SOMMAIRE

I-4-1) Définition	15
I-4-2) Propriétés physiques des surfaces	16
I-4-3) Effets de surface	17
I-4-4) L'interface	18
I-4-5) Effets d'interface	18
I-4-5-1) Modification du paramètre de maille	18
I-4-5-2) Stabilisation de phases cristallographiques exotiques	19
I-4-5-3) Hybridation à l'interface.	19
Bibliographies.	20

Chapitre II : Métaux de transition

II-1) Introduction	22
II-2) Les métaux de transition	22
II-2-1) Structure électronique	23
II-2-1-1) Métaux 3d	24
II-2-1-2) Métaux 4d	25
II-2-1-3) Métaux 5d	25
II-2-2) Propriétés physiques des métaux de transition	26
II-2-2-1) Les propriétés structurales	26
II-2-2-2) Les propriétés électroniques	27
II-2-3) Les métaux de transition magnétiques	28
Bibliographies	29

Chapitre III : Les propriétés magnéto-optiques

III-3-1) Introduction	30
III-3-2) Définition	30
III-3-3) Polarisation de la lumière	31
III-3-3-1) Polarisation elliptique	31
III-3-3-2) Polarisation circulaire	32
III-3-3-3) Polarisation linéaire	32
III-3-4) Effets magnéto-optique	33

SOMMAIRE

III-3-4-1) Effet Kerr magnéto-optique MOKE	33
III-3-4-2) L'effet Kerr polaire	34
III-3-4-3) L'effet Kerr longitudinal	34
III-3-4-4) L'effet Kerr transverse	34
III-3-5) Effet Faraday	35
III-3-6) Dichroïsme magnétique circulaire des rayons X : XMCD	36
Bibliographies	38
Chapitre IV : Formalisme théorique	
IV-1) Introduction	39
IV-2) Approximations fondamentales	39
IV-2-1) L'expression de l'hamiltonien	40
IV-2-2) Approximation de Born Oppenheimer	40
IV-2-3) Approximation à un électron	41
IV-2-4) Approximation de Hartree	41
IV-2-5) Approximation de Hartree-Fock	43
IV-3) la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)	45
IV-3-1) La Densité électronique	45
IV-3-2) Equation de Kohn-sham	46
IV-3-3) Approximation de la densité locale	46
III-3-4) Approximation de la densité locale des spins (LSDA)	47
IV-4) Méthodes de calcul	48
IV-4-1) La méthode SPR-LMTO-ASA	49
IV-4-2) Fonctionnelles GGA : Approximation du Gradient Généralisé	51
IV-4-3) La méthode de calcul K.K.R	51

SOMMAIRE

IV-5)	Modélisation	de	la	surface	
52					
IV-5-1)	Technique	de	la	supercellule	
52					
IV-5-2)	Relaxation	d'un	film	ultramince	
53					
IV-5-3)	Le	cycle		auto-cohérent	
53					
Bibliographies					55
Chapitre V : Résultats et discussion					
V-1) Introduction					57
V-2) Description du système étudié ($Fe_n / Ir (001)$)					57
V-2-1) Elaboration du substrat					58
V-2-2) Elaboration du système $Fe_n / Ir (001)$					58
V-2-3) Détails de calcul					59
V-3) Le système $Fe_n / Ir (001)$					59
V-3-1)	Etude	des	propriétés	structurales	
59					
IV-3-2)	Etude	des	propriétés	magnétiques	
62					
V-4)	Etude	des	propriétés	magnéto-optiques	
65					
V-4-1)	Domaines	spectraux	des	ondes électromagnétiques	
66					
V-4-2)	Résultats	des	propriétés	magnéto-optiques	
67					
V-4-3)	Discussion	: Origine	microscopique	de la réponse magnéto-optique	
68					
Bibliographie					70
Conclusion générale					71
Résumé					72

Liste des Figues

Liste des figures

Liste des figures :

Figure I-1 : Représentation schématique des quatre différents types de structures magnétiques dans un cristal.

Figure I- 2 : courbe de susceptibilité magnétique en fonction de la température.

Figure I-3 : Structure antiferromagnétique.

Figure I-4 : (a) Arrangement des moments dans les corps antiferromagnétiques. (b) évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué à trois températures différentes. (c) dépendance de la susceptibilité en fonction de la température.

Figure I-5 : (a) Arrangement des moments dans les corps ferrimagnétiques. (b) évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué à trois températures différentes. (c) dépendance de la susceptibilité en fonction de la température. (d) existence d'une aimantation spontanée aux températures inférieures à T_C .

Figure I-6 : cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique : (1) courbe de 1^{ères} aimantations. Les intersections H_c et M_r sont respectivement le champ coercitif et l'aimantation rémanente.

Figure I-7 : Observation d'une structure en domaine de Weiss par technique de Bitter.

Figure II -1 : La passerelle des métaux de transition.

Figure III-1 : Onde polarisée elliptiquement.

Figure III-2 : Onde polarisée circulairement : **a)** à gauche, **b)** à droite

Figure III-3 : Onde polarisée linéairement résultante d'une somme de deux ondes circulairement polarisées : a) en phase, b) en opposition de phase.

Figure III-4 : Configuration Kerr magnéto-optique typiques : (a) configuration polaire, (b) configuration longitudinale et (c) configuration transverse.

Figure IV.1 : Représentation de la densité électronique de la molécule d'eau [8]. a) Relief carte montrant les valeurs de projetée dans le plan, qui contient les noyaux. b) Représentation de la molécule à trois dimensions.

Figure IV-2 : Représentation schématique des différentes méthodes de calcul de la DFT.

Liste des figures

Figure IV-3 : Représentation schématique du motif utilisé dans les calculs périodiques des Surfaces.

Figure IV-4 : Vues schématiques d'une relaxation (à gauche) et d'une reconstruction droite) de la couche superficielle. Les positions qu'occuperaient les atomes dans le cas d'une terminaison régulière du cristal sont représentées par des cercles blancs.

Figure IV-5 : Cycle auto-cohérent de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT).

Figure V-1 : Schéma de la super-cellule $Fe_n/Ir(001)$.

Figure V-2 : Processus de relaxation des systèmes $Fe_n/Ir(001)$. Les cercles pleins sont les valeurs calculées et les lignes continues sont les fits (d et f_0 représentent respectivement la distance inter-plan dans le film et le substrat).

Figure V-3 -a : Densités partielles d'états dans le système $Fe_2/Ir(001)$ (s : ligne en bleu

Et p : ligne en rouge et d : ligne en vert)

Figure V-3-b : Densités partielles d'états dans le système $Fe_3/Ir(001)$ (s : ligne en bleu et p : ligne en rouge et d : ligne en vert)

Figure V-4 (a) : Variation du moment magnétique en fonction du nombre de plans atomiques dans le système $Fe_1/Ir(001)$.

Figure V-4 (b) : Variation du moment magnétique en fonction du nombre de plans atomiques dans le système $Fe_2/Ir(001)$.

Figure V-4 (c) : Variation du moment magnétique en fonction du nombre de plans atomiques dans le système $Fe_3/Ir(001)$.

Figure V-5 : Spectre des rotations Kerr dans les systèmes $Fe_n/Ir(001)$.

Figure V-6 : Domaines spectraux des ondes électromagnétiques.

Liste des tableaux

Liste des tableaux :

Tableau I.1 : Moments magnétiques en unité (μ_B /atome) des métaux de transition 3d.

Tableau II.1 : Les structures cristallines et le paramètre de réseau des métaux de Transition.

TableauV-1 : Valeurs de moments magnétiques dans le système Fe₃/Ir(001)

Tableau V.2 : Résultats de l'étude des propriétés magnéto-optiques dans les systèmes Fe_n /Ir(001).

Tableau V-3 : Transitions inter bandes dans le système Fe_n /Ir(001).

Liste des abréviations

Liste des abréviations :

AFM	Atomic Force Microscopy.
AMBER	Assisted Model Building and Energy Refinement.
AM1	Austin Model 1.
APW	Augmented Plane Waves.
ASA	Approximation of the Atomic Sphere.
cc	cubic centred.
bct	body centered tetragonal.
cfc(fcc)	face centred cubic.
DFT	Density Functional Theory.
DFTB	Density-Functional based Tight-Binding.
DOS	Densities Of States.
E	Empty.
EBSD	Electron Back Scattered Diffraction.
FP-LAPW	Full Potetiel-LAPW.
GGA	Generalized Gradient Approximation.
GW	GigaWatt.
HF	Hartree-Fock.
HP	Hartree Product.
IR	Interstitial Region.
IUPAC	International Union of Pure and Applied Chemistry.
KKR	Korringa – Kohn – Rostoker.
KS	Kohn et Sham.
LAPW	Linearized Augmented Plane Waves.
LCAO	Linear Combination of Atomic Orbitals.
LCP	Left Circular Polarization.
LDA	Local Density Approximation.
LMTO	Linearized Muffin-Tin Orbitals.
LSDA	Local Spin Density Approximation.
MEB (SEM)-FEG	Scanning Electron Microscopy- Field Emission Gun.
MET(TEM)	Transmission Electron Microscopy.

Liste des abréviations

MKSA	system of units Mètre, Kilogram, Second and Ampère.
MO	Metal Oxide.
MOKE	Magneto-Optic Kerr Effect.
MT	Muffin-Tin.
OPW	Orthogonalized Planes Waves.
P-MOKE	Polar-MOKE.
PM3	Parameters Model number 3.
ppm	part per million.
RCP	Right Circular Polarization.
RLMTO	Relativistic LMTO.
SCF	Chemical Society of France.
SPR	Relativistic Spin-Polarized.
STM	Scanning Tunneling Microscopy.
VASP	Vienna Ab initio Simulation Package.
XMCD	X-ray Magnetic Circular Dichroism.
ZDO	Zero Differential Overlap.

Introduction générale

Introduction générale :

Les nanotechnologies regroupent de nombreux systèmes physiques parmi lesquels figurent en bonne place les couches minces et ultraminces. L'intérêt croissant qui s'est manifesté pour le magnétisme des couches minces métalliques depuis les années 1980 est essentiellement dû, d'une part aux nouvelles possibilités offertes pour préparer et caractériser ces films ultraminces, et d'une part au fait que les films minces ferromagnétiques présentent des propriétés magnétiques différentes de celles observées pour les matériaux massifs.

Ces nouvelles méthodes de calculs, qui utilisent l'outil informatique, repose sur théorie de la fonctionnelle de la densité. Cette dernière a connu de nombreuses réussites dans le domaine de la prédiction des propriétés des matériaux telles que les propriétés structurales, magnétiques, magnéto-optiques.

Les méthodes de simulation ont joué un rôle très important pour la détermination des différents propriétés ; elles ont, en effet, donné une nouvelle dimension à l'investigation scientifique de nombreux phénomènes physiques et chimiques. Parmi ces méthodes la méthode Hartree-Fock (HF) et la méthode de fonctionnelle de densité (DFT) qui sont dites ab-initio car elles ne nécessitent aucun ajustement de paramètres. Ces méthodes sont appliquées à température nulle et à pression fixe. Les méthodes ab-initio qui sont devenues aujourd'hui un outil de base pour le calcul des différentes propriétés des systèmes les plus complexes, parfois elles ont pu remplacer des expériences très coûteuses ou même irréalisables en laboratoire ou très dangereuse. Elles ont connu de nombreuses réussites dans le domaine de la prédiction des propriétés des matériaux telles que les propriétés structurales, magnétiques, électroniques, élastiques, thermodynamiques et optiques.

Dans ce présent travail, nous avons déposé un film ultramine ferromagnétique de fer sur un substrat d'iridium suivant la direction cristallographique (001) défini par la formule Fe_n/Ir (001). Le calcul du spectre de l'effet Kerr dans sa géométrie polaire nous apporte l'information sur les propriétés magnéto-optiques de notre système. Le choix de notre système consiste à trouver des propriétés physiques (structurales, magnétiques et magnéto-optiques) qui pourraient faire l'objet éventuel d'applications technologiques notamment dans le domaine de stockage magnétique des données. Pour ce faire nous avons fait appel à la méthode SPR-LMTO-ASA (Spin Polarized Relativistic Linéaire Muffin-Tin Orbitals with Atomic Sphere Approximation) implémentée dans le code de calcul Imto

Introduction générale

5.0.0.2. Avec les corrections combinées et la paramétrisation de potentiel d'échange et de corrélation par la loi de Von. Barth-Hedin [1], où les effets relativistes sont pris en compte dans le cadre de l'approximation de la densité locale des spins (LSDA) qui nous permet le calcul des rotations Kerr. Elle est numériquement moins lourde que les autres méthodes ab-initio bien connues. Elle est aussi suffisamment précise dans le calcul des propriétés physiques étudiées dans ce travail

Ce mémoire aura pour objectif principal d'étudier et de familiariser avec l'outil théorique et informatique les propriétés structurales et magnéto optiques du système cité précédemment [2]

Ce manuscrit est composé de Cinq chapitres constructifs. Le premier chapitre est parlé sur Les propriétés magnétiques des surfaces. Dans le deuxième regroupe des généralités sur les métaux de transition qui font l'objet du travail de cette thèse. Nous rappelons les principales caractéristiques telle que la configuration électronique, le magnétisme, les propriétés chimiques. Dans le troisième chapitre, nous présenterons les propriétés magnéto-optiques : effet Kerr (polaire, longitudinal et transversal) .Nous avons consacré le quatrième chapitre au formalisme théorique et les méthodes de calcul Nous résumerons le principe de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) qui sous-tend ce travail ainsi que le principe de la méthode SPR-LMTO-ASA.

Dernier chapitre consacré à la description du système étudié, le formalisme théorique et relativiste de la méthode des orbitales Muffin-Tin linéarisées, cette méthode nous permet de calculer la structure de bande de système $Fe_n/Ir(001)$ et elle est adoptée dans le but de l'étude du spectre de l'effet Kerr dans sa géométrie polaire. Et consacré aussi à la discussion des résultats de nos calculs.

Nous terminons par une conclusion générale qui résume l'essentiel des points abordés et les résultats les plus intéressants, et quelques perspectives.

Chapitre I :

Les propriétés magnétiques des surfaces

I -1) Introduction :

Le magnétisme est une importante propriété de nombreux systèmes physiques ; ses caractéristiques sont maintenant globalement comprises dans le cadre de la théorie des champs électromagnétiques. Comme c'est souvent le cas, on a su utiliser ce phénomène bien avant d'en élucider le mécanisme ; le développement historique de la boussole a précédé de plusieurs siècles la description mathématique des forces responsables de l'alignement de l'aiguille aimantée avec les lignes du champ magnétique créé par le noyau de fer du globe terrestre. Les développements scientifiques et techniques du XIX^e siècle ont permis d'établir les lois exprimant les liens entre les courants électriques et les forces magnétiques et de comprendre que le magnétisme est le plus souvent la conséquence des mouvements des charges électriques. L'introduction de la notion de champ remplaçant les lois exprimant des actions à distance pour les phénomènes magnétiques comme pour les phénomènes gravitationnels a permis d'unifier électricité et magnétisme dans une théorie de l'électromagnétisme régie par des lois mathématiques mises en forme par Maxwell. Le XX^e siècle a vu l'essor de la théorie atomique du magnétisme et la compréhension des transitions de phases magnétiques des matériaux, tandis que la multiplication des applications industrielles et techniques a abouti à l'omniprésence de l'électrotechnique, de l'électronique puis de l'informatique.

L'intérêt d'utiliser le magnétisme comme support de l'information s'est posé lorsque l'on cherchait à minimiser l'énergie nécessaire au stockage. En effet, le principe repose sur les propriétés ferromagnétiques qui permettent de garder en mémoire l'orientation d'un champ externe appliqué. Ce sont sur des petits objets magnétiques que sont inscrites les données sauvegardées sur un disque dur par exemple. Ce type de stockage d'information ne nécessite pas un courant électrique et permet donc de conserver l'information dans les disques durs sans nécessiter de batterie ou de pile.

Le magnétisme représente un ensemble de phénomènes physiques dans lesquels les objets exercent des forces attractives ou répulsives sur d'autres matériaux. Les courants électriques les moments magnétiques des particules élémentaires fondamentales sont à l'origine du champ magnétique qui engendre ces forces. Tous les matériaux sont influencés, de manière plus ou moins complexe, par la présence d'un champ magnétique, et l'état magnétique d'un matériau dépend de sa température (et d'autres variables telles que la

pression et le champ magnétique extérieur) de sorte qu'un matériau peut présenter différentes formes de magnétisme selon sa température [1].

Les propriétés magnétiques de la matière se différencient selon les propriétés de la substance à l'échelle atomique. Le ferromagnétisme de quelques métaux et alliages est la propriété la plus utile pour ses nombreuses applications techniques. Les autres corps réagissent de façons diverses à une excitation magnétique : on distingue le diamagnétisme – quasi universel, le paramagnétisme de certains gaz ...

I-2) l'origine du magnétisme dans la matière :

Faraday a montré que toute substance est aimantable mais le plus souvent l'effet n'est appréciable que dans un champ magnétique intense ; en plaçant dans un champ magnétique non uniforme des barreaux de substances différentes :

Certains sont attirés vers les régions de champ intense en s'orientant parallèlement aux lignes de champ comme le ferait un barreau de fer doux. Les substances qui sont comparables au fer sont dites ferromagnétiques, d'autres sont repoussées vers les régions où le champ magnétique est faible et s'orientent perpendiculairement aux lignes de champ ; de telles substances sont dites diamagnétiques et les substances qui subissent des actions de même nature que le fer mais beaucoup moins intenses sont dites paramagnétiques.

Un solénoïde (enroulement cylindrique) parcouru par un courant d'intensité I crée un champ magnétique. Si, à l'intérieur de ce solénoïde on place un matériau, on constate une modification du module du vecteur champ magnétique que l'on notera maintenant $\vec{B}$.

I-2-1) Moment magnétique orbital :

On peut transposer le lien entre le moment magnétique et le moment cinétique de la mécanique classique à la mécanique quantique. Ainsi, au moment cinétique orbital d'une particule de charge q et de masse m est associé un moment magnétique orbital :

$$\vec{\mu}_L = \frac{q}{2m} \vec{L} \quad (\text{I-1})$$

Où :

Le facteur $q/2m$ est appelé rapport gyromagnétique.

L Est le moment cinétique orbital.

μ_L Est le moment magnétique orbital.

I-2-2) Moment magnétique de spin :

En physique, le moment magnétique de spin représente le moment magnétique associé au moment cinétique de spin d'une particule. Ce moment magnétique dû au spin est aussi appelé moment magnétique intrinsèque parce que celui-ci est indépendant du moment cinétique orbital [2-3].

I-2-2-1) magnéton de Bohr :

Pour l'électron, possédant un spin $S=1/2$ et un facteur de Landé égal à -2 , on obtient le « quantum magnétique » suivant, appelé magnéton de Bohr [4] :

$$\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e} = -g_B \frac{e\hbar}{4m_e} \quad (\text{I-2})$$

I-2-2-2) magnéton nucléaire :

Le magnéton nucléaire est le magnéton de Bohr mais avec la masse du proton à la place de celle de l'électron et $g_N = +2$:

$$\mu_N = \frac{e\hbar}{2m_p} = -g_N \frac{e\hbar}{4m_p} \quad (\text{I-3})$$

I-2-2-3) Facteur de Landé :

On associe à une particule de charge q de masse m , et de spin $\vec{S}$ donné un moment magnétique de spin :

$$\vec{\mu}_s = g \frac{q}{2m} \vec{S} \quad (\text{I-4})$$

Où g est un nombre pur, appelé facteur de Landé (1921). Ce nombre varie selon la nature de la particule : on a approximativement $g = -2$ pour l'électron $g = +5,586$ pour le proton et $g = -3,826$ pour le neutron. Le facteur de Landé du magnéton nucléaire est égal à 2.

Remarque : Pour un atome, le facteur de Landé intervient dans le calcul des niveaux d'énergie atomiques en champ magnétique faible.

I-2-3) moments magnétiques total d'atome :

Les moments cinétiques orbitaux de la sous-couche s'additionnent pour donner le moment Orbital résultant, proportionnel au nombre quantique L . De même, les moments cinétiques de Spin s'additionnent pour donner le moment résultant de Spin, proportionnel au nombre quantique S . Le moment cinétique total résultant est alors déterminé par le couplage spin-orbite en fonction de L et S et relié au nombre quantique J à partir duquel on calcule l'amplitude du moment magnétique absolu de l'atome. On obtient :

$$g_J = g_L \frac{J(J+1) - S(S+1) + L(L+1)}{2J(J+1)} + g_S \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$$

Soit approximativement

$$g_L \approx 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$$

Avec :

$$g_L \approx 1$$

$$g_S \approx 2$$

I-3) les phases magnétiques :

En général, les matériaux sont classés en quatre classes distinctes en fonction de leurs propriétés magnétiques : diamagnétisme, paramagnétisme, ferromagnétisme, encore ont une relation beaucoup plus complexe avec un champ magnétique appliqué (antiferromagnétisme), d'autres encore (ferromagnétisme) [5-7].

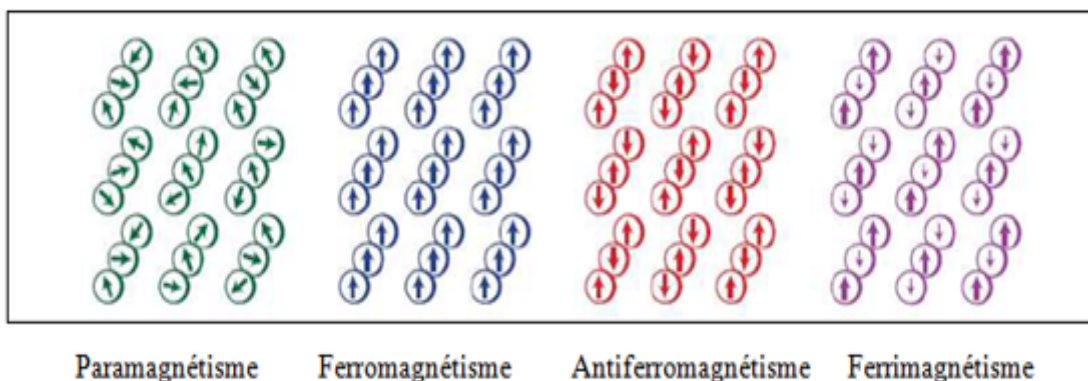


Figure I-1 : Représentation schématique des quatre différents types de structures magnétiques dans un cristal.

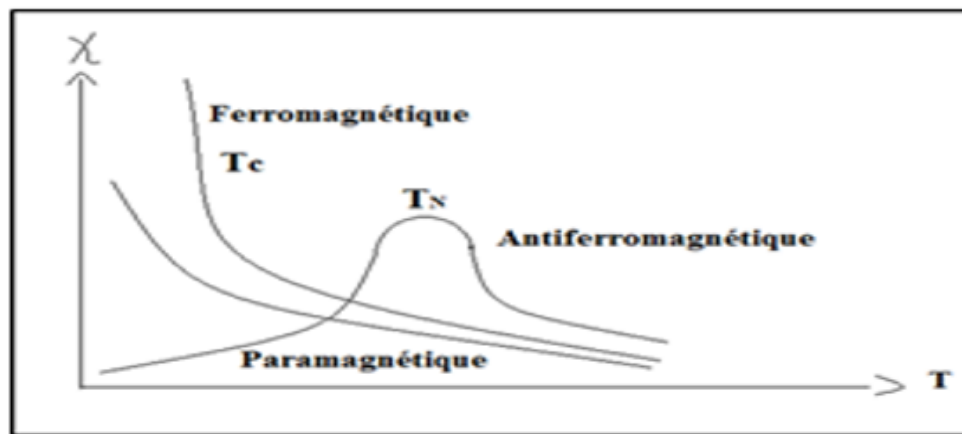


Figure I- 2 : courbe de susceptibilité magnétique en fonction de la température.

I-3-1) Diamagnétisme :

Le diamagnétisme est un phénomène réversible qui caractérise les milieux qui ne sont pas aimantés en l'absence de champ. En présence de champ magnétique, l'aimantation M et le champ H sont de sens inverse à l'intérieur du matériau. Sur le plan microscopique, cette propriété de la matière est directement liée aux moments cinétiques orbitaux des électrons atomiques ou moléculaires. Dans les matériaux diamagnétiques, les électrons forment autour des atomes des paires de spin opposé, de façon que leur moment magnétique total soit nul. La plupart des substances solides et liquides, la majorité des gaz des millions de composés organiques sont très faiblement magnétiques à cause du mouvement orbital des électrons. Sous l'effet d'un champ magnétique appliqué H , leurs orbites sont légèrement déformées et leur moment cinétique change. En adoptant un modèle d'orbite circulaire pour les électrons, Langevin a démontré que la susceptibilité d'un diamagnétique, χ_m c'est négative (Figure I-2), telle que $-10^{-4} < \chi_m < -10^{-9}$ c'est-à-dire que l'intensité de l'aimantation induite dans le corps, par un champ H , sera dans la direction opposée [8]

I-3-2) Paramagnétisme :

Le paramagnétisme désigne en magnétisme le comportement d'un milieu matériel qui ne possède pas d'aimantation spontanée mais qui, sous l'effet d'un champ magnétique extérieur, acquiert une aimantation dirigée dans le même sens que ce champ d'excitation. Un

matériau paramagnétique possède donc une susceptibilité magnétique de valeur positive (contrairement aux matériaux diamagnétiques), en général assez faible.

- ❖ Les atomes portent un moment magnétique permanent dont l'orientation est aléatoire. Les distances interatomiques ou intermoléculaires sont suffisamment importantes pour que les moments n'exercent aucune interaction mutuelle.

En l'absence de champ extérieur, ils ne sont soumis qu'à l'agitation thermique et l'aimantation globale est nulle.

- ❖ Sous l'effet d'un champ magnétique, l'orientation moyenne des moments change sous l'effet du couple qui les ramène suivant la direction et le sens du champ.

⇒ Apparition d'une aimantation induite parallèle au champ.

- ❖ Champ et aimantation de même sens ($\chi > 0$ et faible mais ~ 10 à 1000 fois plus grande que pour les matériaux diamagnétiques).
- ❖ χ décroît avec la température car l'agitation thermique qui gêne l'orientation des dipôles suivant le champ croît.
- ❖ Comportement d'autant plus linéaire que T est grand.

Puisque les matériaux magnétiques dépendent de l'alignement des spins, il existe une forte interaction avec la température car les interactions thermiques provoquent des désalignements des moments ; Curie a constaté que la susceptibilité magnétique des matériaux paramagnétiques varie inversement avec la température [9]

$$\chi_m = \frac{C}{T}$$

Où C est la constante de Curie et T est la température absolue.

I-3.3) Antiferromagnétisme :

L'antiferromagnétisme est une propriété de certains milieux magnétiques. Contrairement aux matériaux ferromagnétiques, dans les matériaux antiferromagnétiques, l'interaction d'échange entre les atomes voisins conduit à un alignement antiparallèle des moments magnétiques atomiques. L'aimantation totale du matériau est alors nulle. Tout comme les ferromagnétiques, ces matériaux deviennent paramagnétiques au-dessus d'une température de transition appelée température de Néel.

Dans ces matériaux, la variation de la susceptibilité va être la conséquence d'une lutte entre l'énergie d'interaction d'échange et l'énergie provenant de l'agitation thermique.

Les moments magnétiques qui se compensent parfaitement sans agitation thermique, vont se désordonner légèrement avec la température de façon à créer un moment magnétique qui va croître jusqu'à une température T_N dite température de Néel.

Au-dessus de T_N l'agitation thermique est trop importante et les moments magnétiques si désordonnés que la susceptibilité diminue. On comprend donc la variation de la susceptibilité en fonction de la température, qui augmente jusqu'à T_N puis diminue.

I-3-3-1) Quelques matériaux antiferromagnétiques :

Dans le tableau périodique, le seul élément possédant des propriétés antiferromagnétiques à température ambiante est le chrome. Généralement, les antiferromagnétiques sont des céramiques composées de métaux de transition ainsi que d'oxygène ou de sulfure. Le moment magnétique du sous réseau correspondant à l'oxyde varie spontanément avec l'aimantation du premier réseau, en s'alignant dans la direction opposée, et avec la même amplitude. .

La **Figure I-3** montre un cas d'exemple de MnO où O^{2-} n'a pas de moment et Mn^{2+} a un moment magnétique linéaire. L'antiferromagnétisme se produit à des températures inférieures à la température de Néel (T_N) [10]. Au-dessus de cette température, ils deviennent paramagnétiques.

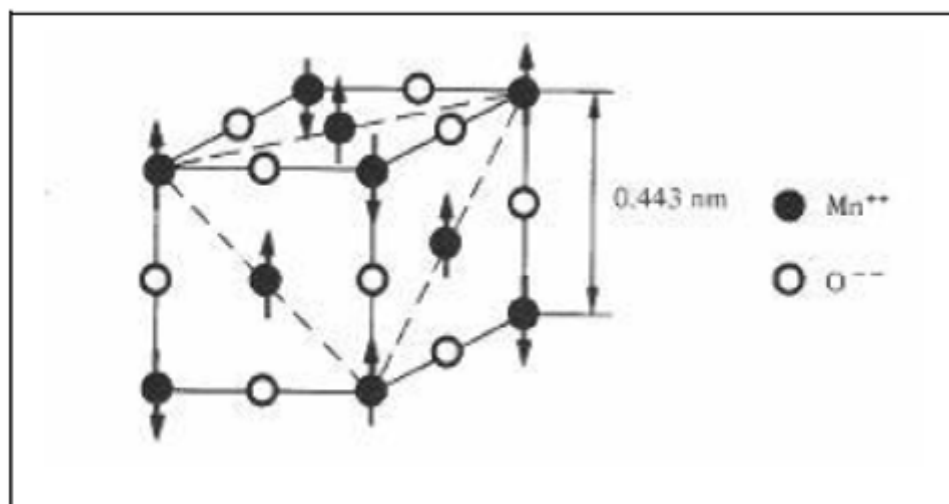


Figure I-3 : Structure antiferromagnétique.

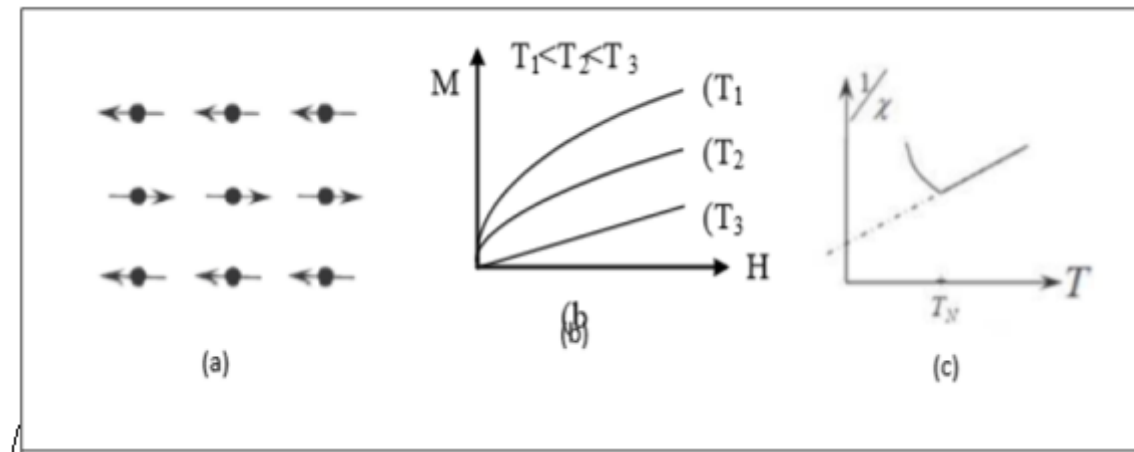


Figure I-4 : (a) Arrangement des moments dans les corps antiferromagnétiques. (b) évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué à trois températures différentes. (c) dépendance de la susceptibilité en fonction de la température.

I-3-4) Ferromagnétisme :

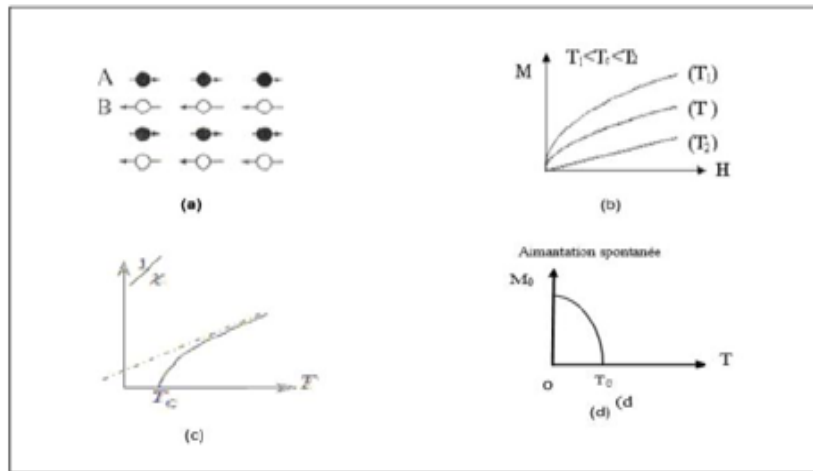
I- 3-4-1) Matériaux Ferrimagnétiques :

Les ferrimagnétiques, se composent de domaines magnétiquement saturés et présentent une saturation magnétique. En outre, ils deviennent paramagnétiques au-dessus de T_C . Ils sont donc des matériaux magnétiques d'importance industrielle. La classe la plus importante de matériaux ferrimagnétiques est les ferrites, qui sont des doubles oxydes de fer et un autre métal

L'origine du ferrimagnétisme repose sur la structure magnétique spécifique. La magnétite est schématiquement illustrée à la **Figure I-4**. Cette figure suggère que tous les atomes A ont leurs spins alignés dans une direction et tous les atomes B ont leurs moments dans la direction opposée. L'échange entre un atome A et un atome B est négatif tandis que l'échange entre deux atomes A, ainsi qu'entre deux atomes B, est positif. Puisque le moment magnétique d'un atome A est plus grand que celui d'un atome B, les moments ne s'annulent

pas complètement, et l'échantillon ferrimagnétique pourrait éventuellement avoir une aimantation.

Figure I-5 : (a) Arrangement moments dans corps



des
les

ferrimagnétiques. (b) évolution de L'aimantation en fonction du champ appliqué à trois températures différentes. (c) dépendance de la susceptibilité en fonction de la température. (d) existence d'une aimantation spontanée aux températures inférieures à T_c .

La susceptibilité χ_m d'un ferrimagnétique suit la loi de Curie-Weiss pour les températures supérieures à la température T_c de Curie (Figure 6 (c)) [11].

$$\chi_m = \frac{C}{T - T_c}$$

Nous remarquons que la susceptibilité n'est pas infinie à $T = 0$ K comme dans le cas d'un paramagnétique mais elle devient infinie à la température de Curie (T_c).

I-3-4-2) Corps ferromagnétiques :

Pour l'usage industriel, le fer, le cobalt et le nickel sont les matériaux ferromagnétiques les plus utilisés. De plus, certaines terres rares (les Lanthanides dans la classification périodique) sont également ferromagnétiques à basse température et utilisées dans l'industrie. En ce qui concerne les alliages, la situation est très complexe : certains alliages de fer et de nickel ne sont pas ferromagnétiques (acier inoxydable austénitique), alors que l'alliage d'Heusler, constitué uniquement de métaux non ferromagnétiques (61 % Cu, 24 % Mn, 15 % Al), est ferromagnétique.

Enfin, il faut ajouter les ferrites, dont la composition est de la forme $(MO ; Fe_2O_3)$ où M est un métal divalent et dont le représentant le plus ancien est la magnétite Fe_3O_4 ($FeO ; Fe_2O_3$) [4]

I-3-4-3) Conséquences de l'hystérésis pour des matériaux ferromagnétiques :

L'aimantation de la matière absorbe de l'énergie qui n'est que partiellement restituée au cours de la désaimantation. Cette énergie est dissipée sous forme calorifique : le matériau s'échauffe. On démontre que les pertes par hystérésis sont proportionnelles à l'aire du cycle d'hystérésis (Figure I-6).

Dans le cas où une substance ferromagnétique doit décrire un grand nombre de cycles d'hystérésis (machines tournantes, transformateurs...), il faut choisir des matériaux tels que l'aire du cycle soit aussi petite que possible. Ces matériaux sont dits magnétiquement « doux ».

À l'opposé, c'est grâce à une hystérésis importante que l'on peut réaliser des aimants permanents. On utilise pour leur fabrication des matériaux magnétiquement durs : certains aciers à l'aluminium, au nickel ou au cobalt conviennent parfaitement. On réalise aussi des aimants avec de la poudre de fer agglomérée dans un isolant [13]

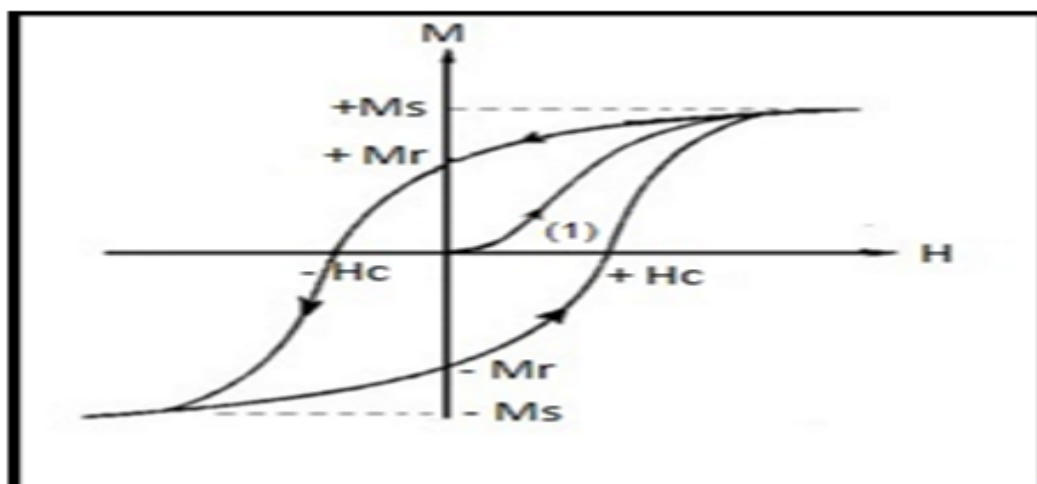


Figure I-6 : cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique : (1) courbe de 1^{ères} aimantations. Les intersections H_c et M_r sont respectivement le champ coercitif et l'aimantation rémanente.

I-3-4-4) Matériaux magnétiques doux :

Les matériaux ferromagnétiques doux forment un sous-groupe des matériaux ferromagnétiques, ce qui signifie qu'ils sont capables de s'aimanter lorsqu'ils sont soumis à un champ magnétique extérieur. La particularité des matériaux ferromagnétiques doux est que l'action de créer ou d'annuler l'aimantation dans le matériau nécessite moins d'énergie que pour les matériaux ferromagnétiques durs. Les ferromagnétiques doux sont utilisés dans les transformateurs, les électro-aimants ou dans toute application dans laquelle le matériau travaille à haute fréquence. Ils possèdent un champ coercitif très faible avec une très forte susceptibilité. C'est cette forte susceptibilité qui permet d'obtenir une forte induction à partir d'un faible champ extérieur et ainsi être utile dans les électro-aimants ou à la canalisation des lignes de champs. Un faible champ coercitif et une forte susceptibilité entraînent l'étroitesse du cycle d'hystérésis. L'aire de ce cycle représente l'énergie dissipée sous forme de chaleur lors d'un parcours complet du cycle, appelée « pertes magnétiques ».

Les matériaux magnétiques doux sont utilisés pour réaliser des électroaimants (leur aimantation doit pouvoir facilement être annulée) ou des circuits magnétiques fonctionnant en régime alternatif (machines électriques, transformateurs) [4]

I-3-4-5) Matériaux magnétiques durs :

Les matériaux ferromagnétiques durs forment un sous-groupe des matériaux ferromagnétiques. Ils possèdent une aimantation naturelle présente en absence de champ magnétique extérieur, ainsi qu'un champ coercitif et une rémanence élevés. Comme pour les autres matériaux ferromagnétiques, les ferromagnétiques durs ont la particularité de s'aimanter fortement en présence d'un champ magnétique extérieur. On distingue les ferromagnétiques durs des ferromagnétiques doux par leurs propriétés magnétiques, telles que la forme de leur cycle d'hystérésis. Le cycle d'hystérésis des ferromagnétiques doux est fin et allongé vers le haut, alors que celui des ferromagnétiques durs est aplati et allongé sur

l'axe des abscisses. Les matériaux ferromagnétiques durs sont à la base des aimants permanents, et notamment des aimants à forte puissance [4]

I-3-4-6) Origine microscopique du ferromagnétisme :

Pour obtenir un matériau avec un champ coercitif important, il faut limiter la nucléation et/ou la propagation des parois, à l'origine du renversement de l'aimantation. Plus l'aimantation se renverse facilement, plus le champ coercitif du matériau est faible, et plus il existe des domaines magnétiques. Les défauts structuraux agissent comme sites de nucléation. Afin d'éviter ce phénomène, le matériau peut être divisé en plusieurs parties isolées magnétiquement. De ce fait, le renversement de l'aimantation provoqué par un défaut reste localisé, et ne provoque pas d'effet de cascade de renversement dans le matériau. La technique la plus utilisée pour obtenir une telle microstructure est la métallurgie des poudres.

I-3-4-7) Domaines de Weiss :

Lorsqu'un matériau est ferromagnétique ou ferrimagnétique, il est divisé en domaines, appelés domaines de Weiss ou domaine magnétique, à l'intérieur duquel l'orientation magnétique est identique. Ce domaine se comporte alors comme un aimant. Ces domaines sont séparés par des parois dites parois de Bloch.

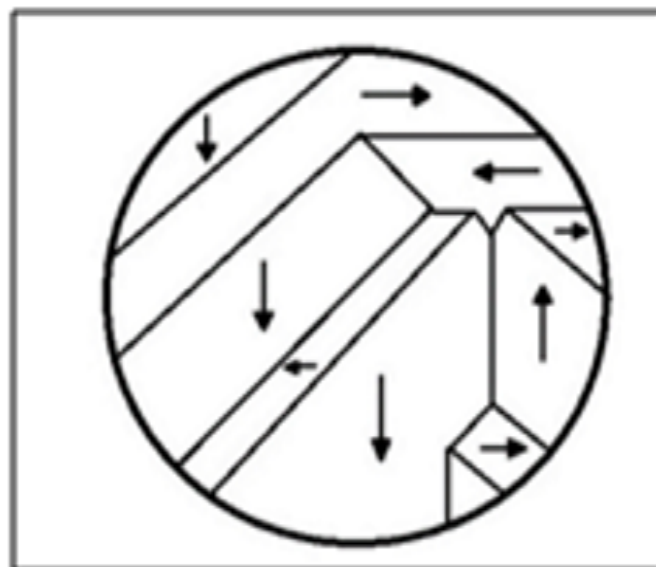


Figure I-7 : Observation d'une structure en domaine de Weiss par technique de Bitter.

- ☐ Ces domaines n'existent pas lorsque les dimensions du matériau sont très faibles (quelques nm). Ces matériaux sont dits nanocristallins.
- ☐ Le déplacement de ces parois est responsable des phénomènes d'hystérésis.

Il existe de nombreuses techniques expérimentales pour mettre en évidence les domaines magnétiques ainsi que les parois qui les séparent. L'approche physique de l'observation des domaines est nettement différente suivant le type de matériau comme la méthode de Bitter, l'observation par les effets magnéto-optique, par rayon X, par les neutrons, par les électrons, par l'anisotropie d'une précipitation et qui nous intéresse dans cette étude c'est les effets magnéto-optiques (chapitre 3) [4]

I-4) Surface et interface :

I-4-1) Définition :

On appelle surface une zone séparant deux phases, pouvant être constituées d'un même corps, ou de deux corps différents. Cependant, il arrive que l'on différencie les surfaces séparant une phase condensée (liquide ou solide) de sa propre vapeur et une interface peut être définie comme étant la zone qui sépare deux milieux A et B. Ces milieux doivent différer par au moins une des propriétés soit de la composition chimique, de la nature des phases (solides, variétés cristallines, liquides, gaz), de l'orientation cristalline (grains), d'ordonnement (ordre-désordre) ou bien d'orientation du spin des électrons (domaines magnétiques) [4]

A l'équilibre, le mouvement des atomes (ou leur changement d'état), de part et d'autre de l'interface n'est pas nul ; mais il se compense statistiquement, de sorte que l'interface est immobile à l'échelle de l'observation. Dans un système hors d'équilibre, les échanges ne se compensent plus et l'interface se déplace. Si les cinétiques sont suffisamment lentes, l'interface peut sembler immobile : le système est métastable. C'est le cas pratiquement de toutes les interfaces limitant les solides, à la température ambiante l'épaisseur réelle de la zone de transition est extrêmement faible : de un à quelques plans d'atomes, de sorte que l'interface peut être assimilée à une surface géométrique. C'est le cas pratiquement de toutes les interfaces limitant les solides, à la température ambiante l'épaisseur réelle de la zone de transition est extrêmement faible : de un à quelques plans d'atomes, de sorte que l'interface peut être assimilée à une surface géométrique. Mais lorsqu'il

y a variation de composition chimique, l'épaisseur de la zone perturbée, considérée comme interface, est généralement plus importante. L'interface continue cependant d'être assimilée à une surface tant que la méthode d'observation n'a pas une résolution latérale ou en profondeur supérieure à l'épaisseur réelle de l'interface. Examinée à une échelle plus fine, une interface peut soit disparaître, soit se résoudre en une succession d'interfaces élémentaires [4]

I-4-2) Propriétés physiques des surfaces :

La physique des surfaces étudie les changements physiques qui se produisent aux Interfaces. La physique des surfaces étudie entre autres :

- ✓ Les reconstructions superficielles.
- ✓ Les plasmons et les phonons de surfaces.
- ✓ L'épitaxie.
- ✓ L'émission électronique (Surface enhanced Raman scattering, en anglais).
- ✓ L'effet tunnel des électrons.
- ✓ La spintronique.
- ✓ La formation de nanostructures sur les surfaces [14]

Le développement de matériaux multifonctionnels ayant des propriétés de surface/interface spécifiques est un axe de recherche « cœur » d'INTERACTIFS. Les propriétés physiques et mécaniques de la surface peuvent être contrôlées par ajout de nouvelles phases, modification de la microstructure, ou texturation de la surface à l'échelle nano/micrométrique. De petites modifications de la surface peuvent en effet induire des modifications spectaculaires du comportement macroscopique. INTERACTIFS s'appuie sur plusieurs technologies de

Pointe d'ingénierie des surfaces : texturation et gravure par bombardement ionique, implantation ionique, déposition. Ces techniques reposent sur l'interaction de la matière avec les ions qui sont soit pulvérisés ou déposés à la surface, soit implantés dessous. Une attention particulière est portée aux effets induits par ces interactions ions-matière afin d'éviter toute modification de propriétés physiques ou production de défauts non désirés lors du traitement de la surface. Pour cela, la caractérisation complète de la microstructure de la surface traitée

doit être effectuée par les techniques classiques de microscopie (MEB-FEG, EBSD, MET, AFM, STM) préalablement aux mesures de propriétés physiques [14]

La difficulté vient des échelles basses qui nécessitent le développement d'outils d'élaboration et de transformation des surfaces très spécifiques ainsi que de la métrologie à petite échelle associée. La maîtrise de ces outils est un enjeu majeur avec une large portée en termes de développements scientifiques et applicatifs. Si l'on est capable de modéliser la structure des premières couches atomiques, on peut envisager de piloter les mécanismes qui se développent dans cette zone et qui conditionnent les propriétés de la surface [14]

I-4-3) Effets de surface :

Pour un atome situé à la surface, le nombre de coordination, c'est-à-dire le nombre de premiers voisins, est plus faible que celui dans le matériau massif. Ceci a pour conséquence une réorganisation locale de la densité électronique qui s'accompagne d'une diminution de la largeur des bandes d au voisinage de la surface. Le tableau I.1 compare les moments magnétiques en volume et en surface des métaux de transition magnétiques 3d : le moment est toujours plus élevé en surface. Sur ce tableau on constate que la valeur du moment magnétique est moins importante pour les surfaces denses (110) pour le fer, (111) pour le cobalt et le nickel), que pour les surfaces moins compactes (100). Les moments magnétiques des couches libres sont en général plus élevés que ceux des métaux massifs [15-19].

Elément	Cr (cc)	Fe (cc)	Co (cfc)	Ni (cfc)
Surface (100)	2.49	2.98	1.95	0.68
Surface (110)		2.65		
Surface (111)			1.82	0.63
Volume	0.59	2.2	1.76	0.56

Tableau I.1 : Moments magnétiques en unité (μ_B /atome) des métaux de transition 3d.

I-4-4) L'interface :

Une interface peut être définie, de la façon la plus générale, comme étant la zone qui sépare deux milieux A et B. Ces milieux doivent différer par au moins une des propriétés suivantes :

- composition chimique.
- nature des phases : solides, variétés cristallines, liquides, gaz.
- orientation cristalline (grains).
- ordonnancement (ordre-désordre).
- orientation du spin des électrons (domaines magnétiques).

I-4-5) Effets d'interface :

La réalisation expérimentale des films ultraminces à l'échelle de monocouche exige la présence d'un substrat sur lequel la couche magnétique est déposée. Dans le cas de la croissance par épitaxie, les atomes déposés croissent en réduisant l'énergie de surface à cause des liaisons atomiques [20-21]. La croissance épitaxiale peut avoir lieu lorsque le désaccord du réseau entre le substrat et le matériau déposé est très faible car il y'a une compétition entre l'énergie de surface et l'énergie élastique. Tout comme les effets de surface, les modifications structurales et chimiques de l'environnement et les contraintes imposées par une interface vont donner lieu à une modification locale des propriétés magnétiques. Les effets induits par les interfaces sur le magnétisme des films ultraminces peuvent avoir trois origines différentes :

I-4-5-1) Modification du paramètre de maille :

A l'équilibre, la majorité des matériaux possèdent des paramètres de maille distincts alors l'épitaxie donne des films ultraminces stressés (strained ultrathin films) avec des paramètres de maille qui diffèrent de ceux des matériaux massifs (au moins pendant la phase pseudo morphique) avec une symétrie inférieure. Lorsque l'accord (matching) des paramètres de maille entre les couches déposées n'est pas parfait, les déformations des matériaux provoquent une variation des paramètres de maille du matériau épitaxie (jusqu'à quelques pourcents) qui modifie ses propriétés magnétiques. En général, une contraction de la maille conduit à un élargissement des bandes d et donc à une diminution du moment. Au contraire, une dilatation de la maille tend à accroître les moments magnétiques dans la couche déposée.

I-4-5-2) Stabilisation de phases cristallographiques exotiques :

C'est notamment le cas du fer (normalement cc) qui, épitaxie sur Ir (100) prend la structure *cfc* du substrat [22], avec des propriétés magnétiques très différentes de celles du Fe cc. La modification de quelque pourcent du paramètre de maille du Fe *cfc* suffit alors à transformer l'état ferromagnétique du fer en un état antiferromagnétique. Ces modifications importantes de la structure électronique sont dues à de petites distorsions de l'arrangement cristallin. Donc il est possible de stabiliser des phases cristallographiques avec de nouvelles phases magnétiques.

I-4-5-3) Hybridation à l'interface :

Pour des couches ultraminces en contact avec des couches adjacentes d'un autre métal, la Variation du moment magnétique des atomes d'interface est difficile à prédire ; il convient de prendre en compte les effets d'hybridation entre les deux matériaux. Par exemple, les calculs Prédissent qu'un plan atomique de fer « libre » est ferromagnétique avec un moment proche de $3\mu_B$. Déposé sur un substrat de tungstène (001), la forte hybridation avec le W conduit ce plan à devenir antiferromagnétique, avec un moment de $0,93\mu_B$. Si l'on dépose un deuxième plan atomique, la couche de fer redevient ferromagnétique. Nous venons de voir que pour un métal organisé sous la forme d'une couche ultramince, le décalage d'échange entre les états 3d de spins opposés est modifié par la présence des surfaces et interfaces qui délimitent la couche magnétique et qu'il convient de considérer au cas par cas. Le transfert de charge dû à la différence de l'électronégativité entre le substrat et la couche ultramince peut affecter d'une manière significative le moment magnétique de la couche. L'épaisseur de la couche ultramince et la température influencent considérablement les propriétés magnétiques des films ultraminces [19].

Bibliographie

- [1] Gerrit L. Verschuur, Hidden Attraction: The History and Mystery of Magnetism, New Ed, 3 October 1996.
- [2] Sin-Itiro Tomonaga, *The story of spin*, The university of Chicago press (1997), (Traduction Anglaise d'un ouvrage paru en japonais en 1974.
- [3] Marc Knecht, « The anomalous magnetic moments of the electron and the muon », Séminaire Poincaré (Paris, 12 octobre 2002), publié dans : Bertrand Duplantier et Vincent Rivasseau (éds.), *Poincaré Seminar 2002*, Progress in Mathematical Physics 30, Birkhäuser (2003), (ISBN 3-7643-0579-7) Texte complet disponible au format *PostScript* [archive].
- [4] Benchikh Somia, Dr. Boukelkoul Mebarek, « Etude théorique des propriétés Structurales et magnéto-optique dans le film ultra-mince Fen/Cu (001) » mémoire de Master, 2017.
- [5] Pecharsky, V. K., Gschneidner Jr, K. A. Giant magnetocaloric effect in Gd₅(Si₂Ge₂). Physical review letters, 78(23) (1997) 4494. 103
- [6] Aharoni, A. Introduction to the Theory of Ferromagnetism (Vol. 109). Clarendon Press (2000).
- [7] Dunlop, D. J., Özdemir, Ö. Rock magnetism: fundamentals and frontiers (Vol. 3). Cambridge university press (2001).
- [8] E. du Trémolet de lacheisserie et coll "Magnétisme " TOM 1, Presses
- [9] Pecharsky, V. K., Gschneidner Jr, K. A. Giant magnetocaloric effect in Gd₅(Si₂Ge₂). Physical review letters, 78(23) (1997) 4494. 103
- [10] Meiklejohn, W. H., Bean, C. P. New magnetic anisotropy. Physical review, 102(5) (1956) 1413.
- [11] Bobak, A., Jaščur, M. Ferrimagnetism in diluted mixed Ising spin systems. Physical Review B, 51(17) (1995) 11533.
- [12] Ellis, R. S., Newman, C. M. The statistics of Curie-Weiss models. Journal of Statistical Physics, 19(2) (1978) 149.
- [1 3] P. Monod, J. J. Prejean et B. Tissier, « Magnetic hysteresis of CuMn in the spin glass State », *J. Appl. Phys.*, American Institute of Physics, vol. 50, no B11, 1979, p. 7324 (DOI 10.1063/1.326943, lire en ligne [archive]).

- [14] SEBOUAI Rawiya, Dr .*BOUKELKOUL Mebarek*, «Etude ab-initio des propriétés structurales, magnétiques et magnéto-optiques des films ultraminces Fen/Rh(001)» mémoire de master 2019\2020.
- [15] Ohnishi S, Freeman A J and Weinert M 1983 Phys. Rev. B 28 6741.
- [16] Wimmer E, Freeman A J and Krakauer H 1984 Phys. Rev. B 30 3113.
- [17] Fu C L and Freeman A J 1986 Phys. Rev. B 33 1755.
- [18] Li C, Freeman A J and Fu C L 1988 J. Magn. Magn. Mater. 75 53.
- [19] Dr. *BOUKELKOUL MEBAREK* « Propriétés magnéto-optiques des couches ultraminces et des slabs à base de métaux de transition » thèse doctorat, 2013.
- [20] Bauer E and van der Merwe J H 1986 Phys. Rev. B 33 3657.
- [21] Ibach H 1997 Surf. Sci. Rep. 29 193.
- [22] M. T. Kief and W. F. Egelhoff, Phys. Rev.

Chapitre II :

Métaux de transition

II-1) Introduction :

Les métaux de transition ont été ainsi appelés parce qu'ils semblaient assumer la transition entre les éléments à caractères métalliques très prononcés et les non-métaux (anciennement métalloïdes).

Les métaux jouent un rôle très important dans la vie de tous les jours. Ces éléments occupent 90 % de la classification périodique. Leur particularité est leurs orbitales «d» qui leur confèrent certaines propriétés particulières : couleur, magnétisme, conductivité ...

Les métaux de transition occupent actuellement une place importante dans le domaine technologique, en effet ils sont largement utilisés comme la fabrication des supraconducteurs, la constitution des alliages [1].

On distingue deux familles parmi les métaux de transition :

- Les **métaux nobles**, dont l'énergie de première ionisation est inférieure à celle de l'hydrogène. Cela signifie qu'ils s'oxydent difficilement et se lient rarement à d'autres éléments. Ces éléments sont souvent rares, et donc chers (ex : or, argent, platine ...).
- Les **métaux non-nobles**, leur énergie de première ionisation est inférieure à celle de l'hydrogène. Ils s'oxydent à l'air libre plus facilement que les métaux nobles.

II-2) Les métaux de transition :

Existe-t-il ainsi trois différentes séries de métaux de transition. La première série contient les métaux les plus utilisés.

Ces éléments forment des liaisons par l'intermédiaire de leurs électrons de valence dans les orbitales «s» et «d». À partir de 6 électrons dans les orbitales d, des doublets d'électron commencent à se former, réduisant leur capacité à former des liaisons

Sc , Ti , V , Cr , Mn , Fe , Co , Ni , Cu , Zn	Z= 21 à 30
Y , Zr , Nb , Mo , Tc , Ru , Rh , Pd , Ag , Cd	Z= 39 à 48
La , Hf , Ta , W , Re , Os , Ir , Pt , Au , Hg	Z= 57,72 à 80

Figure II -1 : La passerelle des métaux de transition

Quand on examine la configuration électronique des éléments de transition, on remarque que les états «s» commencent à être occupés avant que les états «d» ne seaturent, exemple le titane Ti ($3d^2 4s^2$) et le cobalt Co ($3d^7 4s^2$)

Ces états « d » dans les métaux de transition sont d'une énergie comparable à celles des états « s » de valence, ils se comportent pratiquement comme des états intermédiaires entre les états « s » de valence et les électrons de cœur.

II-2-1) Structure électronique :

On peut définir les éléments de transition comme des éléments à couche d incomplète (dans l'un de leurs états d'oxydation). Il y a 5 orbitales d donc 10 éléments par ligne (3d, 4d, 5d). La configuration électronique de l'état fondamental est indiquée dans les trois tableaux

Pour chaque élément de transition. Les configurations électroniques sont le plus souvent $3d^n 4s^2$, $4d^n 5s^2$ et $5d^n 6s^2$. Mais les configurations stabilisées par interaction d'échange (l'état fondamental est l'état de spin maximal) interviennent pour le chrome $3d^5 4s^1$, le cuivre $3d^{10} 4s^1$, l'or $5d^{10} 6s^1$. Ce que l'on traduit souvent par : un niveau d'énergie à moitié rempli ou totalement rempli a une très grande stabilité. Mais il existe des cas plus nombreux « d'exceptions » en $5s^1$ dans la deuxième ligne. D'une façon générale, les orbitales d sont accessibles et participent à l'établissement de « liaisons de coordination ». L'énergie du champ des ligands est extrêmement importante pour la réactivité et les propriétés des éléments de transition. Les bons nombres quantiques pour décrire l'état fondamental des éléments de transition sont L et S mais le couplage spin-orbite augmente avec Z [2].

II-2-1-1) Métaux 3d :

<i>Élément</i>	<i>Symbole/ Numéro atomique</i>	<i>Configuration électronique</i>	<i>Degrés d'oxydation Principaux</i>	<i>Abondance (croue terrestre / ppm *)</i>
Scandium	Sc 21	[Ar] 3d ¹ 4s ²	+3	25, 31ème
Titane	Ti 22	[Ar] 3d ² 4s ²	+2 +3, +4	6320, 9ème
Vanadium	V 23	[Ar] 3d ³ 4s ²	de +2 à +5	136, 19ème
Chrome	Cr 24	[Ar] 3d ⁵ 4s ¹	de +2 à +6	122, 21ème
Manganèse	Mn 25	[Ar] 3d ⁵ 4s ²	de +2 à +7	900, 12ème
Fer	Fe 26	[Ar] 3d ⁶ 4s ²	de +2 à +6	50000, 4ème
Cobalt	Co 27	[Ar] 3d ⁷ 5d ¹ 4s ²	de +2 à +5	29, 30ème
Nickel	Ni 28	[Ar] 3d ⁸ 4s ²	de +2 à +4	99, 22ème
Cuivre	Cu 29	[Ar] 3d ¹⁰ 4s ¹	de +1 à +3	68, 25ème
Zinc	Zn 30	[Ar] 3d ¹⁰ 4s ²	+2	76, 24ème

II-2-1-2) Métaux 4d :

<i>Élément</i>	<i>Symbole/ Numéro atomique</i>	<i>Configuration électronique</i>	<i>Degrés d'oxydation Principaux</i>	<i>Abondance (croute terrestre / ppm *)</i>
Yttrium	Y 39	[Kr] 4d ¹ 5s ²	+3	31, 29ème
Zirconium	Zr 40	[Kr] 4d ² 5s ²	+2 +3, +4	162, 18ème
Niobium	Nb 41	[Kr] 4d ⁴ 5s ¹	de +2 à +5	20, 32ème
Molybdène	Mo 42	[Kr] 4d ⁵ 5s ¹	de +2 à +6	1,2, 55ème
Technecium	Tc 43	[Kr] 4d ⁵ 5s ²	de +2 à +7	-
Ruthénium	Ru 44	[Kr] 4d ⁷ 5s ¹	de +2 à +8	10 ⁻⁴
Rhodium	Rh 45	[Kr] 4d ⁸ 5s ¹	de +2 à +6	10 ⁻⁴
Palladium	Pd 46	[Kr] 4d ¹⁰	0, +2, +4	1,5. 10 ⁻²
Argent	Ag 47	[Kr] 4d ¹⁰ 5s ¹	de +1 à +3	8. 10 ⁻²
Cadmium	Cd 48	[Kr] 4d ¹⁰ 5s ²	+2	16. 10 ⁻²

II-2-1-3) Métaux 5d :

<i>Élément</i>	<i>Symbole/ Numéro atomique</i>	<i>Configuration électronique</i>	<i>Degrés d'oxydation Principaux</i>	<i>Abondance (croûte terrestre / ppm *)</i>
Lanthane	La 57	[Xe] 5d ¹ 6s ²	+3	35, 28ème
Hafnium	Hf 72	[Xe] 5d ² 6s ²	+2 +3, +4	2,8, 44ème
Tantale	Ta 73	[Xe] 5d ³ 6s ²	de +2 à +5	1,7, 52ème
Tungstène	W 74	[Xe] 5d ⁴ 6s ²	de +2 à +6	1,2, 55ème
Rhénium	Re 75	[Xe] 5d ⁵ 6s ²	de +2 à +7	10 ⁻³
Osmium	Os 76	[Xe] 5d ⁶ 6s ²	de +2 à +8	5. 10 ⁻³
Iridium	Ir 77	[Xe] 5d ⁷ 6s ²	de +2 à +6	10 ⁻³
Platine	Pt 78	[Xe] 5d ⁹ 6s ¹	0, +2, de +4 à +6	10 ⁻²
Or	Au 79	[Xe] 5d ¹⁰ 6s ¹	+1, +3, +5	4.10 ⁻³
Mercure	Hg 80	[Xe] 5d ¹⁰ 6s ²	+1, +2	8. 10 ⁻²

N.B Les chiffres – les estimations – varient d'une source à une autre. Ces données, en partie réactualisées proviennent de W.S. Fyfe, Geochemistry, Oxford University Press 1974 [3].

II-2-2) Propriétés physiques des métaux de transition :

II-2-2-1) Les propriétés structurales :

Les métaux de transition se présentent suivant trois structures principales, la structure cubique centrée, la structure cubique à faces centrées et la structure hexagonale compacte.

Les éléments des colonnes *VA* et *VIA* cristallisent dans la structure cubique centrée, dont chaque atome est entouré de huit proches voisins. Les coordonnées dans la maille élémentaire sont : (0, 0,0) ; (1/2,1/2,1/2), la distance entre deux proches voisins est $\sqrt{3}/2$, cette structure correspond au groupe spatial F43m qui fait intervenir 24 opérations de symétries.

D'autres éléments de transition et plus particulièrement ceux de la huitième colonne du groupe des éléments de transition (Ni, Pd, Pt) cristallisent dans une structure cubique à

faces centrées dont la base comporte des atomes ayant les positions $(0, 0, 0)$; $(1/2, 1/2, 0)$; $(1/2, 0, 1/2)$ et $(0, 1/2, 1/2)$

On note également les colonnes IIIA et IVA qui cristallisent dans une structure hexagonale compacte dont les atomes de la maille élémentaire occupent les positions $(0, 0, 0)$ et $(1/2, 2/3, 1/3)$. Le groupe d'espace correspondant est P_{63m} .

D'après le **tableau II.1**, on remarque que les éléments des séries 3d, 4d et 5d se trouvant dans une même colonne possèdent la même structure cristalline, ceci se produit pour tous les éléments, à l'exception du Fe et du Co qui cristallisent respectivement dans les structures cc et hcp. Cette caractéristique est généralement due à la présence du magnétisme dans les métaux de transition la série 3d [4], et qui a été interprété à partir de la théorie de bandes canonique [4].

Sc hcp 3,31 5,27	Ti hcp 2,95 4,68	V cc 3,08	Cr cc 2,88	Mn cubique compl.	Fe cc 2,07	Co hcp 2,51 4,07	Ni cfc 3,52	Cu cfc 3,61	Zn hcp 2,66 4,95
Y hcp 3,65 5,73	Zr hcp 3,23 5,15	Nb cc 3,30	Mo cc 3,15	Tc hcp 2,74 4,40	Ru hcp 2,71 4,28	Rh cfc 3,80	Pd cfc 3,89	Ag cfc 4,09	Cd hcp 2,98 5,62
La hcp 3,77	Hf hcp 3,19 5,05	Ta cc 3,30	W cc 3,16	Re hcp 2,76 4,46	Os hcp 2,74 4,32	Ir cfc 3,84	Pt cfc 3,92	Au cfc 4,08	Hg Rhomb

Tableau II.1 : Les structures cristallines et le paramètre de réseau des métaux de Transition

II-2-2-2) Les propriétés électroniques :

Dans l'étude des métaux de transition, il convient d'étudier la structure électronique à partir de laquelle on détermine les caractéristiques du matériau notamment la largeur de la bande «d» et sa position.

Dans la structure cubique centrée la largeur de la bande «d» représente la différence d'énergie entre le niveau d'énergie H12 et H25 [5], tandis que pour la structure cubique à

faces centrées elle se déduit par la différence des niveaux x_1 et x_5 [4]. En général la largeur de cette bande varie de 5 à 10 *ev*.

Une analyse détaillée des métaux de transition a montré l'existence d'importantes irrégularités, dans la densité d'états, nous notons :

Pour les métaux de transition, dont la phase d'équilibre est une structure cubique à faces centrées, l'existence d'un pic de densité d'états près de haut de la bande, explique la stabilité de la structure [6]

Tandis que pour les métaux de transition qui possèdent une phase d'équilibre cubique, on note l'existence d'un minimum de densité d'états, séparant la bande «d» en deux parties, ce minimum est confirmé par les mesures de la chaleur spécifique. Il correspond physiquement à une fonction d'onde liante pour la demie bande inférieure et une fonction antiliante pour la demie bande supérieure, ceci se produit du fait que le couplage spin orbite entraîne un élargissement de la structure de bande sans modification du centre de gravité de $n(E)$, il peut même introduire une bande d'énergie interdite dans la densité d'états [4].

II-2-3) Les métaux de transition magnétiques :

Les ions des éléments de transition possèdent des propriétés magnétiques tout à fait remarquables qui tiennent à leur structure électronique. L'état fondamental de l'ion libre peut être trouvé grâce aux trois règles de Hund. L'état fondamental est $2S + 1L$ (plus grand S et plus grand L des états possibles, règles de Hund N°1 et 2). En introduisant le couplage spin-orbite, l'état $2S + 1LJ$ le plus stable est celui de J minimum pour une couche dn avec $n \leq 5$ et celui de J maximum pour une couche d n avec $n > 5$ (règle de Hund N°3). On peut décrire les propriétés magnétiques par le moment magnétique $m_e = g [J(J + 1)]^{1/2}$ (exprimé en magnéton de Bohr) avec $g = 1 + [J(J + 1) + S(S + 1) - L(L + 1)]/[2J(J + 1)]$. Cependant, pour de nombreux éléments, le moment orbital L est bloqué. Le moment magnétique s'exprime alors en fonction du seul spin S , $m_e = g[S(S+1)]^{1/2}$ et le couplage spin-orbite augmente avec Z . Les complexes polynucléaires présentent des propriétés magnétiques originales qui sont partie intégrante d'une discipline en développement, le magnétisme moléculaire.

Bibliographie :

- [1] : Missoum Souad, Etude des propriétés Electroniques, Structurales et Elastiques des Métaux de transition : le NICKEL (Ni) et le Niobium (Nb), Magister en Physique Electronique, 2001
- [2] P. Weiss. J. Phys Rad., 4:469, (1907).
- [3] Benchikh Somia, Dr. Boukelkoul Mebarek, « Etude théorique des propriétés Structurales et magnéto-optique dans le film ultra-mince Fe_n/Cu (001) » mémoire de Master ,2017.
- [4] : Lindsey Smith, " A tutorial on Principal Component Analysis», (2002).
- [5] : M. F. Harkat, "Détection et localisation de défauts par Analyse en Composantes Principales ", Thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (2003).
- [6] SAIDI AICHA Mr H. AOURAG «L'évolution de l'élasticité dans les métaux de transition » mémoire de magister.

Chapitre III :

Les propriétés magnéto-optiques

III-1) Introduction :

Les applications de la magnéto-optique couvrent de nombreux domaines : télécommunications optiques, stockage de l'information, mémoires, visualisation et capteurs. Ainsi, l'utilisation de dispositifs non réciproques miniaturisés, tels que les isolateurs ou les circulateurs, permettent, par analogie avec les systèmes hyperfréquences guidés de remplir de nouvelles fonctions reposant sur des liaisons optiques.

Les travaux [1-3] concernant les applications possibles des propriétés magnéto-optiques des matériaux ont été très nombreux ces dernières années et nous ne tenterons pas d'en faire une revue complète. Nous préférons essayer de dégager les tendances actuelles, et c'est pourquoi nous nous limiterons aux matériaux utilisables à température ambiante et présentant des effets magnéto-optiques importants. Ces matériaux sont, pour l'essentiel, des ferrites dans lesquels on a étudié largement les phénomènes de diffusion élastique et inélastique de la lumière. Seuls les phénomènes de diffusion élastique correspondent à des interactions fortes. Il en résulte qu'ils peuvent conduire à de nombreuses applications combinant les propriétés magnéto-optiques et magnétiques de la matière [4]

III-3-2) Définition :

L'ensemble des phénomènes résultant de l'interaction d'une onde électromagnétique avec la matière en présence d'un champ magnétique constitue la magnéto-optique. Faraday fut le premier à observer que lors de la transmission dans un matériau transparent d'une lumière polarisée linéairement et d'incidence normale, le plan de polarisation de cette lumière tournait d'un certain angle en présence d'un champ magnétique parallèle à la direction de propagation (effet Faraday, 1846) [5].

L'effet magnéto-optique correspond à une modification de la propagation d'une onde électromagnétique dans un matériau. Une onde électromagnétique est composée d'une onde magnétique et d'une onde électrique en phase et de vecteur polarisation perpendiculaire. L'onde électromagnétique a une distribution en fréquence très large qui contient la totalité des fréquences lumineuses. L'effet magnéto-optique correspond à la modification de la polarisation de cette onde électromagnétique lorsque celle-ci rentre en contact avec un matériau plongé dans un champ magnétique quasi statique. Il résulte d'une résonance ferromagnétique.

Il existe en fait différents effets magnéto-optiques qui dépendent de l'orientation du champ magnétique par rapport au vecteur de propagation de la lumière, de la polarisation de la lumière ainsi que de la méthode de mesure employée, à savoir, par transmission ou par réflexion. On distingue les effets magnéto-optiques du premier ordre, proportionnels à des termes impairs du champ magnétique, et ceux du second ordre, proportionnels à des termes pairs du champ magnétique.

III-3-3) Polarisation de la lumière :

La polarisation est une propriété de la lumière. Cette dernière est une onde électromagnétique se déplaçant dans le vide à la vitesse $c = 299\,792\,458\text{ m/s}$. Elle est composée d'un champ électrique (noté E) et d'un champ magnétique (noté B), orthogonaux. À travers les équations de Maxwell, les champs E et B sont liés : la connaissance de l'un suffit pour connaître l'autre. Aussi, pour simplifier et c'est aussi la convention choisie en polarimétrie on ne raisonne que sur le champ E .

Un état de polarisation est caractérisé par l'évolution au cours du temps du champ électrique dans un plan d'onde. Plus précisément, on étudie le mouvement de l'extrémité du vecteur $\vec{E}$ au point arbitraire P , de coordonnée z sur l'axe de propagation telle que $k_0 z \phi x = 0$.

On distingue trois types de polarisation :

III-3-3-1) Polarisation elliptique :

Lorsque les quantités E_{px} , E_{py} et ϕ n'ont pas de valeurs singulières, l'extrémité P du vecteur $\vec{E}$ décrit, dans le plan d'onde oxy , une ellipse inscrite dans un rectangle de côtés $2.E_{px}$ et $2.E_{py}$ (Figure III-1).

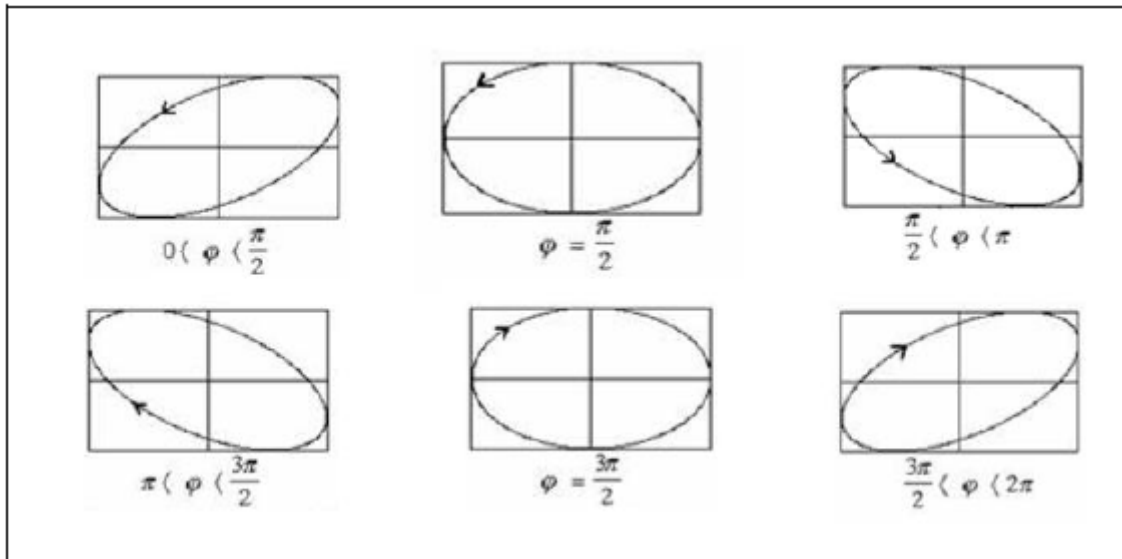


Figure III-1 : Onde polarisée elliptiquement

N.B : Toute polarisation elliptique se décompose en deux ondes rectilignes dont les axes orthogonaux peuvent être pris arbitrairement.

III-3-3-2) Polarisation circulaire :

Elle apparaît lorsque $\varphi = \frac{\pi}{2}$

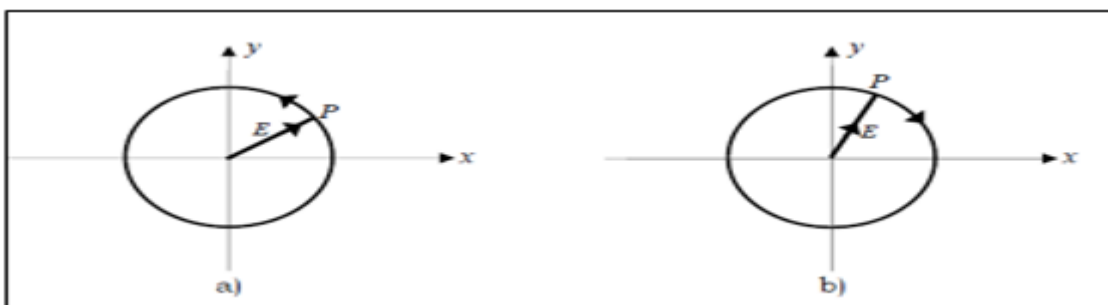


Figure III-2 : Onde polarisée circulairement : **a)** à gauche, **b)** à droite

III-3-3- 3) Polarisation linéaire :

Les deux composantes sont soit en phase ($\varphi = 0$) soit en opposition phase ($\varphi = \pi$) et le champ électrique garde une direction fixe dans l'espace (Figure 3). On dit que la polarisation est linéaire.

La structure d'une onde plane progressive sinusoïdale polarisée linéairement est alors très simple, car les champs E et B gardent une direction fixe dans l'espace au cours de la propagation.

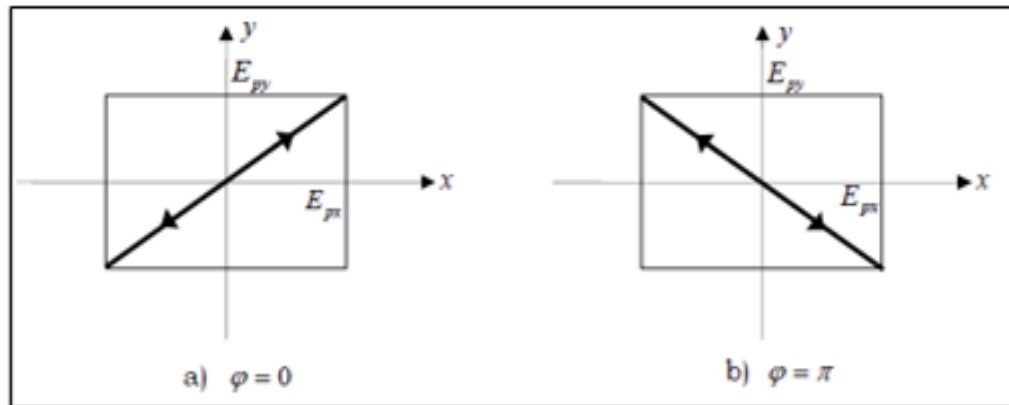


Figure III -3 : Onde polarisée linéairement résultante d'une somme de deux ondes circulairement polarisées : a) en phase, b) en opposition de phase.

III-3-4) Effets magnéto-optique :

Les effets magnéto optiques résultent de l'interaction des radiations avec des matériaux aimantés spontanément ou soumis à un champ magnétique externe.

Cette interaction conduit à deux phénomènes :

- ✓ Un changement de l'état de polarisation de la lumière en réflexion ou en transmission qui conduit respectivement à **l'effet Kerr** et **l'effet Faraday**.
- ✓ La différence de la section efficace d'absorption des radiations polarisées circulairement à gauche et à droite qui conduit au phénomène de **Dichroïsme circulaire**.

III-3-4-1) Effet Kerr magnéto-optique MOKE

La magnéto-optique étudie l'interaction entre la matière aimantée et les ondes électromagnétiques. Les premiers effets magnéto optiques ont été mis en évidence par Michael

Faraday (1846) [5] qui observa la modification de l'état de polarisation d'une onde incidence lorsqu'elle traverse un milieu aimant. Quelques années plus tard John Kerr (1877) [6-7] observa également cette modification, mais par réflexion sur un miroir de fer aimanté. On distingue les effets magnéto optiques en transmission, aussi connus sous l'appellation effet

Faraday et les effets en réflexion qui porte l'acronyme MOKE (Magneto Optic Kerr Effect). On distingue 3 types d'effet Kerr suivant l'orientation de l'aimantation par rapport au plan d'incidence et au plan de réflexion [8-9-10] (Figure III- 4).

III-3-4-2) L'effet Kerr polaire :

L'onde lumineuse incidente arrive perpendiculairement à la surface de l'échantillon et le champ magnétique extérieur est lui aussi appliqué perpendiculairement à l'échantillon. Dans cette configuration, l'état de polarisation de la lumière réfléchi ne dépend que de la composante normale (hors du plan) de l'aimantation du matériau étudié. L'aimantation est perpendiculaire à l'échantillon et dans le plan d'incidence (**figure III.4.a**)

III-3-4-3) L'effet Kerr longitudinal :

Le faisceau lumineux est dirigé en incidence rasante avec la surface de l'échantillon. Le champ magnétique extérieur est aligné avec le vecteur d'onde $\vec{K}$ de la lumière. Dans cette configuration, seule la composante longitudinale de l'aimantation alignée avec $\vec{K}$ est susceptible de modifier l'état de polarisation de la lumière. L'aimantation est dans le plan de l'échantillon et dans le plan incidence (**figure III.4.b**)

III-3-4-4) L'effet Kerr transverse :

Le faisceau lumineux est dirigé en incidence rasante avec la surface de l'échantillon. Le champ magnétique extérieur est appliqué perpendiculairement avec le vecteur d'onde $\vec{K}$ de la lumière. De la même manière que précédemment, seule la composante de l'aimantation alignée avec $\vec{K}$ pourra être sondée. L'aimantation est dans le plan de l'échantillon et perpendiculaire au plan d'incidence (**Figure III.4.c**)

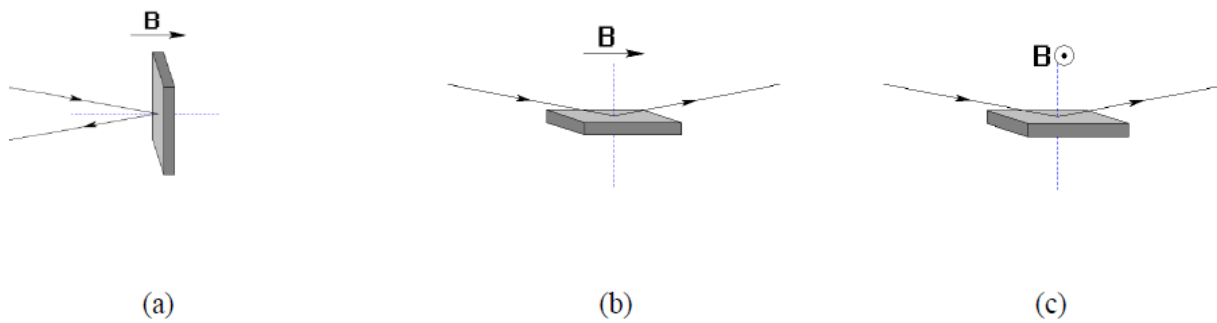


Figure III.4 : Configuration Kerr magnéto-optique typiques : (a) configuration polaire, (b) configuration longitudinale et (c) configuration transverse.

Dans le cas des configurations polaire et longitudinale, l'onde électromagnétique polarisée linéairement se transforme en une onde elliptique après réflexion sur le milieu aimanté.

L'effet Kerr transverse entraîne non pas une modification de la polarisation de l'onde incidente, mais un changement de sa réflectivité.

III-3-5) Effet Faraday :

En physique, l'effet Faraday décrit l'interaction entre la lumière et un champ magnétique dans un matériau : la polarisation de la lumière effectue une rotation proportionnelle à la composante du champ magnétique sur la direction de propagation de la lumière.

L'effet Faraday est un effet magnéto-optique découvert par Michael Faraday. Il apparaît dans la plupart des matériaux diélectriques transparents lorsqu'ils sont soumis à des champs magnétiques. Ce fut la première mise en évidence du lien entre magnétisme et lumière : le fait que la lumière contienne un champ magnétique fait maintenant partie de la théorie du rayonnement électromagnétique, développé par James Clark Maxwell dans les années 1860 et 1870.

L'effet Faraday est le résultat d'une résonance ferromagnétique. Cette résonance implique qu'en décomposant la polarisation de la lumière en deux polarisations circulaires

tournant en sens contraire, ces deux composantes se propagent à des vitesses différentes, donnant ainsi un pouvoir rotatoire au matériau. Il apparaît alors un déphasage entre ces deux composantes. La conséquence principale est qu'un rayon lumineux entrant avec une polarisation rectiligne dans le milieu considéré ressort avec une orientation de sa polarisation différente

L'effet Faraday est notamment utilisé en astrophysique et en cosmologie pour mesurer des champs magnétiques.

Ce phénomène est expliqué par le fait que les indices de réfraction n_+ et n_- et pour la lumière polarisée circulairement droite et gauche dans une substance inactive, deviennent différents l'un de l'autre lorsque cette dernière est soumise à un champ magnétique.

La lumière polarisée linéairement peut-être représentée comme une superposition de deux ondes l'une polarisée circulairement droite et l'autre polarisée circulairement gauche. Par conséquent lorsqu'une lumière polarisée linéairement traverse un matériau aimanté ou soumis à un champ magnétique de sorte que $n_{\pm} \neq$ les deux ondes polarisées circulairement (droite, gauche) vont se propager avec deux vitesses différentes $\frac{c}{n_+}$ et $\frac{c}{n_-}$.

Alors le plan de polarisation va subir une rotation d'un angle θ_F donné par l'expression :

$$\theta_F = \frac{\omega}{2c}(n_+ - n_-).L$$

Où L et c sont respectivement la fréquence et la vitesse de la lumière.

L : est le chemin optique des faisceaux lumineux dans le milieu considéré.

La rotation Faraday θ_F et l'ellipticité η sont définies en utilisant les mêmes conventions adoptées pour l'effet Kerr polaire.

Pour les petits angles, l'expression de l'effet Faraday est donnée par

$$\phi_F = \theta_F + i\eta_F \approx \frac{i\varepsilon_{xy}}{\varepsilon_{xx}} \frac{\omega L}{2c} = \frac{\sigma_{xy}}{\sqrt{1 + \frac{4\pi i}{\omega} \sigma_{xx}}} \left(\frac{2\pi L}{c} \right)$$

Dans la géométrie longitudinale, l'effet Faraday est donné par l'expression

$$\phi_F = \theta_F + i\eta_F \approx \frac{i\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}} \frac{\omega L}{2c} \tan \varphi_l$$

Où φ_l est l'angle de réfraction [4]

III-3-6) Dichroïsme magnétique circulaire des rayons X : XMCD :

Lors de l'interaction rayonnement-matière au minimum trois possibilités se présentent : aucune interaction, absorption du photon, stimulation d'émission. Un photon incident absorbé entraîne une transition électronique d'un état d'énergie E_1 vers un état d'énergie E_2 si certaines conditions sont remplies, notamment sur son énergie : il faut que l'énergie $h\nu$ du photon satisfasse la relation $h\nu \approx E_2 - E_1$. Cette seule condition de conservation de l'énergie n'est pas suffisante pour assurer une probabilité significative au processus. Les nombres quantiques (n, l, m, s) associés aux états électroniques initial et final doivent pour cela satisfaire des « règles de sélection ». La plus connue et la plus critique est celle qui assure la conservation du moment cinétique total du système, elle s'écrit : $\Delta J = 0, \pm 1$. Si le système est placé dans un champ magnétique, la dégénérescence éventuelle des niveaux électroniques peut être levée. L'absorption de photons polarisés circulairement se fait alors si une seconde règle de sélection est vérifiée : $\Delta m = \pm 1$. Cette différence d'absorption qui est fonction de la polarisation circulaire des photons incidents s'appelle dichroïsme magnétique circulaire. Dans le cas des métaux de transition et des terres rares, les éléments les plus impliqués dans les systèmes magnétiques, les photons ont des énergies dans le domaine des rayons X, entre 350eV et quelques keV, d'où le « X » de XMCD. Les règles de sélection pour une transition mono-électronique sous champ magnétique s'écrivent donc :

$$\Delta l = \pm 1, \Delta s = 0, \Delta J = 0, \pm 1, \Delta m = \pm 1$$

Avec $\Delta m = +1$ pour une hélicité droite, $\Delta m = -1$ pour une hélicité gauche. On peut encore noter que les interactions (absorption et émission de photon) pour lesquelles $\Delta l = +1$ sont très nettement plus fréquentes (un ordre de grandeur).

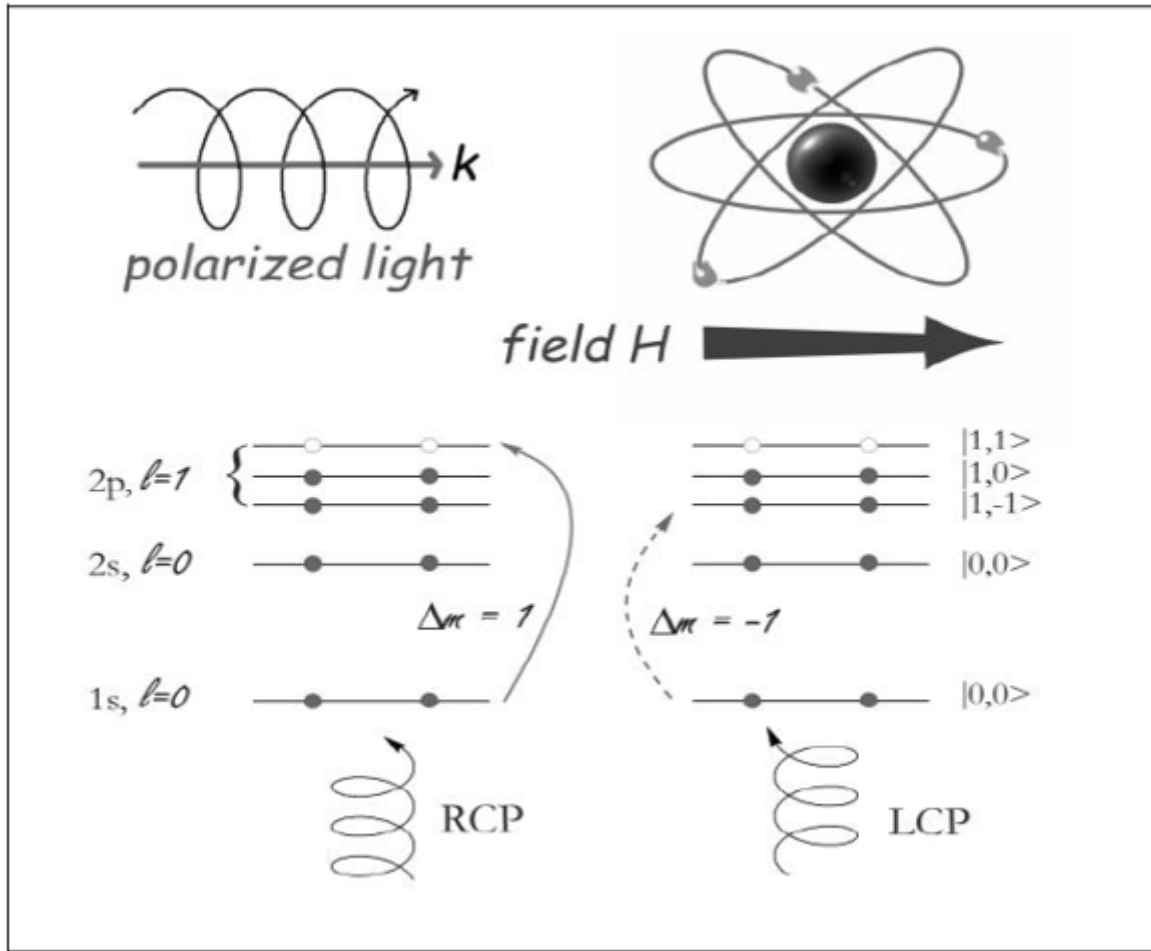


Figure III- 5 : Règle de sélection de transition.

Bibliographies

- [1] LANDAU, L. D., LIFSHITZ, E. M., Electro-dynamics of continuous Media. Reading, Mass. Adison-wesley (1960).
- [2] FREISER, M. J., IEEE Trans. Magn. 4 (1968) 152.
- [3] C0152URE, P., Note LETI-CRM n° 752 (1970).
- [4] Dr. BOUKELKOUL MEBAREK « Propriétés magnéto-optiques des couches ultraminces et des slabs à base de métaux de transition » thèse doctorat, 2013.

- [5] S.D. Bader, E.R. Moog et P. Grunberg : Magnetic hysteresis of epitaxially-deposited iron in the monolayer range a kerr effect experiment in surface magnetism. J. Magn. Magn Mater., 53 (4) : L295-L298, 1986.
- [6] Kittel C. Physique de l'état solide, 5^e — ème edition. Paris : Dunod, 1983, pp.433-496.
- [7] Jiles. D. Introduction to magnetism and magnetic materials. LONDON : Chapman & Hall, 1991, p.440.
- [8] S.C. Shin, J.W. Lee, S.K. Kim, and J. Kim, Appl. Phys. Lett., 81(1), 91 (2002).
- [9] J.- W. Lee, S.- K. Kim, J.- R. Jeong, J. Kim, and S. C. Shin, IEEE Trans. Magn., 37, 4 (2001).
- [10] J. - W. Lee, J. Kim, S. - K. Kim, J. - R. Jeong, and S. C. Shin, Phys. Rev. B, 65, 144437 (2002).

Chapitre IV :
Formalisme théorique

IV-1) Introduction :

À l'échelle atomique dans le solide, les électrons et les noyaux sont des particules élémentaires et leur comportement est décrit par les lois de la mécanique quantique.

Dans un système qui possède quelques atomes avec chacun quelques électrons, il est possible de résoudre l'équation de Schrödinger, mais lorsqu'on parle d'une échelle plus grande, ce calcul devient très compliqué et a mené les scientifiques à revoir le problème quantique à N particules

Le calcul sur un système physique et déterminer ses propriétés est de nos jours une tâche rarement accomplie avec perfection. En tenant compte de la complexité de la plupart des systèmes à étudier, avoir recours aux approximations est donc inévitable, car c'est la seule manière de conditionner les problèmes étudiés aux outils disponibles.

La DFT est une reformulation du problème quantique à N corps en un problème portant uniquement sur la densité électronique. Aujourd'hui, la DFT constitue l'une des méthodes les plus utilisées pour les calculs quantiques de structure électroniques du solide. La réduction du problème qu'elle apporte permet de rendre accessible au calcul l'état fondamental d'un système comportant un important nombre d'électrons [1].

IV-2) Approximations fondamentales :

La structure géométrique, les modes de vibration ainsi que d'autres observables décrivent de la structure électronique du système étudié à « N électrons » et « M noyaux ». La mécanique classique reste insuffisante et il faut faire appel à la mécanique quantique dont la base est la résolution de l'équation de Schrödinger. Cette structure électronique se déduit de l'équation de Schrödinger multiélectronique indépendante du temps.

$$H | \psi \rangle = E | \psi \rangle \quad \text{(IV-1)}$$

Avec :

H : L'opérateur Hamiltonien

ψ : La fonction d'onde du système

E : Son énergie propre.

En réalité, la simplicité de cette formulation cache plusieurs problèmes insolubles. Pour ce fait plusieurs approximations ont été développées [2]. Nous détaillons certaines d'entre elles au

cours des paragraphes suivants, en particulier celles que nous avons employées, issues de DFT.

IV-2-1) L'expression de l'hamiltonien :

D'une manière générale, on cherche à modéliser un système quantique formé de N_n noyaux (situés en R , de charge Z et de masse M), et de N_e électrons (situés en r) en interaction coulombienne. On détermine l'état fondamental d'un système quantique en résolvant l'équation de Schrödinger sous la forme suivante :

$$H\psi(R, r) = E\psi(R, r) \quad (\text{IV-2})$$

Où la fonction d'onde est associée au niveau d'énergie E , H est l'opérateur Hamiltonien du système $\{N_n \text{ noyaux} + N_e \text{ électrons}\}$, sa forme est :

$$H = T + V \quad (\text{IV-3})$$

Les approximations portent soit sur l'hamiltonien lui-même cas de la méthode des perturbations, soit sur la forme de la fonction d'onde qui doit satisfaire certaines conditions physiques et c'est le cas de la méthode des variations. Un cristal est constitué d'un très grand nombre de particules en interaction, les électrons et les noyaux atomiques, de sorte que le calcul des états d'énergie du système passe nécessairement par un certain nombre d'hypothèses en vue de le simplifier. L'Hamiltonien total du système s'écrit :

$$H = T_e + T_n + V_{ee} + V_{en} + V_{nn} \quad (\text{IV-4})$$

Où T_e et T_n représentent les énergies cinétiques des électrons et des noyaux respectivement.

V_{ee}, V_{en}, V_{nn} Les énergies d'interaction électron-électron, électron-noyau et noyau-noyau respectivement.

La première approximation consiste à limiter les interactions entre particules au terme le plus important que constitue l'interaction coulombienne. L'Hamiltonien du système s'écrit alors [3] :

$$H = - \sum_i \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 - \sum_K \frac{\hbar^2}{2M} \nabla_K^2 + \sum_{i>j} \frac{e^2}{|r_i - r_j|} - \sum_{i,K} \frac{Z_K e^2}{|R_K - r_i|} + \sum_{i<j} \frac{Z_K Z_J e^2}{|R_K - R_J|} \quad (\text{IV-5})$$

Où les indices i, j, k, J se rapportent respectivement aux électrons et aux noyaux, et

Z Représente la charge nucléaire.

IV-2-2) Approximation de Born Oppenheimer :

Les électrons et les noyaux atomiques ont des masses très différentes de sorte que l'on peut utiliser l'approximation de Born-Oppenheimer pour séparer l'équation aux valeurs propres des noyaux de celle des électrons. Les états propres du système sont alors caractérisés par des fonctions d'onde produit d'une fonction d'onde électronique par une fonction d'onde nucléaire [4]

$$\psi(R, r) = \psi_n(R)\psi_e(R, r) \quad (\text{IV-6})$$

L'équation de Schrödinger s'écrit :

$$[T_e + T_n + V_{ee} + V_{en} + V_{nn}] \psi_n(R)\psi_e(R, r) = E \psi_n(R)\psi_e(R, r) \quad (\text{IV-7})$$

Et se ramène à deux équations interdépendantes :

$$(T_e + V_{ee} + V_{en}) \psi_n(R)\psi_e(R, r) = E_e \psi_n(R)\psi_e(R, r) \quad (\text{IV-8})$$

$$[T_n + V_{nn} + E_e(R)] \psi_n(R) = E \psi_n(R) \quad (\text{IV-9})$$

Où $E_e(R)$ est l'énergie électronique qui définit ainsi la surface d'énergie potentielle pour les noyaux dans l'équation (III-8). Cette approximation adiabatique réduit le problème à plusieurs corps, mais le problème électronique demeure impossible à résoudre exactement, même par voie numérique. Face à cette difficulté, de plus amples développements sont requis : la théorie de Hartree-Fock et la Théorie de la Fonctionnelle de la Densité (Density Functional Theory : DFT).

IV-2-3) Approximation à un électron :

Les interactions à n corps, demeure un problème difficile à résoudre. Afin de le simplifier, on se place dans l'approximation à un électron qui consiste à faire une moyenne des interactions individuelles électron-électron et considérer que chaque électron évolue dans un potentiel moyen résultant de la présence de l'ensemble des autres électrons (Mean Field Theory)

IV-2.4) Approximation de Hartree :

Malgré que l'approximation de Born-Oppenheimer a traité la partie électronique seulement, nous sommes devant un problème à N corps à cause du terme d'interaction

électron. Elle ne peut pas être résolue exactement que pour un seul électron. Douglas Hartree

(1927) [5] proposa une méthode permettant de calculer les fonctions d'onde et les énergies approchées d'ions et d'atomes. Pour cela, l'idée de base de cette approximation consiste à considérer que les électrons se déplacent indépendamment les uns des autres, leur mouvement est décorrélé. Ainsi, si on considère deux électrons 1 et 2, la probabilité de présence de l'électron de coordonnées r_1 dans l'orbitale 1 est indépendante de celle de l'électron de coordonnées r_2 .

L'Hamiltonien d'un tel système s'écrit :

$$H = \sum_{i=1}^N h(i) \quad (\text{IV-10})$$

Où h est le Hamiltonien mono-électronique.

La fonction d'onde électronique qui permet de résoudre ce Hamiltonien est constituée d'un produit mono-électronique. Elle est appelée produit de Hartree [6,7] (Hartree Product (HP)) :

$$\Psi(R, r) = \prod_{i=1}^N \phi_i(R, r) \quad (\text{IV-11})$$

$\phi_i(R, r)$ Vérifie l'équation :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i + V_{eff} \right) \phi_i(R, r) = E_i \phi_i(R, r) \quad (\text{IV-12})$$

L'expression de V_{eff} (potentiel de Hartree) est donnée en utilisant la méthode des variations.

$$\langle H_e \rangle = \frac{\langle \Psi | H_e | \Psi \rangle}{\langle \Psi | \Psi \rangle} = \langle H_e \rangle_{\Psi} \quad (\text{IV-13})$$

On a :

$$H_e = T_e + V_{en} + V_{ee} = \sum_i \frac{-\hbar^2}{2m_i} \Delta_i - \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_i \sum_K \frac{Ze^2}{|r_i - R_K|} + \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_i \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{|r_i - r_j|} \quad (\text{IV-14})$$

Posons :

$V_i^N = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_K \frac{Ze^2}{|r_i - R_K|}$: Potentiel d'interaction de l'électron i avec les noyaux. Compte tenu des considérations suivantes :

- $-\sum_i \frac{\hbar^2}{2m_i} \Delta_i$ et $\sum_i V_i^N$ agissent sur $|\phi_i\rangle$

- $\frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_i \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{|r_i - r_j|}$ agit sur $|\phi_i \phi_j\rangle$ et $\langle \phi_i \phi_j |$

On obtient :

$$\langle \psi | = \sum_i \langle \phi_i | \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i - V_i^N + \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j} \langle \phi_i | \left(\frac{e^2}{|r_i - r_j|} \right) | \phi_j \rangle \right] | \phi_i \rangle \quad (\text{IV-15})$$

Donc l'énergie d'un électron i est donnée par :

$$E_i = \langle \phi_i | \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i - V_i^N + \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j} \langle \phi_i | \left(\frac{e^2}{|r_i - r_j|} \right) | \phi_j \rangle \right] | \phi_i \rangle \quad (\text{IV-16})$$

D'où

$$E_i \langle \phi_i | = \langle \phi_i | \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i - V_i^N + \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j} \langle \phi_i | \left(\frac{e^2}{|r_i - r_j|} \right) | \phi_j \rangle \right] | \phi_i \rangle \quad (\text{IV-17})$$

Le potentiel de Hartree est donné par l'expression :

$$V_{eff} = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_i - V_i^N + \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j} \langle \phi_i | \left(\frac{e^2}{|r_i - r_j|} \right) | \phi_j \rangle \right] \quad (\text{IV-18})$$

Cette approximation est basée sur l'hypothèse d'électrons libres ce qui ne prend pas en considération les interactions entre les électrons et des états de spin. Un grand mérite de cette approche est d'avoir proposé une solution auto-cohérente au problème du système électronique [8]. Elle a quatre conséquences importantes :

- ✓ La répulsion coulombienne totale V_{ee} du système électronique est surestimée.
- ✓ Simple à résoudre, mais ne donne pas de très bons résultats.
- ✓ Chaque électron ressent sa propre charge.
- ✓ Le principe d'exclusion de Pauli n'est pas pris en compte

Une fonction d'onde plus raisonnable doit être antisymétrique lorsqu'on fait un échange de deux électrons [9]. Cette dernière conséquence étant plus grave, l'approximation de « Hartree- Fock » [10] prend en compte du spin pour la résolution de l'équation de Schrödinger.

IV-2-5) Approximation de Hartree-Fock

Le système électronique dans l'approximation de Hartree est non complètement décrit. En 1930, Fock [11] a montré que la fonction d'onde de Hartree (III-10) viole le principe

D'exclusion de Pauli parce qu'elle n'est pas antisymétrique par rapport à l'échange de deux électrons. Il a remplacé la fonction d'onde $\psi(r_1, r_2, \dots, r_N)$ par un déterminant de Slater [12].

$$\psi(r_1, r_2, \dots, r_N) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \phi_1(r_1) & \phi_1(r_2) & \dots & \phi_1(r_N) \\ \phi_2(r_1) & \phi_2(r_2) & \dots & \phi_2(r_N) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \phi_N(r_1) & \phi_N(r_2) & \dots & \phi_N(r_N) \end{vmatrix} \quad (\text{IV-19})$$

$\frac{1}{\sqrt{N!}}$ est La constante de normalisation de la fonction d'onde.

$$H_e = \sum_i \frac{-\hbar^2}{2m_i} \Delta_i - \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_i \sum_K \frac{Ze^2}{|r_i - R_K|} + \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \sum_i \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{|r_i - r_j|} V_{ij} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{|r_i - r_j|} \quad (\text{IV-20})$$

:(Interaction entre deux électrons).

$$V_i^N = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_K \frac{Ze^2}{|r_i - R_K|} \quad \text{:(Interaction entre l'électron } i \text{ et l'ensemble des noyaux).}$$

En tenant compte des permutations suivantes :

$\{\phi_i(r_i), \phi_j(r_j)\}$ et $\{\phi_i(r_j), \phi_j(r_i)\}$ Dans l'expression de $|\psi\rangle$ et $\langle\psi|$, on aura :

$$\langle\psi| H_e |\psi\rangle = \sum_i \left[\langle\phi_i| \left(-\frac{\hbar^2}{2me} \Delta_i - V_i^N + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \langle\phi_j(r_j)| V_{ij} |\phi_j(r_j)\rangle |\phi_j\rangle - \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \langle\phi_i(r_j) \phi_j(r_i)| V_{ij} |\phi_i(r_j) \phi_j(r_j)\rangle \right) \right] \quad (\text{IV-21})$$

Pour l'électron i on peut écrire :

$$E_i = \langle H_e^i \rangle = \sum_i \left[\langle\phi_i| \left(-\frac{\hbar^2}{2me} \Delta_i - V_i^N + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \langle\phi_j(r_j)| V_{ij} |\phi_j(r_j)\rangle |\phi_j\rangle - \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \langle\phi_i(r_j) \phi_j(r_i)| V_{ij} |\phi_i(r_j) \phi_j(r_j)\rangle \right) \right] \quad (\text{IV-22})$$

C'est l'équation de Hartree-Fock. Elle diffère de celle de Hartree par un terme supplémentaire appelé terme d'échange ayant la forme d'une intégrale.

Comme l'équation de Hartree-Fock n'est pas linéaire en $\phi(r)$ alors sa résolution est très difficile.

L'approximation de Hartree-Fock constitue le point de départ pour la plupart des autres méthodes qui permettent le calcul de la structure électronique d'un solide.

IV-3) la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) :

La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est une approche différente de celle de Hartree-Fock. Son idée est de considérer l'énergie de l'état fondamental comme une fonctionnelle de sa densité électronique $E[\rho]$ ainsi que toute observable relative à ce système. Cette théorie est sous-tendue par deux théorèmes proposés par Hohenberg et Kohn [2].

Pour résoudre l'équation de Schrödinger avec N électrons, on doit utiliser des méthodes approximatives qui permettent de reproduire plus exactement les quantités physiques contenant le plus d'informations. Il existe une théorie plus moderne, probablement plus puissante qui est la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT) permettant d'obtenir la densité électronique. Cette méthode est basée sur le postulat proposé par Tomas [13] et Fermi [14] qui ont tenté d'exprimer l'énergie totale d'un système en fonction de sa densité électronique en représentant son énergie cinétique selon une fonctionnelle de cette grandeur.

IV-3-1) La Densité électronique :

Les électrons sont définis comme étant des particules indiscernables et indissociables. Au tour de cette réalité, un électron ne peut être localisé au tant qu'une particule individuelle [15]. Chaque particule possède la probabilité de présence dans un élément de volume. La densité électronique est la probabilité de trouver l'un des N électrons dans l'élément de volume. Donc, elle est définie comme l'intégrale multiple sur les coordonnées d'espace et de spin de tous les électrons [16- 17-18- 19]

$$\rho(r) = N \int |\psi(x_1, \dots, x_N)|^2 d\sigma_1 d\sigma_2 dr_1 dr_2 \dots dr_N \quad (\text{IV-24})$$

Cette configuration résulte de la force attractive exercée par les noyaux. Le gradient de $\rho(r)$ est discontinu ce qui implique l'apparition des points de rebroussement (cuspides) [20]

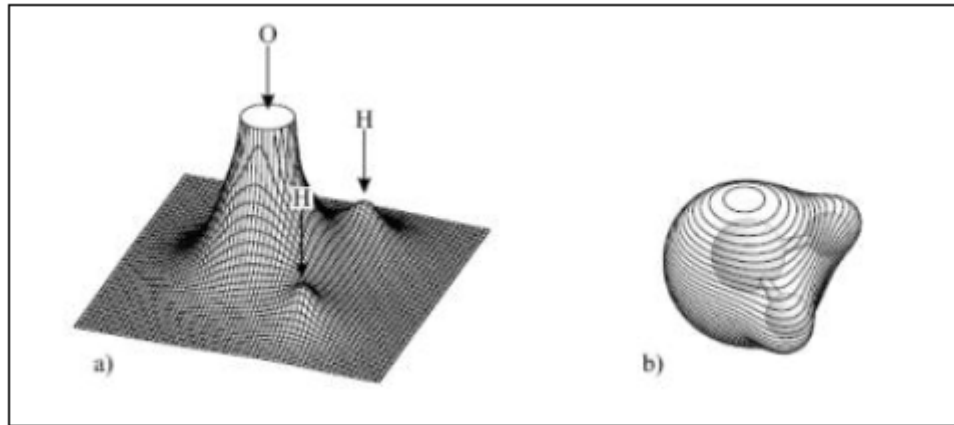


Figure IV.1 : Représentation de la densité électronique de la molécule d'eau [8]. a) Relief carte montrant les valeurs de projetée dans le plan, qui contient les noyaux. b) Représentation de la molécule à trois dimensions.

Cette théorie est soutenue par deux théorèmes proposés par Hohenberg et Kohn :

- Théorème 01 : l'énergie totale d'un système de particules s'exprime comme une fonctionnelle unique de la densité totale $\rho(r)$
- Théorème 02 : cette fonctionnelle est minimale pour la densité d'électrons correspondant l'état fondamental ψ_0 [21]

Donc pour déterminer l'énergie totale du système, on n'a pas besoin de connaître la fonction d'onde de tous les électrons, mais il suffit de déterminer une densité qui minimise l'énergie.

Dans le cadre de cette théorie, le solide est représenté par un ensemble de particules évoluant dans un champ extérieur créé par l'ensemble des charges du réseau.

Pour tenir compte des corrélations électroniques, on introduit un potentiel d'échange et de corrélation

L'énergie du système est donnée par :

$$E[\rho(r)] = T[\rho(r)] + \int dr \rho(r) V_{ext}(r) + \iint dr dr' \frac{\rho(r)\rho(r')}{|r-r'|} + E_{xc}[\rho(r)] \quad (\text{IV-25})$$

Où $V_{ext}(r)$ est le potentiel d'interaction des électrons avec les champs externes y compris celui dû aux noyaux.

$T[\rho(r)]$ Représente l'énergie cinétique d'un système de particules indépendantes de densité $\rho(r)$ Le troisième terme désigne l'interaction coulombienne.

$E_{xc}[\rho(r)]$ est l'énergie d'échange et de corrélation.

Dans le cadre de l'approximation de Kohn-Sham, la fonctionnelle de l'énergie cinétique $T[\rho(r)]$ est remplacée par une autre fonctionnelle d'électrons sans interaction. La densité est donc donnée par la somme des densités à une particule.

IV-3- 2) Equation de Kohn-sham :

Les orbitales de Kohn-Sham n'ont pas de signification physique et seule la somme de leurs carrés est reliée en tout point à la densité électronique du système :

$$[\rho(r)] = \sum_{occ} |\phi_i(r)|^2 \quad (IV-26)$$

Kohn et Sham [22] ont développé une approche (basée sur la DFT) dans laquelle ils ramènent le système réel composé de N électrons interagissant à un système fictif de N électrons indépendants de même densité électronique que le système réel

En utilisant un principe variationnel, ils ont montré que la vraie densité est donnée par la solution auto cohérente des équations à une particule appelée 'équation de Kohn-Sham' [2]

$$\left[\frac{1}{2} \nabla^2 + V_{eff} \right] \phi(r) = \epsilon_i \phi_i(r) \quad (IV-27)$$

$$V_{eff} = e^2 \int \frac{\rho(r')}{|r-r'|} dr' - \sum_i \frac{ze^2}{|r-R_i|} + \frac{\delta Ex[\rho(r)]}{\delta \rho(r)} \quad (IV-28)$$

Le premier terme est le potentiel de Hartree, le deuxième est celui de l'interaction électron noyau et le dernier décrit l'interaction d'échange et de corrélation.

Puisque la variation du dernier terme en fonction de la densité est inconnue, les approximations utilisées doivent être basées sur la forme d'Exc.

L'ensemble des équations (IV-26), (IV -27) et (IV -28) constituent les équations de Kohn-Sham qui sont résolues d'une façon auto-cohérente. En effet, à partir d'une densité de test, on obtient un potentiel V_{eff} pour lequel l'équation (IV -26) est résolue et une nouvelle densité électronique est obtenue. Le processus continue jusqu'à atteindre la précision souhaitée.

IV-3-3) Approximation de la densité locale

L'approximation de la densité local (Local Density Approximation LDA) [23] considère le potentiel d'échange et corrélation comme une quantité locale, définie en un point r , dépendant faiblement des variations de la densité autour de ce point r [24 ,25]. Ainsi, en un point r auquel correspond une densité $\rho(r)$, il sera associé un potentiel d'échange et

corrélacion comparable à celui d'un gaz homogène d'électrons de même densité (r) .
L'énergie d'échange et corrélation $E_{XC}[\rho(r)]$ s'exprime alors de la manière suivante :

$$E_{XC}[\rho(r)] = \int \rho(r) E_{XC}[\rho(r)] dr \quad (\text{IV-29})$$

Où E_{XC} est l'énergie d'échange et de corrélation par électron d'un gaz homogène d'électrons en interaction et de densité totale uniforme $\rho(r)$.

Le potentiel d'échange-corrélation lui correspondant est :

$$V_{XC}[\rho(r)] = \frac{\delta E_{XC}[\rho(r)]}{\delta \rho(r)} \quad (\text{IV-30})$$

Von Barth et Hedin ont développé une expression de $V_{XC}[\rho(r)]$ pour les matériaux magnétiques dans laquelle ils définissent un potentiel $V_{XC\sigma}[\rho(r)]$ pour chaque direction de spin de l'électron. Dans ce travail, nous avons adopté l'expression de Von Barth- Hedin ou $V_{XC}[\rho(r)]$ est donné sous la forme paramétrées suivante [7] :

$$V_{XC}[\rho(r)] = A(\rho) \left(2 \frac{\rho^\sigma(r)}{\rho(r)} \right)^{\frac{1}{3}} + B[\rho] \quad (\text{IV-31})$$

Avec :

$$A(\rho) = - 2 \left(\frac{3}{\pi} \rho(r) \right)^{\frac{1}{3}} + C_Z \left(- C_F F\left(\frac{r_s}{r_f}\right) + C_F F\left(\frac{r_s}{r_p}\right) \right) \quad (\text{IV-32})$$

$$B[\rho] = - C_p \log \log \left(1 + \frac{r_p}{r_s} \right) - C_Z \left(- C_F F\left(\frac{r_s}{r_f}\right) + C_F F\left(\frac{r_s}{r_p}\right) \right) \quad (\text{IV-33})$$

$$\frac{3}{4} \pi r_s^3 = \frac{1}{\rho(r)} \quad , \quad F(Z) = \left(1 + Z^3 \right) \log \log \left(1 + \frac{1}{Z} \right) + \frac{Z}{2} - Z^2 - \frac{1}{3} \quad (\text{IV-34})$$

$$C_Z = \frac{4}{3} \frac{2^{-\frac{1}{3}}}{1-2^{-\frac{1}{3}}} \quad r_p = 30 \quad C_p = 0.0504 \quad r_f = 75 \quad , \quad C_F = 0.0254 \quad (\text{IV-35})$$

IV-3-4) Approximation de la densité locale des spins (LSDA)

La LSDA (Local Spin Density Approximation) est l'introduction de la notion de spin dans l'approximation LDA. La densité électronique se divise en deux populations $\rho(\uparrow)$ Spin haut et $\rho(\downarrow)$ Spin bas.

$$\rho(r) = \rho(\uparrow)(r) + \rho(\downarrow)(r) \quad (\text{IV-36})$$

L'énergie d'échange sera alors :

$$E_{xc}[\rho(r)] = \int [\rho\uparrow(r) + \rho\downarrow(r)] \varepsilon_{xc}[\rho\uparrow(r) + \rho\downarrow(r)] dr \quad (\text{IV-37})$$

Dans cette approximation l'énergie du système est une fonctionnelle de deux densités de spins :

$$E[\rho(r)] = E[\rho\uparrow(r), \rho\downarrow(r)] \quad (\text{IV-38})$$

L'avantage de cette approximation est qu'elle permet de décrire des systèmes placés dans un champ magnétique externe et d'accéder à la susceptibilité. La LSDA convient aussi bien aux systèmes dont la variation de la densité électronique est lente qu'aux systèmes dont la densité varie rapidement, ce qui la rend d'un usage plus fréquent que la LDA [26]. Cependant, elle aussi surévalue les énergies de liaisons et donne des gaps trop faibles pour les semi-conducteurs et les composés isolants.

IV-4) Méthodes de calcul :

La détermination des propriétés physiques des matériaux telle que la structure électronique, se fait selon les données utilisées, dans le cadre de trois modèles.

- modèle empirique : basé sur les données expérimentales.
- modèle semi empirique : fait appel à des paramètres expérimentaux ou des résultats *ab-initio* pour prédire d'autres propriétés physiques.
- modèle *ab-initio* : utilise uniquement des constantes atomiques comme paramètres d'entrée pour résoudre des équations différentielles telle que l'équation de Schrödinger ou celle de Dirac.
- Les méthodes basées sur la fonctionnelle de la densité (DFT).

La théorie de la fonctionnelle de la densité est une approche puissante pour le traitement du problème à plusieurs corps. Cependant, il est important de faire le choix convenable d'une base de fonctions d'onde pour la résolution des équations de Khon-Sham. Il existe plusieurs méthodes qui permettent de résoudre l'équation de Schrödinger. Ces méthodes diffèrent par la forme utilisée du potentiel et par les fonctions d'onde prises comme base. Parmi elles on trouve les méthodes basées sur une combinaison linéaire d'orbitales atomiques (LCAO) [27, 28], qui permettent de traiter les métaux de transition. Les méthodes des ondes planes orthogonales (OPW) et leurs dérivées [28, 29] sont applicables aux bandes de conduction de caractère « s-p » des métaux simples. Les méthodes cellulaires du type

ondes planes augmentées (APW) [30]. Les méthodes linéarisées mises au point par Andersen [31] : Ondes planes augmentées linéarisées (LAPW) et orbitales « muffin-tin » linéarisées (LMTO), permettent de gagner plusieurs ordres de grandeur dans les temps de calcul.

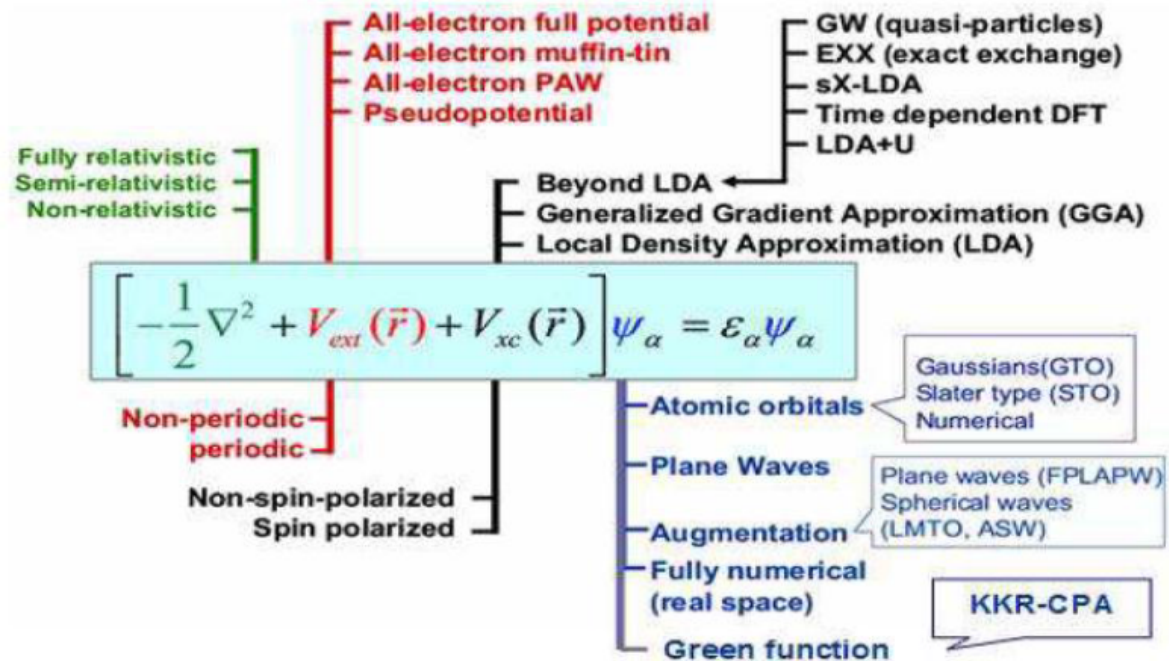


Figure IV-2 : Représentation schématique des différentes méthodes de calcul de la DFT.

On distingue essentiellement trois groupes de méthodes pour la résolution de l'équation de Schrödinger :

- La méthode de la fonction de Green de Korringa, Kohn et Rostoker (KKR-CPA) [32 ,33] applicable à une plus grande variété de matériaux.
- La méthode FPLO [Full potntial local orbital approximation] basée sur une combinaison linéaire d'orbitales atomiques (LCAO) [34,35] utilisable pour les bandes 'd' des métaux de transition.
- La méthode linéarisé des ondes planes augmentées [the linearized augemmnted plane wave] method (LAPW) [36].

IV-4 -1) La méthode SPR-LMTO-ASA

La méthode des orbitales muffin-tin linéarisées (LMTO) est une approche (ou technique) de calcul très performant pour résoudre les équations de la fonctionnelle de la densité en physique de la matière condensée.

La méthode SPR-LMTO-ASA (Relativistic Spin-Polarized LMTO) est utilisée pour calculer la structure de bandes des systèmes à spins polarisés.

Les systèmes ferromagnétiques possèdent de telle structure d'où la nécessité d'utiliser cette méthode pour décrire le système étudié dans ce travail.

Une solution plus ou moins précise pour le problème de la structure de bandes dans le cadre relativiste et qui tient compte de la polarisation des spins a été obtenue hormis la méthode des perturbations.

Pour tenir compte de la polarisation des spins, le problème de la structure de bandes a été traité par la mise au point de l'orbital muffin tin relativistes en utilisant les solutions propres d l'équation de Dirac à une particule avec un potentiel dépendant du spin. Il a été montré par Feder et al [37], Strange et al [38] et Cortona et al [39] que le potentiel dépendant du spin dans l'équation de Dirac conduit à un nombre infini d'équations couplées de la fonction radiale. Pour remédier à cette situation, on a démontré que l'on peut négliger le couplage entre les fonctions radiales sauf celles qui ont $\Delta l = 0$ et $\Delta \mu = 0$ [37]

Dans ces conditions, la solution de l'équation de Dirac a la forme :

$$\phi_i(E, r) = \phi_{\Lambda i}(E, r) + \phi_{-\Lambda i}(E, r) \quad (\text{IV-39})$$

En normalisant la fonction $\phi_i(E, r)$ à l'intérieur de la sphère de rayon s , $\phi_i(E, r)$ et sa dérivée par rapport à l'énergie $\phi_i(E, r)$ satisfont par analogie aux équations les relations suivantes :

$$(H - E)\phi_i(E, r) = 0 \quad (\text{IV-40})$$

$$(H - E)\phi_i(E, r) = \phi_i(E, r) \quad (\text{IV-41})$$

$$\phi_i(E, r) | \phi_i(E, r) = 1 \quad (\text{IV-42})$$

$$\phi_i(E, r)\phi_i(E, r) = 1 \quad (\text{IV-43})$$

La construction des orbitales SPR-LMTO relativistes par analogie à la méthode LMTO conduit à un hamiltonien et à une matrice de recouvrement très compliqué. L'alternative est d'augmenter les solutions dans la région interstitielle $n_{\Lambda}(r)$ à l'intérieur de la sphère centrale par la fonction $\phi_{\Lambda}(-l-1, r)$ et dans les autres sphères par une combinaison linéaire des fonctions $\phi_{\Lambda}(+l, r)$.

À partir de cette étape, les équations de la méthode SPR-LMTO sont complètement analogues aux équations au cas à spin non polarisé.

Dans le cadre de la méthode SPR-LMTO, l'évaluation des éléments matriciels qui correspondent aux valeurs propres d'opérateurs physiques doit être exprimée par les solutions de l'équation de Dirac à une seule particule ϕ_i (III-37) et leurs dérivées par rapport à l'énergie ϕ_i au lieu d'utiliser la somme de Bloch des orbitales $X_\Lambda^K(r)$. Ainsi, la fonction d'onde de Bloch s'écrit :

$$\psi^{jk}(r) = \sum_i \left[A_i^{jk} \phi_i(r) + B_i^{JK}(r) \right] \quad (\text{IV-44})$$

Les coefficients A_i et B_i doivent être exprimés en fonction des vecteurs propres α_Λ^{jk} qui apparaissent dans le développement de la fonction d'onde en fonction de $X_\Lambda^K(r)$. C'est-à-dire

$$\psi^{jk}(r) = \sum_\Lambda \alpha_\Lambda^{jk} X_\Lambda^K(r) \quad (\text{IV-45})$$

Finalement, il faut mentionner que l'on peut tenir compte de l'approximation ASA si l'on utilise les termes des corrections combinés dans le cadre de la méthode RLMT0

IV-4-2) Fonctionnelles GGA : Approximation du Gradient Généralisé

Dans la LDA, on emploie la connaissance de la densité au point r , alors que dans un système réel la densité est spatialement inhomogène, et par conséquent, il sera plus convenable d'introduire une correction à cette fonctionnelle qui tiendrait compte du taux de variation de $\rho(r)$. La plupart des corrections à la LDA utilisées aujourd'hui sont nées de l'idée qui consiste à tenir compte des variations locales de la densité $\rho(r)$, à travers son gradient $\vec{\nabla}\rho(r)$. C'est l'approximation du gradient généralisé GGA (Generalised Gradient Approximation). De telles fonctionnelles ont la forme générale donnée par l'équation [28] :

$$E_{xc}^{GGA}[\rho(r)] = \int d^3r \varepsilon(\rho(r), \vec{\nabla}\rho(r)) \quad (\text{IV-45})$$

Les différentes GGA qui existent, diffèrent l'une de l'autre par le choix de la Fonctionnelle $\epsilon(\rho(r), \vec{\nabla}\rho(r))$. La forme de GGA la plus souvent employée est celle proposée par Perdew-Burke et Enzerhoft [41] en 1996.

Cette fonctionnelle permet, en général, d'améliorer la description des propriétés physiques du système, comme les énergies de liaisons par exemple.

IV-4-3) La méthode de calcul K.K.R :

La méthode de diffusion multiple de Kohn-Korringa-Rostoker KKR-CPA) pour le calcul de la structure électronique des matériaux a été introduite en 1947 par Korringa [42] et en 1954 par Kohn et Rostoker [43] La caractéristique de cette méthode est l'utilisation de la théorie de diffusion multiple pour solution de l'équation de Schrödinger et détermination de la structure de bande électronique. Dans cette approche, les propriétés de diffusion de chaque centre de diffusion (atome) sont déterminées dans une première étape et décrite par une matrice de diffusion, alors que la diffusion multiple par tous les atomes dans le réseau est déterminée dans une deuxième étape telle que l'onde incidente à chaque centre est la somme de l'onde sortante de tous les autres centres.

Cette méthode permet de résoudre, d'une manière très efficace, l'équation pour un problème à impureté, sans passer par la construction des super-cellules (*super-cell*), méthode souvent utilisée dans d'autres approches comme FP-LAPW

IV-5) Modélisation de la surface

IV-5-1) Technique de la supercellule

Le code Dacapo est basé sur la DFT+ ondes planes +pseudos potentiels ; appliqué dans l'espace réciproque (K) valable uniquement pour les systèmes invariants par translation (théorème de Bloch). Cependant, le fait de considérer une surface n'entraîne aucune périodicité dans la direction perpendiculaire à celle-ci. Il est donc nécessaire d'introduire une distance du vide ou distance "inter-slabs" selon cette direction de l'espace en l'occurrence Z. Le système à étudier est alors représenté par la répétition d'une supercellule qui contient un nombre fini de plans métalliques (slab) et un espace vide de chaque côté du slab. Une

illustration de ce concept est donnée à la **Figure IV-3**. La cellule unité dans l'espace direct a alors une grande longueur suivant axe Z , ce qui correspondrait à une zone de Brillouin écrasée dans l'espace réciproque. On pourra donc utiliser beaucoup moins de points k dans cette direction. La taille de l'espace vide est un critère très important pour bien représenter la surface : les liaisons inter-slabs doivent être coupées, il faut que les interactions entre deux slabs séparés par l'espace vide soient brisées.

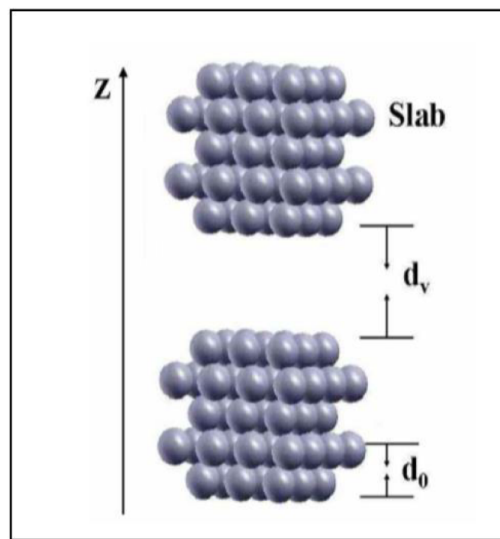


Figure IV-3 : Représentation schématique du motif utilisé dans les calculs périodiques des Surfaces.

IV-5-2) Relaxation d'un film ultramince

La surface représente un environnement très asymétrique où les atomes ont une coordinence et une structure électronique modifiées par rapport aux atomes du volume. Il en résulte que la structure géométrique de la surface peut être radicalement différente d'une simple terminaison du cristal. Cette modification de structure peut se manifester sous la forme d'une relaxation, c'est-à-dire une dilatation ou une compression de la distance entre les premières couches atomiques. On peut assister aussi à un changement de structure plus radical ou les atomes se déplacent parallèlement à la surface. La maille bidimensionnelle de la

couche superficielle est alors différente de celle qu'on obtiendrait pour une terminaison simple du cristal : on parle alors d'une reconstruction (voir **Figure IV-4**).

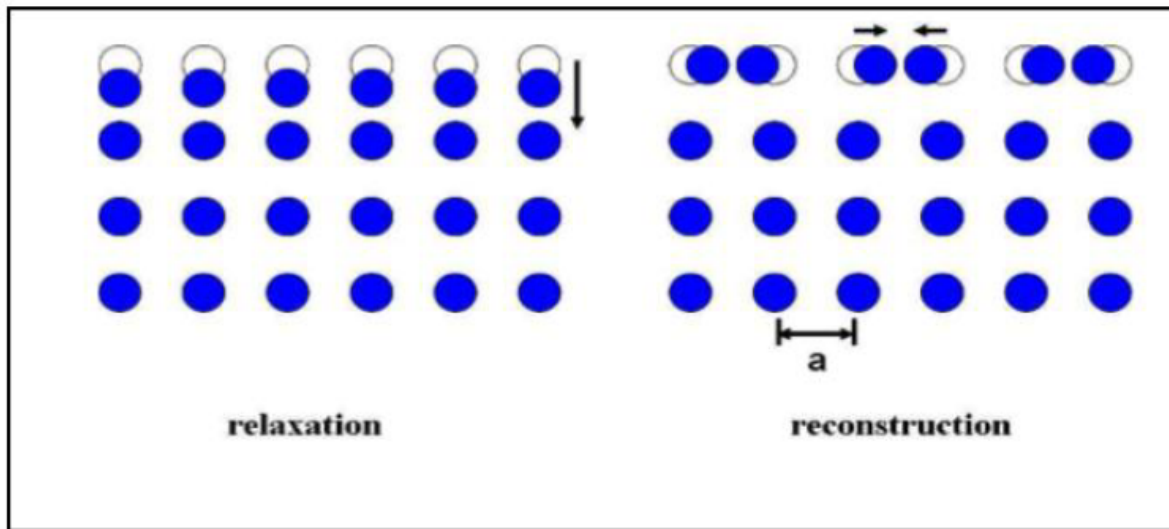


Figure IV-4 : Vues schématiques d'une relaxation (à gauche) et d'une reconstruction (à droite) de la couche superficielle. Les positions qu'occuperaient les atomes dans le cas d'une terminaison régulière du cristal sont représentées par des cercles blancs.

Des études en physique des surfaces ont montré que plus la surface est ouverte, plus la relaxation augmente en amplitude relative et en profondeur.

IV-5-3) Le cycle auto-cohérent :

Cette résolution se fait d'une manière itérative en utilisant un cycle d'itérations auto-cohérent, nous résumons ce cycle (**Figure IV.5**) par les étapes suivantes :

1. Commencer par une densité d'essai pour la première itération
2. Calculer la densité et du potentiel d'échange corrélation pour un point.
3. Résoudre l'équation de Kohn-Sham
4. Calculer la nouvelle densité
5. Vérifier le critère de convergence (en comparant l'ancienne et la nouvelle densité).
6. Calculer les différents grandeurs physiques (Energie, forces, ...) ; Fin de calcul.

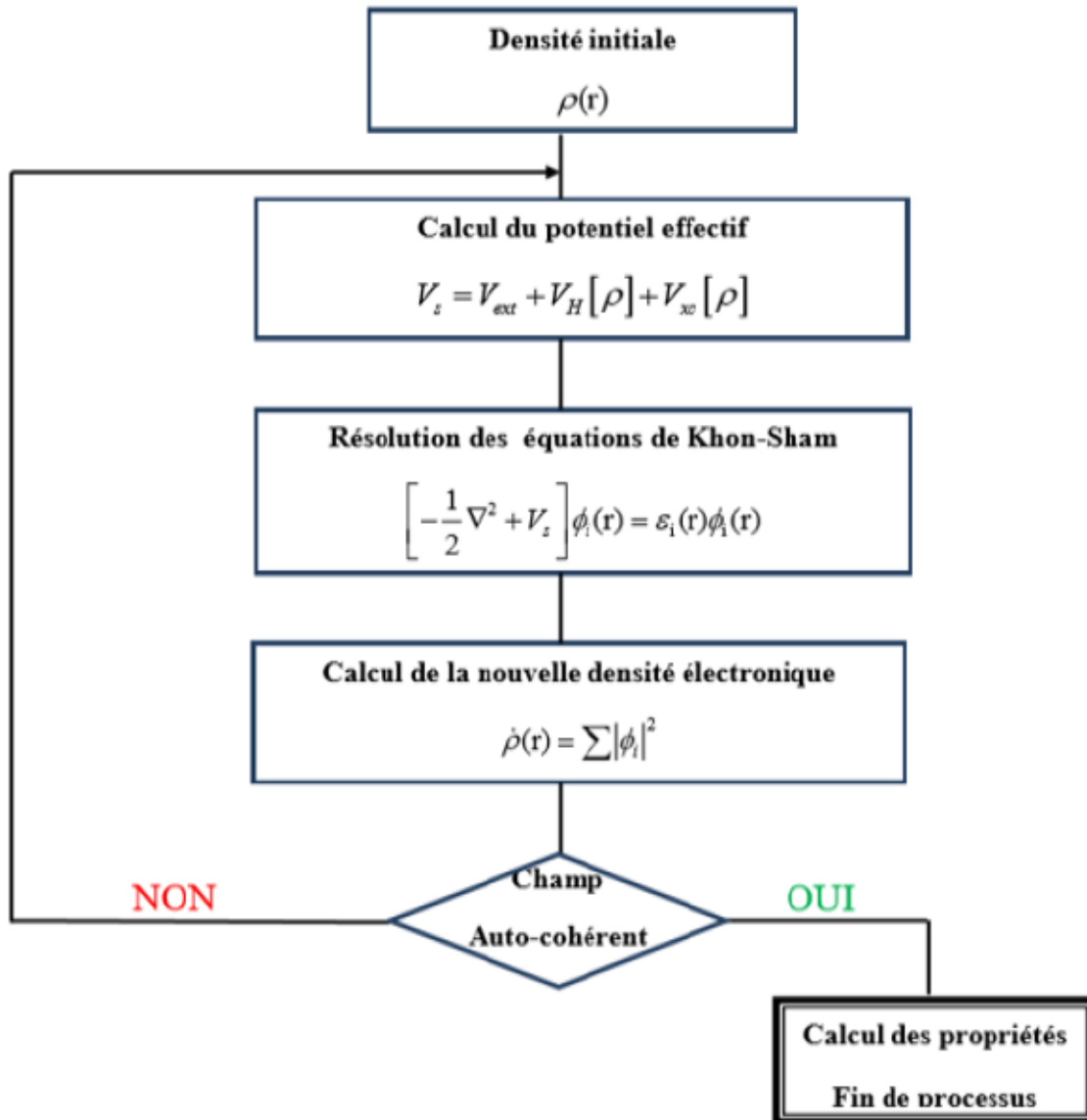


Figure IV-5 : Cycle auto-cohérent de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT).

Bibliographies

- [1] N. Lebga, Thèse de doctorat de Science, université de Ferhat Abbas-Sétif (2011).
- [2] J.M. Thijssen, Delft University of Technology, Computational Physics, Cambridge

University press (1999).

[3] P. Hohenberg, W. Kohn, Phys. Rev. 136 (1964) 864.

[4] Henry Mathieu, Physique des semi-conducteurs et des composants électroniques.

[5] C.J.Cramer, "Essentials of Computational "Chemistry Theories and Models (England: John Wiley & Sons Ltd, 2004).

[6] D. R. Hartree, Proc. Combridge Philos. Soc. 24: 89 (1928).

[7] Dr. BOUKELKOUL MEBAREK « Propriétés magnéto-optiques des couches ultraminces et des slabs à base de métaux de transition » thèse doctorat, 2013.

[8] Samir Matar, Approches Monoélectronique , Institut de chimie de matière condense du Bordeaux (14 sep 2004).

[9] M. MA, 1984. G. Silk: Ultrasonic transducers for nondestructive testing. Adam Hilger Ltd., Accord.

[10] V. Fock, Z. Phys. 61, 126(1930); 62, 795 (1930).

[11] S. Hull and D. A. Keen: Phys. Rev. B 59, (1999) 750.

[12] B. E. Mellander, Phys. Rev. B 26, (1982) 5886.

[13] L.H. Thomas, Proc. Cam. Phil. Soc., 26, (1930) 376.

[14] E. Fermi, Z. Phys., 48, (1928) 73.

[15] Yves Depeursing, Thèse de Doctora N° 297 Soutenue pour l'obtention du Grade de Docteur à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Laussane (1978).

[16] P. Hohenberg, W. Kohn, Phys. Rev. 136 (1964) 864.

[17] R. M. Dreizler, E. K. U. Gross, Density Functional Theory: An Approach to the Quantum Many Body Problem, Springer-Verlag, Berlin, 1990.

[18] R. G. Parr, W. Yang, Density-Functional Theory of Atoms and Molecules, Oxford University Press, Oxford, 1989.

[19] Wolfram Koch, Max C. Holthausen, *A Chemist's Guide to Density Functional Theory* 2nd ed, Wiley (2001).

[20] Phivos Mavropoulos and Nikos Papanikolaou, The Korringa-Kohn-Rostoker (KKR) Green Function Method, I. Electronic Structure of Periodic Systems, published in Computational Nanoscience, Vol. 31, ISBN 3-00-017350-1, 2006.

[21] P. Hohenberg et W. Kohn, Phys. Rev. 136 (1964) 864.

[22] Mémoire de Benarbia.

- [23] R. M. Dreizler and J. da Provincia, Density Functional Methods in Physics, (1985), (Plenum, NewYork
- [24] A. D. Becke, Phys. Rev. A 38, (1988) 3098.
- [25] J. P. Perdew, J. A. Chevary, S. H. Vosko, K. A. Jackson, M. R. Peederson, D. J. Singh and C. Fiolhais, Phys. Rev. B 46, (1992), 6671.
- [26] Betranhandy, thèse de Doctorat, Université de Bordeaux 1, (2005).
- [27] F. Bloch, Z. Phys. 52, (1928) 555.
- [28] J.C. Slater, « Quantum Theory of Molecules and Solids », V2, Ch. (1965) 8.
- [29] C. Herring, Phys. Rev. 57, (1940) 1169.
- [30] J.C. Slater, Phys. Rev. 51, (1937) 846.
- [31] O.K. Andersen, Phys. Rev. B 12, (1975) 3060.
- [32] W. Kohn and N. Rostoker, Solution of the Schrödinger Equation in Periodic Lattices with an Application to Mettalic Lithium, PHYSICAL REVIEW, Vol. 94, N°5, 1954.
- [33] F. Bloch, Z. Phys., Vol. 52, p.555, 1928.
- [34] J.C. Slater, « Quantum Theory of Molecules and Solids », V2, Ch. 8, 1965.
- [35] J.C. Slater, Physical Review, Vol. 51, p. 846, 1937.
- [36] R.Feder, F.Rosiky, and B.Ackermann, Z.Phys.B 52, 31 (1983).
- [37] R.Feder, F.Rosiky, and B.Ackermann, Z.Phys.B 52, 31 (1983).
- [38] P.Strange, J.B.Staunton, and B.L.Gyorffy, J.Phys.C 17, 3355 (1984).
- [39] P.Cortona, S.Doniach, and C.Sommers, Phys.Rev.A 31, 2842 (1985).
- [40] J. A. Sanjurjo et al, Phys. Rev. B 28 (1983) 4579.
- [41] M. Ferhat, B. Bouhafs, A. Zaoui et al, J. Phys. : condens-Matter. 10 (1995) 7995.
- [42] J. Korryng, Physica 13, 392 (1947).
- [43] W. Kohn and N. Rostoker, Phys. Rev. 94, 1111 (1954).

***Chapitre V : Résultats
et discussion***

V-1) Introduction :

Les films ultraminces ont fait l'objet d'un énorme intérêt ces dernières années [1]. Aussi bien le magnétisme des surfaces et interfaces attire considérablement beaucoup de travaux théoriques et expérimentaux [2] en raison de diverses applications récentes dans le domaine de stockage magnétique des données informatiques à haute capacité.

Dans ce travail l'accent est mis sur les propriétés magnéto-optiques notamment l'effet Kerr polaire décrit par la rotation K_θ dans un système en couches ultraminces de Fer déposé sur Ir(001) via les propriétés magnétiques et structurales en utilisant la méthode SPR-LMTO-ASA. Cette méthode de premiers principe formulée dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) [3] est mise en évidence via le code Imto5.0.0.2 de A. Perlov et A. Yaresko [4].

V-2) Description du système étudié ($Fe_n / Ir(001)$) :

L'étude des surfaces par la méthode SPR-LMTO-ASA diffère de celles utilisées pour le volume. En effet, la cellule qui génère tout le système dépend de l'orientation de la surface considérée et elle doit être définie pour chaque orientation. Pour une surface d'un cristal monoatomique, la rupture de la symétrie à la surface crée un environnement différent qui rend certains sites inéquivalents.

L'application de la méthode SPR-LMTO-ASA à l'étude des surfaces nécessite la définition de certains détails techniques qui permettent l'élaboration des surfaces dans la direction volume (001) [5]

Pour que la surface conçue soit bien adaptée à l'étude théorique, le choix de nombre de plans atomiques du slab ainsi que l'épaisseur de l'espace vide séparant deux slabs consécutifs doit respecter les deux conditions suivantes :

- ☐ L'espace vide entre deux slabs doit être suffisamment grand pour supprimer toute interaction mutuelle entre deux slabs consécutifs. Pour cela, on doit s'assurer que la charge électronique du plan central de l'espace vide reste nulle [6]. Cette condition assure la périodicité suivant l'axe perpendiculaire à la surface sans affecter le calcul de la structure de bandes.

- Le slab autant que représentant du cristal semi-infini (volume + surface) doit garder les propriétés de l'état massif, et il doit être suffisant pour retrouver les propriétés du cristal infini au centre du slab [5].

V-2-1) Elaboration du substrat :

Le choix du nombre de plans atomiques dans le substrat n'est pas arbitraire. Il doit lui aussi satisfaire deux conditions :

- Le substrat doit regrouper toutes les propriétés physiques de l'Iridium massif.
- Le nombre de couches d'Iridium doit être le plus petit possible pour minimiser le temps de calcul.

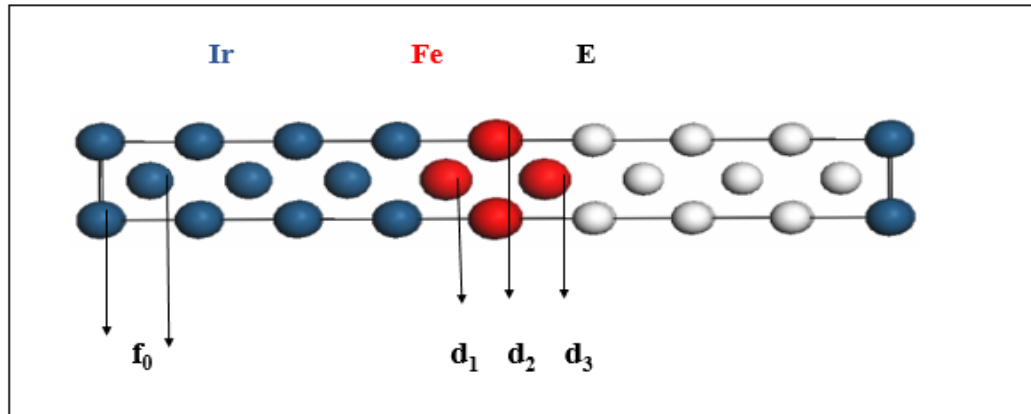
En tenant compte de ces deux conditions, nous avons choisi un substrat d'Iridium constitué de sept plans atomiques. Après avoir fait ce choix, nous avons bénéficié d'un plan de symétrie ce qui a facilité d'avantage le calcul des propriétés physiques du substrat [5].

V-2-2) Elaboration du système Fe_n/Ir (001) :

Le système étudié contient deux éléments : l'Iridium (Ir) et le Fer (Fe), l'Iridium en volume cristallise dans la structure (*cfc*) avec un paramètre de maille $a=3.84\text{\AA}$ tandis que le fer présente deux phases qui varient en fonction de la température :

- $Fe\alpha$ cristallise dans la structure cubique centrée (*bcc*) avec un paramètre de maille $a_{Fe\alpha} = 2.86\text{\AA}$ stable à la température ambiante.
- Fe cristallisant dans la structure cubique à faces centrées (*cfc*) avec un paramètre de maille $a_{Fe\gamma} = 3.58\text{\AA}$. Cette dernière phase apparaît à des températures dépassant 912°C .

La super cellule qui satisfait les deux conditions ci-dessus est composée de 7 plans d'Ir empilés suivant la direction (001) et n plans de Fe tel que $n= 1, 2, 3, \dots$. La super-cellule obtenue est schématisée dans la figure ci-dessous [7] :



FigureV-1 : Schéma de la super-cellule Fe_n/Ir(001)

V-2-3) Détails de calcul :

La méthode utilisée pour le calcul de la structure électronique est la méthode SPR-LMTO-ASA implémentée dans le code lmt05.0.0.2 avec un potentiel d'échange et de corrélation donné par la formule de Van Barth Headin dans le cadre de l'approximation de la densité locale (LSDA) (Local Spin Density Approximation) avec des corrections combinées.

La géométrie de base dans cette méthode de calcul est divisée en deux parties : une partie interstitielle et une partie muffin-tin. À l'intérieur des sphères *muffin-tin*, les fonctions de base sont développées en termes d'harmoniques sphériques et des fonctions radiales solutions de l'équation de Dirac. Dans la partie interstitielle les fonctions de base sont proportionnelles à la solution régulière de l'équation de Laplace.

Les queues (tails) provenant des autres sphères sont données sous forme d'une combinaison linéaire des fonctions de Hankel ou de Newman. Le terme de l'interaction spin-orbite est inclus directement dans les éléments matriciels de l'Hamiltonien pour la partie qui se trouve dans les sphères *muffin-tin* et l'équation de Dirac est résolue d'une manière auto cohérente [6- 8- 9]

Pour le calcul des propriétés magnéto-optiques, les composantes du tenseur de la conductivité optique sont données par la somme des transitions inter bande et Intra-bandes. Dans le calcul des transitions inter band, on a adopté l'approximation du dipôle électrique et les éléments du tenseur de la conductivité optique sont donnés par la formule de la réponse linéaire de Kubo-greenwood [10 -11-12].

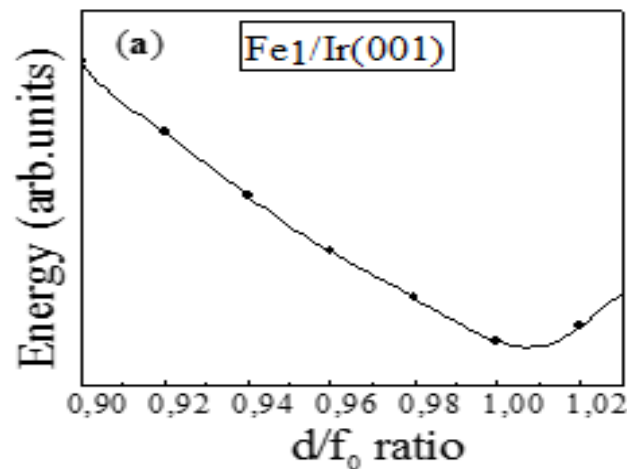
V-3) Le système Fe/Ir(001)

V-3-1) Etude des propriétés structurales :

L'étape la plus importante dans un calcul ab-initio est la détermination des propriétés structurales afin d'avoir plus d'informations sur les propriétés des matériaux à étudier. Le but de l'étude des propriétés structurales est de déterminer les paramètres de la structure du matériau à savoir les paramètres de maille a , b et c ainsi que le taux c/a .

La distance de référence f_0 est celle qui sépare deux plans atomiques de l'iridium. Elle est prise pour tous les systèmes égale à $a_{Ir} / 2 = 3.84/2 = 1.92\text{\AA}$.

Pour avoir la distance optimale d_1 , d_2 et d_3 (sont représentés dans la (**Figure V-1**) nous avons effectué une optimisation de l'énergie totale des systèmes étudiés en fonction du rapport de distance entre la distance recherchée d et la distance de référence f_0 ($E = f(d/f_0)$) à l'aide d'une fonction en série aux puissances dans notre code de calcul Imto 0.0.5 et nous avons obtenu les trois courbes de la (**FigureV-2**).



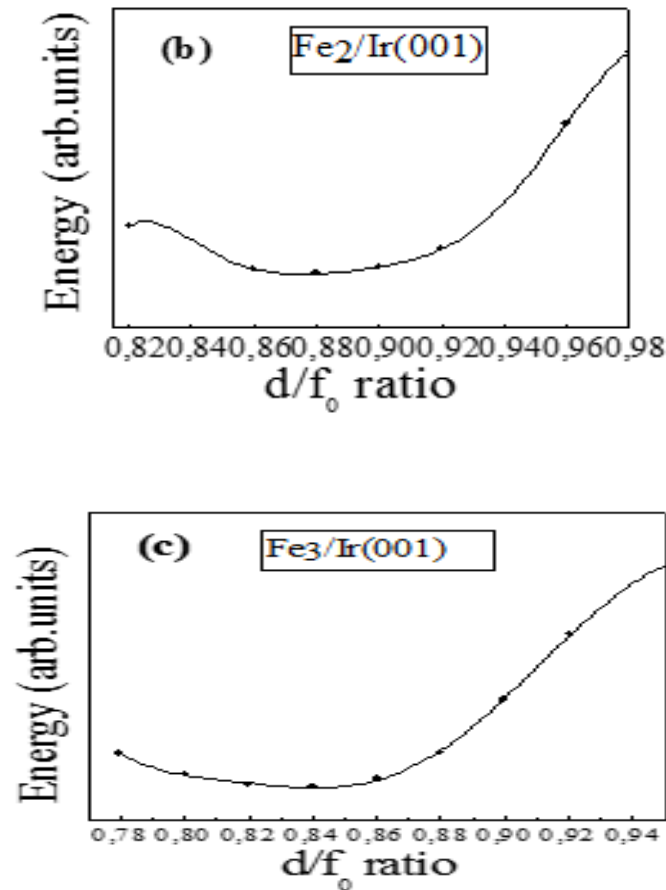


Figure V -2 : Processus de relaxation des systèmes $\text{Fe}_n/\text{Ir}(001)$. Les cercles pleins sont les valeurs calculées et les lignes continues sont les fits (d et f_0 représentent respectivement la distance inter-plan dans le film et le substrat).

La distance de référence f_0 est celle qui sépare deux plans atomiques d'Iridium. Elle est prise dans tous les systèmes égale à $a_{\text{Ir}}/2 = 1.92 \text{ \AA}$.

Pour le système $\text{Fe}_1/\text{Ir}(001)$ (**Figure V-2 (a)**), la distance optimale à l'interface entre le substrat et le premier plan atomique du film est égale à $1.92 \text{ \AA}$.

À partir de la (**Figure V-2 (b)**), la distance entre le premier et le deuxième plan atomique d'Iridium dans le système $\text{Fe}_2/\text{Ir}(001)$ est donnée par la valeur $1.6512 \text{ \AA}$.

Pour le système $\text{Fe}_3/\text{Ir}(001)$ (**Figure V-2 (c)**) et après avoir déposé le troisième plan atomique du l'Iridium l'équilibre est trouvé pour une distance de $1.6128 \text{ \AA}$.

Dans le plan perpendiculaire à la direction du dépôt, la distance entre les plus proches voisins dans le plan de l'interface c'est-à-dire (001) correspond à $\frac{1}{2} [110]_{Ir} = 2.71 \text{ \AA}$.

Cette distance est plus petite que le paramètre de maille dans la structure *bcc* de fer ($[100]_{Fe} - bcc = 2.86 \text{ \AA}$).

En tenant compte du fait que le module d'Young pour l'Iridium ($E_{Ir} = 536 \text{ GPa}$) est plus grand que celui de Fer ($E_{Fe} = 214 \text{ GPa}$) [13], la distance entre les atomes de Fer est imposée par le substrat.

Alors le développement à deux dimensions se fait de sorte que la couche de Fer est considérée comme un cristal à deux dimensions cristallisant dans la structure carrée avec un paramètre de maille $a = 2.71 \text{ \AA}$.

À partir de ces résultats, les paramètres de maille dans la direction de croissance sont :

$$\begin{cases} a = a(Ir(001)) = 1/2 [110] = 1/(\sqrt{2}) a_{Ir} = 1/(\sqrt{2}) \times 3.84 = 2.715 \text{ \AA} \\ c = d_2 + d_3 = 3.264 \text{ \AA} \end{cases}$$

La nouvelle structure cristalline de fer a les caractéristiques $a = b = 2.715 \text{ \AA}$ avec un taux de tétragonalité $\frac{c}{a}$ égale à 1,691 Cette structure correspond à celle de *bct* (body centered tetragonal).

Cette structure cristalline exotique du film de fer influence les propriétés magnétiques et magnéto-optiques. En effet la présence de l'interaction Spin-Orbite conduit à un état fondamental qui dépend de l'orientation relative de l'aimantation et les axes cristallographiques i.e. il y a une corrélation entre les propriétés cristallographiques et les propriétés magnétiques et magnéto-optiques.

IV-3-2) Etude des propriétés magnétiques :

Le but de cette section est de calculer le moment magnétique par atome et pour trouver la phase magnétique des films ultraminces, nous avons calculé les densités partielles d'états DOS qui sont illustrés dans les **figures (V-3)** :

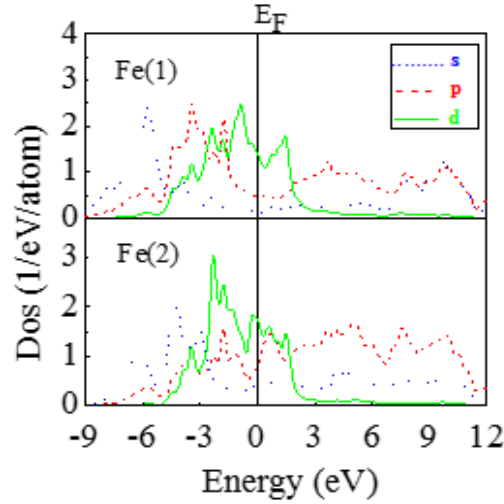


Figure V-3 -a : Densités partielles d'états dans le système Fe₂/Ir (001)

(s : ligne en bleu et p : ligne en rouge et d : ligne en vert)

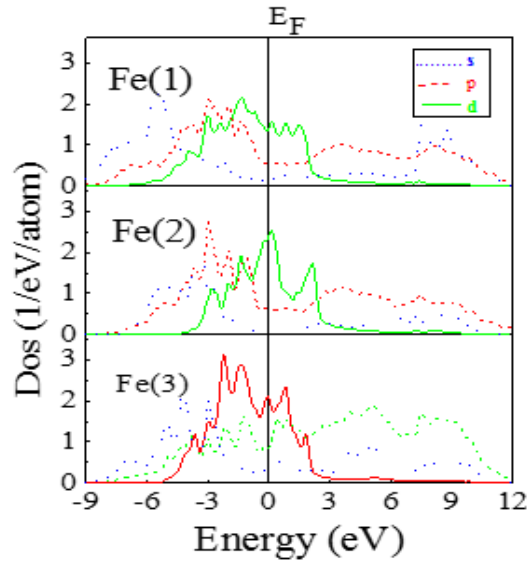


Figure V-3 -b : Densités partielles d'états dans le système Fe₃/Ir (001)

(s : ligne en bleu et p : ligne en rouge et d : ligne en vert)

D'après Les **Figure V-3**, il est clair que le système étudié est ferromagnétique.

Pour l'analyse qualitative des résultats, nous avons calculé les différents moments magnétiques par atome pour chaque plan atomique du système. Pour cela, nous avons utilisé (pour les trois systèmes) les formules de calcul suivantes [14].

$$\mu_{spin} = \mu_B \sum_{j,k} \langle \psi^{j,k} \rangle \theta(E_F - E_{jk})$$

$$\mu_{orb} = \mu_B \sum_{j,k} \langle \psi^{j,k} | \theta(E_F - E_{jk})$$

Nous avons résumé les résultats dans les **Figures V-4** :

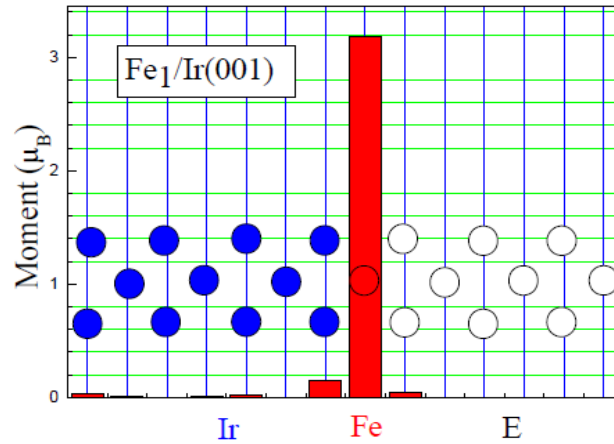


Figure V-4 (a) : Variation du moment magnétique en fonction du nombre de plans atomiques dans le système Fe₁/Ir (001).

D'après la figure ci-dessus, on constate que l'Iridium à l'interface a subi une légère polarisation suite au dépôt de la première couche de Fer. Les autres plans d'Iridium ont gardé leur état paramagnétique.

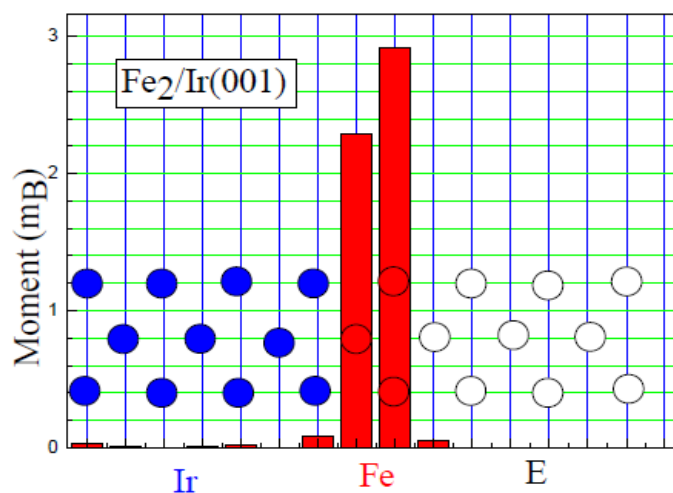


Figure V-4 (b) : Variation du moment magnétique en fonction du nombre de plans atomiques dans le système Fe₂/Ir (001).

En tenant compte de la structure cristalline obtenue après avoir déposé le deuxième plan de Fer, le système que l'on a est un *Febcc* dilaté et par conséquent les moments magnétiques des atomes de Fer augmentent [15-16].

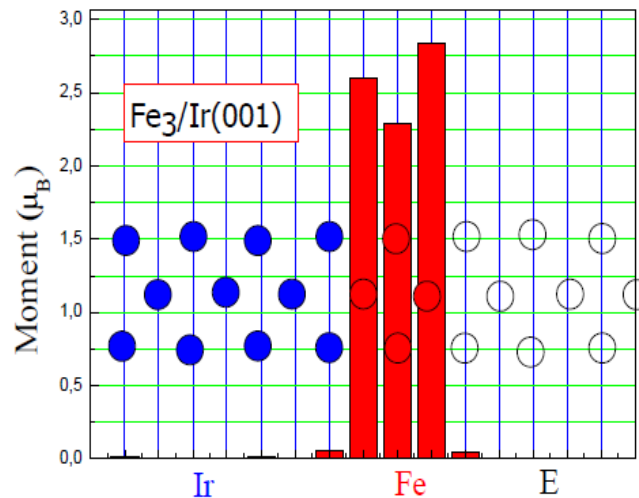


Figure V-4 (c) : Variation du moment magnétique en fonction du nombre de plans atomiques dans le système $\text{Fe}_3/\text{Ir}(001)$.

D'après cette figure, on constate que la polarisation de l'Iridium à l'interface a disparu, en revanche le moment magnétique dans le premier et le deuxième plan de Fer a retrouvé sa valeur de Fe massif.

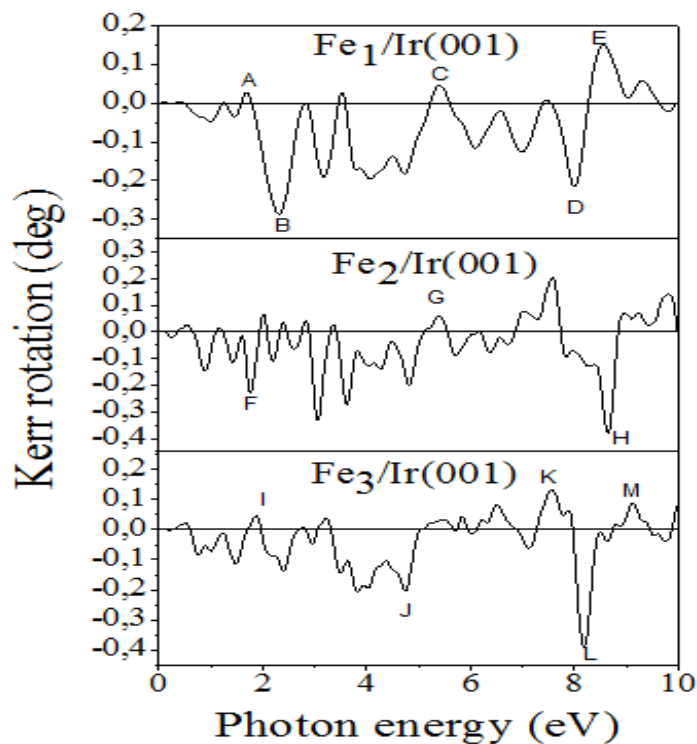
Le tableau suivant résume les valeurs des moments magnétiques obtenus

	$\mu_s (\mu_B)$	$\mu_l (\mu_B)$	$\mu_{s+l} (\mu_B)$
Ir (07)	0.060	-0.005	0.05
Fe (01)	2.51	0.089	2.60
Fe (02)	2.20	0.081	2.28
Fe (03)	2.72	0.12	2.83

Tableau V-1 : Valeurs de moments magnétiques dans le système Fe₃/Ir(001)**V-4) Etude des propriétés magnéto-optiques :**

Les propriétés magnéto-optiques que nous avons obtenues, résident dans l'étude de l'effet Kerr dans sa géométrie polaire (P-MOKE).

La gamme d'énergie des radiations incidentes que nous avons utilisée a été élargie jusqu'à 10 eV. Les rotations correspondantes sont illustrées dans le **Figure 5-5** :

**Figure V-5** : Spectre des rotations Kerr dans les systèmes Fe_n/Ir (001)**V-4-1) Domaines spectraux des ondes électromagnétiques :**

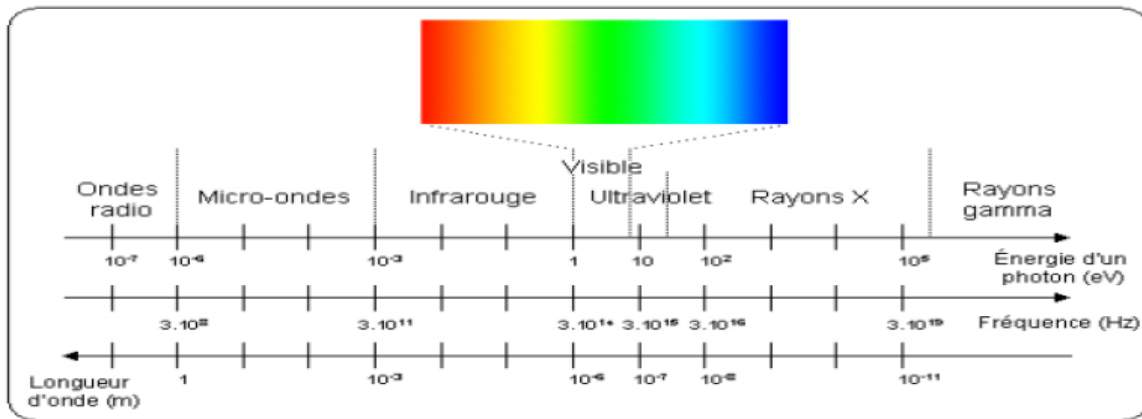


Figure V-6 : Domaines spectraux des ondes électromagnétiques.

Le spectre décrivant la réponse magnéto-optique dans le système $\text{Fe}_1/\text{Ir}(001)$ est caractérisé par deux pics négatifs, le premier dans le domaine visible à $E=2\text{eV}$ et le deuxième dans le domaine ultraviolet à $E = 8\text{eV}$.

La valeur des rotations qui correspond à ces deux pics est $\theta_k = -0.3\text{deg}$.

A partir de ce spectre, la réponse magnéto-optique dans le système $\text{Fe}_2/\text{Ir}(001)$ est décrite essentiellement par deux pics négatifs **F** ($E=1.77\text{eV}$) et **H** ($E=8.64\text{eV}$) Correspondant respectivement est $\theta_K = -0.217^\circ$ et $\theta_K = -0.38^\circ$ avec une atténuation appréciable des pics positifs.

Dans ce système, il y'a un pic négatif $\theta_K = -0.39^\circ$ dans le domaine ultraviolet à $E = 8.18\text{eV}$.

Ce pic qui caractérise ce système est décalé vers les énergies élevées par rapport aux deux systèmes précédents.

Les pics positifs deviennent pratiquement négligeables en le comparant avec le pic négatif.

V-4-2) Résultats des propriétés magnéto-optiques :

D'après les spectres ci-dessus, il est clair que la réponse magnéto-optique dans les films ultraminces de fer déposé sur un substrat de Ir(001), s'étale sur tout le domaine spectral (du visible jusqu'à l'ultraviolet). Les résultats sont résumés dans le tableau suivant :

Système	Pics	Energie (eV)	Rotations θ_k (deg)	Domaine spectral
Fe₁/Ir(001)	A	1.69	0.26	Visible
	B	2	-0.3	Visible
	C	5.46	0.05	Visible
	D	8	-0.21	Ultraviolet
	E	8.55	0.15	Ultraviolet
Fe₂/Ir (001)	F	1.77	-0.217	Visible
	G	5.38	0.05	Visible
	H	8.66	-0.38	Ultraviolet
Fe₃/Ir(001)	I	1.89	0.04	Visible
	J	4.74	-0.20	Visible
	K	7.54	0.12	Ultraviolet
	L	8.18	-0.39	Ultraviolet
	M	9.12	0.087	Ultraviolet

Tableau V.2 : Résultats de l'étude des propriétés magnéto-optiques dans les systèmes Fe_n/Ir (001).

V-4-3) Discussion : Origine microscopique de la réponse magnéto-optique :

Dans cette section, nous allons donner une interprétation qualitative des résultats magnéto-optiques obtenus dans le but de déterminer l'origine microscopique des différents pics.

Dans le spectre de l'effet Kerr qui caractérise le système étudié. Notre discussion est basée sur une analyse combinée des densités d'états **Figures V-3** et des contributions interbandes dont l'évaluation des éléments matriciels dans le cadre de la méthode SPR-LMTO-ASA conduit aux règles de sélection suivantes :

$$\Delta l = \pm 1$$

$$\Delta j = 0, \pm 1$$

$$\Delta m_j = \begin{cases} +1 & \text{Pour } \lambda > 0 \\ -1 & \text{Pour } \lambda < 0 \\ 0 & \text{Pour } \lambda = z \\ \pm 1 & \text{Pour } \lambda = x, y \end{cases}$$

Avec

Δl : Le nombre quantique orbital.

Δj : Le moment cinétique total.

Δm_j : Le nombre quantique azimutal

λ : La polarisation du potentiel vecteur.

Nous sommes satisfaits d'une explication qualitative des transitions interbandes entre les états localisés seulement. Pour cela, nous avons utilisé les densités d'états qui sont illustrés dans les (**figures 5.4**) Les propriétés magnétiques des différents systèmes étudiés, proviennent des états d. En tenant compte de toutes ces considérations, les transitions interbandes

prépondérantes qui participent aux rotations Kerr (**figure 5.5**) sont données dans le tableau ci-dessous :

Système	Pics	Transitions
Fe ₁ /Ir(001)	A	$d\uparrow \rightarrow p\uparrow$ et $s\uparrow \rightarrow d\uparrow$
	B	$d\uparrow \rightarrow p\uparrow$
	C	$s\uparrow \rightarrow p\uparrow$
	D	$p\uparrow \rightarrow d\uparrow$
	E	$d\uparrow \rightarrow p\uparrow$
Fe ₂ /Ir (001)	F	$d\uparrow \rightarrow p\uparrow$
	G	$s\uparrow \rightarrow p\uparrow$
	H	$p\uparrow \rightarrow d\uparrow$
Fe ₃ /Ir(001)	I	$p\uparrow \rightarrow d\uparrow$
	J	$s\uparrow \rightarrow p\uparrow$
	K	$d\uparrow \rightarrow p\uparrow$
	L	$p\uparrow \rightarrow s\uparrow$
	M	$p\uparrow \rightarrow d\uparrow$

Tableau V-3 : Transitions inter bandes dans le système Fe_n/Ir (001).

La réponse magnéto-optique dans le système Fe_n/Ir (001) est caractérisée par des pics négatifs et positifs répartis dans le domaine du visible et celui de l'ultraviolet avec des angles de rotation appréciables. Les transitions inter bandes qui sous-tendent ces rotations se font entre des états localisés.

La qualité et la capacité de stockage magnétique sont influencées par le nombre d'électrons, le libre parcours moyen des électrons et la durée de vie de la polarisation des électrons. Vu la nature métallique des films étudiés, les électrons possèdent un libre parcours

moyen relativement grand. Ce système peut être considéré comme un milieu potentiel pour le stockage magnétique de haute capacité.

Bibliographies:

- [1] D. M. Schaller, D. E. Bürgler, C. M. Schmidt, F. Meisinger and H-J Güntherodt, Arxiv. Cond. Mat (2008).
- [2] C. L. Fu, A. J. Freeman and T. Oguchi, Phys. Rev. Lett. 54, 2700 (1985).
- [3] S. Cottenier, DFT and the family of (L) APW-methods: a step-by-step introduction, K.U. Leuven ([http: / www. wien2k. at / reg_ user / textbooks](http://www.wien2k.at/reg_user/textbooks)), 2002.
- [4] <http://www.mpiPKS-dresden.mpg.de/~perlov/lmto>. 85
- [5] M. Boukelkoul, M. Kharoubi and H. Haroun, Can. J. Phy.86 1421 -1426 (2008).
- [6] P.Cortona, S.Doniach and C.Sommers, Phys. Rev. A 31 (1985) 2842.
- [7] R.Feder, F.Rosiky, and B.Ackermann, Z.Phys.B 52, 31 (1983).
- [8] P.Strange, J.B.Staunton, and B.L.Gyorffy, J.Phys.C 17, 3355 (1984).
- [9] Z.Szotek, W.W.Temmerman, and H.Winter, Phys.Rev.B.47, 4029 (1993).
- [10] C.S.Wang and J.Callaway, Phys.Rev.B 9, 4897 (1974).
- [11] m.Singh, C.S.Wang and J.Callaway, Phys.Rev.B 11, 287 (1975).
- [12] R.Wu, A.J.Freeman, Phys.Rev.Lett. 69 (1992) 2867.
- [13] S.Ohnishi, A.J.Freeman, M.Weinert, phys.Rev.B 28 (1993) 6741.
- [14] O.K.Andersen, Phys.Rev.B, 12, 3060 (1975).
- [15] O.Erikson, et al. Solid.State Commun. 78 (1991) 801.
- [16] G.L.Krasko, Solid State Commun. 70 (1989) 1099.

Conclusion générale

Conclusion générale

Au cours de ce mémoire nous avons cherché à comprendre les propriétés structurales, magnétiques et magnéto-optique du film ultramince de fer déposé sur l'iridium (001) dans le but de mettre en évidence les propriétés magnéto-optiques de ce système qui vont avoir d'éventuelles applications technologiques, notamment dans le domaine spatial et d'enregistrement magnétique.

Pour mettre en évidence ces propriétés, nous avons calculé le spectre de l'effet Kerr dans sa géométrie polaire (*MOKE*) décrit par la rotation θ_k

Un sommaire de nos résultats est présenté comme suit :

Propriétés structurales : La distance inter-plane à partir du substrat est calculée par un processus d'optimisation de l'énergie totale en fonction de la distance $E = f(d/f_0)$. Nous avons trouvé que le film de Fer cristallise dans la structure bct (body centred tetragonal) avec les paramètres $a = b = 2,687 \text{ \AA}$ et $c/a = 1.191$.

Propriétés magnétiques : à travers les densités d'états électroniques DOS, il s'est avéré que le moment magnétique des systèmes étudié est très appréciable avec un couplage inter-plan ferromagnétique

Propriétés magnéto-optique : La réponse magnéto-optique que nous avons étudiée a révélé que le système *Fen/Ir(001)* est caractérisé par un pic négatif dans le domaine ultraviolet et tend à se décaler vers les énergies élevées lorsque n augmente $E = 10\text{eV}$

Nos calculs des propriétés magnéto-optiques montrent que les transitions inter bandes responsables des rotations Kerr ont lieu dans les plans de surface pour les films de l'Ir et dans les plans de surface ainsi que les plans adjacents à la surface pour les films du Fer. Les symétries impliquées dans les transitions sont, dans leur majorité, de type non-spin-flip pour les films de Iridium et de type $d\uparrow \rightarrow p\uparrow$ dans les films de Fer.

En conclusion, dans le cadre de ce travail, nous n'avons pas seulement calculé la structure cristalline, le moment magnétique et la rotation Kerr, mais nous avons également déterminé l'origine microscopique des pics qui apparaissent dans les spectres de l'effet Kerr.

Résumé :

Dans ce travail, Nous avons étudié les comportements structurales, magnétiques et magnéto-optiques des films ultramines de Fer déposés par épitaxie sur un substrat de l'Iridium suivant la direction (001) définis par la formule Fe_n/Ir (001) avec $n = 1, 2, 3$, susceptibles d'être utilisés dans des applications technologiques notamment dans le domaine de stockage et d'enregistrement magnétique. Dans cette étude, Nous avons effectué des simulations en appliquant les méthodes ab-initio se basant sur la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT) dans le cadre de l'approximation de la densité locale des spins (LSDA). Les résultats montrent que la structure trouvée est bct (body centred tetragonal) avec un taux de tétragonalité $c/a=1.691$.

Les propriétés magnéto-optiques sont mises en évidence à travers le calcul des spectres de l'effet Kerr dans sa géométrie polaire (MOKE) et qui ont montré une réponse s'étalant du visible jusqu'à l'ultraviolet.

ملخص:

في هذا العمل، درسنا السلوكيات الهيكلية والمغناطيسية والمغناطيسية الضوئية للأغشية رقيقة جدا من الحديد المترسبة بواسطة الفوق الفوقي على ركيزة إيريديوم تمتد في الاتجاه (001) المحدد بواسطة الصيغة Fen / Ir مع $n = 1, 2, 3$ ، يمكن استخدامها في التطبيقات التكنولوجية، ولا سيما في مجال التخزين والتسجيل المغناطيسي. في هذه الدراسة، أجرينا عمليات محاكاة من خلال تطبيق ab-initio بناءً على نظرية الكثافة الوظيفية (DFT) في إطار تقريب كثافة الدوران المحلي (LSDA). أظهرت النتائج أن الهيكل الموجود هو bct (محور الجسم رباعي الزوايا) بمعدل رباعي الزوايا $c / a = 1.691$. يتم إثبات الخصائص من خلال حساب أطيف تأثير كبير في هندستها القطبية (MOKE)، والتي أظهرت استجابة تتراوح من المرئي إلى فوق البنفسجي.

Abstract:

In this work, we have studied the structural, magnetic and magneto-optical behaviors of ultrathin films of Iron deposited by epitaxy on a Rhodium substrate in the direction (001) defined by the formula Fen/Rh (001) with $n = 1, 2, 3$, capable of being used in technological applications, in particular in the field of storage and magnetic recording. In this study, we performed simulations by applying the abinitio methods based on density functional theory (DFT) within the framework of local spin density approximation (LSDA). The results show that the structure found is bct (body centred tetragonal) with a tetragonality rate $c / a = 1.191$.

The magneto-optical properties are carried out by the calculation of the Kerr effect spectra in its polar geometry (MOKE), which showed a response ranging from visible to ultraviolet.