

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université de Sétif-1



THESE

Présentée à la faculté des Sciences
Département de Physique
Pour l'Obtention du Diplôme de
Doctorat en sciences

Option: Physique du solide
Par

Mr. OUARAB NOUREDINE

THEME

Etude théorique des propriétés structurales, de la structure électronique, du magnétisme et de l'effet Kerr dans les films ultramines ferrimagnétiques.

Soutenue publiquement le 27/11/2016 devant le jury composé de:

Présidente	Amel Kara-Hachemi	Professeur	Université de Sétif1
Rapporteur	Abdelhalim Haroun	Professeur	Université de Sétif1
Examineurs	Hugues Dreyssé	Professeur	Université de Strasbourg
	Abdelhamid Ziane	Professeur	Université de Tizi-Ouzou
	Abdelmadjid Boussendel	MCA	Université de M'sila
Invité	Nadjib Baâdji	MCA	Université de M'sila

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord Monsieur le Professeur Haroun Abdelhalim, mon directeur de thèse, pour m'avoir permis de réaliser ce travail, qui m'a encadré au jour le jour pendant la durée de cette thèse. Qu'il en soit chaleureusement remercié.

Je voudrais remercier en particulier notre cher invité le Docteur Nadjib Baâdji pour le temps de travail que nous avons consacré ensemble, les remarques, les conseils et les discussions constructives qui m'ont permis d'améliorer la qualité de mon travail.

Je voudrais témoigner ma profonde reconnaissance envers Madame le Professeur Amel Kara-Hachemi de l'université de Sétif pour le grand plaisir qu'elle me fait en acceptant de présider la commission du jury.

Je suis également très reconnaissant envers les membres du jury pour avoir examiné ce travail. Monsieur le Professeur Hugues Dreyssé de l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS) qui m'a fait l'honneur d'en accepter d'être présent et juger mon travail. Monsieur le Professeur Abdelhamid Ziane de l'université de Tizi-Ouzou d'avoir accepté de juger ce travail. Monsieur le Docteur Abdelmadjid Boussendel de l'université de M'sila d'avoir accepté également de juger ce travail. Une grand Merci pour votre patience et votre confiance.

Je tiens à remercier ma famille pour leur soutien et tout particulièrement mes parents qui m'ont toujours soutenu inconditionnellement.

Mes remerciements sont également à ma femme pour son encouragement et pour le souffle que j'ai reçu de sa part dans des moments qui ont été parfois critiques et difficiles.

Remerciements	2
Table des matières	3
0. Introduction générale	5
1. Formalisme théorique et méthodes de calcul	8
1.1. Positionnement du problème	9
1.2. Formalisme de la DFT	12
1.2.1. Théorèmes de Hohenberg-Kohn	13
1.2.2. Méthode de Kohn-Sham	14
1.3. Choix du potentiel d'échange-corrélation de Kohn-Sham (V_{eff} de Kohn-Sham)	16
1.3.1. Approximation de la densité locale (LDA)	16
1.3.2. Approximation de la densité locale des spins et du gradient généralisé (LSDA-GGA)	17
1.4. Importance des effets relativistes et du couplage spin-orbite	18
1.4.1. Origine relativiste du spin	19
1.4.2. L'équation de Klein-Gordon	19
1.4.3. Construction de l'équation de Dirac	20
1.4.4. Equation de Dirac dans un champ électromagnétique	23
1.5. Résolution de l'équation de Kohn-Sham	24
1.5.1. La méthode linéaire des ondes planes augmentées (FP-LAPW)	24
1.5.2. La méthode des ondes planes augmentées (APW)	24
1.5.3. La méthode des orbitales muffin-tin linéarisées	27
I. La fonction d'onde de l'électron de valence dans le cristal	31
II. La matrice densité	32
1.5.4. La méthode spin polarized relativistic LMTO	33
1.6. Convergence et stabilité	34
2. Effet Kerr magnéto-optique dans les métaux de transition	35
2.1. Introduction	36
2.2. La théorie classique du tenseur de la conductivité	37
2.3. Le champ électromagnétique dans le solide	40
2.4. Les vecteurs et les matrices de Jones pour décrire la lumière polarisée	43
2.5. Explication macroscopique de l'effet Kerr magnéto-optique	45
2.6. La théorie microscopique classique	47
2.6.1 Le modèle classique de Lorentz-Drude	48

2.6.2 Les composantes non-diagonales du tenseur diélectrique	50
2.7. La théorie quantique de l'effet Kerr magnéto-optique	51
2.8. Le calcul de la structure de bandes et le tenseur de conductivité optique	54
3. Les films ultraminces de chrome et de manganèse	56
3.1. Introduction	57
3.1.1. L'enregistrement magnétique longitudinal et perpendiculaire	57
3.1.2. La rupture de symétrie et l'hybridation à l'interface	59
3.1.3. Détails de calcul	59
3.2. Les propriétés magnétiques des films ultraminces de manganèse et de chrome- Résultats antérieurs	62
3.3. Reconstruction de surface et les configurations magnétiques	63
3.4. Résultats et discussion	65
3.4.1. Système Cr/Ag(001)	65
• Propriétés structurales	65
• Propriétés magnétiques	67
• Propriétés magnéto-optiques	71
3.4.2. Système Mn/Ag(001)	74
• Propriétés structurales	74
• Anisotropie magnétique du film de Mn	77
• Propriétés magnéto-optiques	81
3.4.3. Système Mn/Au(001)	88
4. Conclusion générale	94
Liste des figures	95
Liste des tableaux	97
Bibliographie	98
Liste des publications	103
Participations aux écoles de formation	104
Participations aux communications internationales	104

Introduction générale

Dans la technologie moderne des ordinateurs, le besoin des supports de stockage et le rapide accès aux données informatiques ne cesse d'augmenter. Des disques durs ont été développés au moyen de la technique d'enregistrement magnéto-optique vers le début des années 1980. L'information en code binaire est stockée sur des domaines magnétiques répartis sur un film magnétique. La lecture se fait par la détection des variations de champ magnétique créé par ces domaines à la surface du film en corrélation avec le champ de la micro-bobine. Cette méthode est peu sensible et le dispositif est difficile à miniaturiser. Le passage à la lecture par des têtes à magnétorésistance est nécessaire. Mais, la véritable révolution apparaît par l'introduction des têtes de lecture à « vanne de spin », ces têtes ont permis de réduire fortement la dimension des bits magnétiques, conduisant ainsi à une haute augmentation de la densité d'information stockées. La mise au point de la vanne de spin succède la découverte de la magnétorésistance géante (GMR) des multicouches ferromagnétiques découverte en 1988 [1,2]. Actuellement, un nouveau concept très répandu en magnétisme est celui de la spintronique. Elle peut se décrire comme une électronique qui exploite à la fois la charge et le spin des électrons. Pour mieux comprendre ce concept, des matériaux ferromagnétiques sont placés sur la trajectoire des électrons dans le but d'étudier l'influence du spin sur la mobilité des électrons. L'existence de courant polarisé en spin est suggérée par Mott [3] et démontrée par des expériences basées sur des modèles théoriques vers la fin des années 60 [4, 5]. Un matériau magnétique est caractérisé par un décalage des bandes d'énergie des électrons au niveau de Fermi [6]. La différence entre les densités d'états des spins up (spins \uparrow) et les spins down (spins \downarrow) est à l'origine de l'aimantation spontanée des matériaux. La spintronique est visible dans des dispositifs de taille nanométrique, à savoir les films ultraminces de Fe/Ag [7], les fils quantiques, les multicouches minces de Fe/Cr [8] et les clusters magnétiques. Dans ces dispositifs, un appel à la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est primordiale pour résoudre l'équation relativiste de Kohn-Sham-Dirac [9]. La polarisation en spin et le couplage spin orbite doivent être inclus dans cette équation. Parmi les applications de la spintronique, on peut citer la jonction tunnel magnétique (MTJ) qui est composée de deux couches minces ferromagnétiques séparées par une très fine barrière d'un isolant, tel que l'alumine (Al_2O_3). Les électrons forment un courant perpendiculaire aux couches qui dépend de l'orientation relative des aimantations des électrodes magnétiques. Ce résultat de la géométrie verticale permet de l'insérer dans des nouveaux circuits mémoires, les MRAM (Magnetic Random Access Memory). Ces dernières devraient avoir des densités et

des temps d'accès semblables à ceux des mémoires actuelles à base des matériaux semi-conducteurs à accès rapide de type Dynamic-RAM ou Static-RAM.

Notre étude théorique est consacrée aux propriétés structurales, à la structure électronique, au magnétisme et à l'effet Kerr magnéto-optique des couches ultraminces à base des métaux de transition déposées sur un métal noble, notamment les films ultraminces de Mn/Ag(001) [6], Cr/Ag(001) et Mn/Au(001). Ils sont de taille nanométrique, susceptibles d'être utilisés dans la spintronique. Leurs orbitales atomiques sont largement modifiées au niveau de l'interface entre le film et le substrat sous l'effet de la rupture de symétrie. Les propriétés magnétiques dépendent fortement de la structure cristalline des films [10,11]. Le changement dans les paramètres de la maille des films peut induire un comportement magnétique différent. Ce résultat peut être exploité pour l'enregistrement magnétique, la distance entre les bits magnétiques doit être le minimum possible afin que l'anisotropie magnétique puisse orienter tous les moments de spins perpendiculairement au film. L'effet Kerr magnéto-optique [12,13] est l'une des techniques standards pour étudier la réponse spectrale des films magnétiques. Il est utilisé dans sa géométrie polaire pour mettre en évidence l'orientation des moments des spins perpendiculairement à la surface. On obtient ainsi des rotations Kerr significatives dans le domaine du visible.

Pour étudier les phénomènes magnéto-optiques dans ces films, nous avons utilisé en premier lieu la méthode self auto-cohérente spin polarized relativistic linear muffin-tin orbitals in atomic sphere approximation (SPR-LMTO-ASA) implémentée dans le code LMTO 5.00.2 [14]. Cette dernière nous permet de calculer les propriétés magnétiques, car les fonctionnelles de la LMTO décrit mieux les électrons relativistes aux spins polarisés. Nous avons également utilisé le code Wien2k [15] à l'aide d'une méthode qui a été retenue en raison de son efficacité extraordinaire depuis longues années. Cette méthode est la FP-LAPW (Full Potential- Linearized Augmented Plane Waves) développée par Anderson en 1975 [16].

Ce présent document se compose de trois chapitres constructifs. Le premier chapitre est consacré à l'étude de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Nous allons illustrer les méthodes principales de résolution, dont nous aurons besoin dans la poursuite de notre travail. L'approche relativiste est incluse pour reconstituer et donner une forme finale de la DFT. Nous avons présenté le formalisme théorique et relativiste de la méthode des orbitales Muffin-Tin linéarisées. Nous avons calculé la structure de bande des systèmes (Cr_n , Mn_n)/Ag(001) et Mn_n/Au(001) dans le but d'étudier les spectres de l'effet Kerr dans sa géométrie polaire. L'introduction de la méthode FP-LAPW est primordiale, car la LMTO

n'effectue pas les calculs d'ondulation ni sur la position des atomes ni sur les volumes des supercellules utilisées. Le deuxième chapitre est réservé à l'étude théorique du comportement de l'effet Kerr dans l'approche classique aussi bien dans l'approche quantique. Une explication de la manière de calcul des rotations Kerr est donnée et la polarisation de la lumière est expliquée par les vecteurs et les matrices de Jones. Ainsi dans le troisième chapitre, nous allons discuter les résultats de nos calculs et les confronter avec les résultats expérimentaux.

L'équation d'état de Birch-Murnaghan [17] est utilisée dans des conditions extrêmes de pression pour une optimisation des paramètres de maille dans le plan et sur l'axe de croissance (001). Les résultats montrent une dépendance entre les propriétés structurales et le comportement magnétique. Les calculs effectués montrent que le film de manganèse cristallise en structure tétragonale centrée (bct), avec $a=b=2,73\text{\AA}$ et $c/a=1,24$, sur le substrat d'argent. Il cristallise en bct également sur le substrat de l'Au avec $a=b=2,72\text{\AA}$ et $c/a = 1,32$. Cependant, le film de chrome cristallise aussi en structure bct sur le substrat d'argent avec $a=b=2,89\text{\AA}$ et $c/a=1,25$. Le calcul des moments magnétiques montre une augmentation jusqu'aux valeurs de $\sim 4,08\ \mu_B$ et $4,16\ \mu_B$ pour une monocouche de Mn et Cr, respectivement. Nos films montrent un couplage ferrimagnétique et une anisotropie perpendiculaire. Ces résultats nous permettent d'étendre nos investigations aux propriétés magnéto-optiques à travers les réponses spectrales de P-MOKE et relativement aux transitions interbandes responsables des différents pics des rotations Kerr. Les spectres Kerr montrent des pics significatifs dans le domaine du visible et les énergies des photons incidents sont élargies jusqu'au 10 eV.

Chapitre I :

Formalisme théorique et méthodes de calcul

Les études quantiques permettent aujourd'hui d'explorer les propriétés physiques et fondamentales de la matière sans connaissance expérimentale a priori des systèmes étudiés. Il est ainsi possible de pousser les calculs à des précisions croissantes pour des systèmes de plus en plus larges en terme de nombre d'atome par supercellule, des grandeurs aussi diverses comme la relaxation cristalline des plans atomiques, les constantes élastiques, les coefficients d'absorption, la conductivité, et l'optimisation des paramètres intrinsèques de la matière sont mieux reproduites. L'absence de paramètres empiriques permet de plus à ces approches d'explorer la matière dans des conditions extrêmes inaccessibles à l'expérience. Leur caractère prédictif autorise finalement les simulations quantiques à proposer de nouveaux matériaux, dans l'attente d'une hypothétique synthèse expérimentale.

Formalisme théorique et méthodes de calcul

La DFT (Théorie de la Fonctionnelle de la Densité) permet aujourd'hui d'explorer les propriétés fondamentales de la matière sans connaissances expérimentales a priori des systèmes étudiés. Il est ainsi possible d'étudier des matériaux dans des conditions extrêmes à un seul inconvénient que les calculs ab-initio sont couteux en temps machines. Le présent travail est consacré au traitement des propriétés structurales, électroniques et magnéto-optiques des films ultraminces ainsi que l'étude d'interface (Film/Substrat). La méthode utilisée s'appuie sur l'approximation des orbitales Muffin-Tins développées par Andersen en 1975 [16]. Elle consiste à subdiviser le réseau cristallin en sphères Muffin-Tins, leur potentiel est supposé être à symétrie sphérique, baignées dans la région interstitielle où le potentiel est égal à zéro Muffin-Tin. En effet, le choix de cette méthode réduit le problème de tous les électrons à une base mono électronique située sur des sites atomiques dans la région interstitielle. Cette méthode est appropriée à des applications sur des systèmes de faibles dimensionnalités (surfaces et interfaces) comme le cas de notre étude.

1. Théorie de la fonctionnelle de la densité

1.1. Positionnement du problème

Le traitement d'un système quantique réel est souvent confronté au problème du nombre important de variables électroniques et nucléaires rendant leur résolution une tâche lourde. Pour surmonter ces difficultés, la recherche des alternatives et des approximations mathématiques est nécessaire. Toutes ces études ont été commencées dans les années vingt quand Born et Oppenheimer [18-20] ont considéré que les noyaux étaient pris immobiles afin d'éliminer leurs énergies cinétiques dans l'Hamiltonien et ainsi avoir une forme plus réduite. Dans le cas général, l'Hamiltonien d'un solide à N atomes s'écrit sous forme d'une somme des énergies cinétiques des électrons et noyaux ainsi que leur énergie potentielle essentiellement d'origine Coulombienne.

$$H_{solide} = \sum_j \frac{P_j^2}{2M_j} + \sum_i \frac{p_i^2}{2m_i} + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(\sum_{k>l} \frac{e^2}{r_{ik}} + \sum_{jk} -\frac{Ze^2}{r_{jk}} + \sum_{j<L} \frac{Z_j Z_L e^2}{R_{jL}} \right) \quad (1.1)$$

- Le 1^{er} et le 2^{ème} terme reflètent l'énergie cinétique des noyaux et électrons, respectivement.
- Les trois derniers termes représentent l'interaction électron-électron, électron-noyau et noyau-noyau, respectivement. Les indices i, j, k et L sont les indices de sommation.

Cette approximation est ainsi appliquée pour réduire le problème de tout corps (électrons et noyaux) à un problème des électrons seuls. L'Hamiltonien prend une nouvelle forme :

$$H_{solide} = \sum_i \frac{p_i^2}{2m_i} + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(\sum_{k>i} \frac{e^2}{r_{ik}} + \sum_{jk} -\frac{Ze^2}{r_{jk}} \right) \quad (1.2)$$

Ou bien :

$$H_e = T_e + V_{e-e} + V_{e-N} \quad (1.3)$$

L'approximation de Born-Oppenheimer nous a ramené au problème d'un système polyélectroniques difficile à résoudre, elle génère un nombre d'équations différentielles simultanées égales au nombre d'électrons du système. Bien entendu, cette dernière a certes permis de réduire la complexité du problème mais sans pour autant le résoudre. Elle néglige les effets de corrélations électroniques. Peu de temps après, les idées ont été orientées vers la recherche des fonctions d'ondes pour lesquelles tous les électrons seront bien décrits. En 1928, Hartree [21] a tenté de résoudre le problème poly-électronique sur la base monoélectronique, il a considéré que la fonction d'onde totale du système comme étant le produit d'un ensemble des fonctions d'onde mono-électroniques, chacune de ces fonctions est solution de l'équation de Schrödinger d'un électron dans un potentiel moyen effectif V_{eff} (potentiel de Hartree) qui tient compte de l'interaction de ce dernier avec les autres électrons sur la base de la théorie du champ moyen (Mean Field Theory). La fonction d'onde sera donnée par l'équation :

$$\psi(\vec{r}) = \prod_{i=1}^N \phi_i(\vec{r}) \quad (1.4)$$

Là, $\phi_i(\vec{r})$ est la fonction d'onde propre de l'Hamiltonien d'un électron i vérifiant l'équation :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_i^2 + V_{eff} \right) \phi_i(\vec{r}) = E_i \phi_i(\vec{r}) \quad (1.5)$$

Pour chercher l'expression de potentiel effectif de Hartree V_{eff} on utilise la méthode des variations qui nous permet d'écrire :

$$\langle H_e \rangle_\psi = \frac{\langle \psi | H_e | \psi \rangle}{\langle \psi | \psi \rangle} \Rightarrow \langle H_e \rangle_\psi = \langle \psi | H_e | \psi \rangle \quad (1.6)$$

Car les fonctions d'ondes $\psi(\vec{r})$ sont normalisées, et après calcul, l'équation aux valeurs propres de l'électron i sera donnée par :

$$\left[T_{e_i} - \underbrace{K \sum_k \frac{Ze^2}{|r_i - r_k|} + \frac{K}{2} \sum_{j \neq i} \langle \phi_j | \frac{e^2}{|r_i - r_j|} | \phi_j \rangle}_{V_{eff}} \right] | \phi_i \rangle = E_i | \phi_i \rangle \quad (1.7)$$

L'équation (1.7) est dite de Hartree, qui est une équation non linéaire en $\phi(r)$ dont la résolution fait appel à un processus itératif basé sur la méthode des variations. Le potentiel de Hartree devient :

$$V_{eff} = -K \left[\sum_k \frac{Ze^2}{|r_i - r_k|} + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \langle \phi_j | \frac{e^2}{|r_i - r_j|} | \phi_j \rangle \right] \quad (1.8)$$

Le facteur $\frac{1}{2}$ est introduit afin ne pas répéter les interactions entre les électrons (j) avec celles des électrons (i). Alors, Les fonctions propres de la solution permettent de calculer une nouvelle densité électronique :

$$\rho(r) = \sum_i \phi_i(r)^* \phi_i(r) \quad (1.9)$$

L'équation de Poisson exprime la relation entre la densité de charge et le potentiel de Hartree i.e. $\Delta V_H(r) = -\rho(r)/\epsilon_0$ où ϵ_0 est la permittivité du vide sous-tend le cycle auto-cohérent, puisque la fonction d'onde et la densité de charge sont interdépendantes. D'où on propose une solution auto-cohérente au problème du système électronique de l'équation de Hartree. Mais, l'approximation de Hartree est confrontée à deux problèmes :

- La fonction d'onde proposée par Hartree ne tient pas compte l'interaction d'échange entre les électrons.

$$\psi(r_1, r_2, \dots, r_i, \dots, r_j, \dots, r_N) = -\psi(r_1, r_2, \dots, r_j, \dots, r_i, \dots, r_N)$$

- Elle est incompatible avec le principe d'exclusion de Pauli.

V. Fock [22] a apporté des corrections en prenant en considération l'antisymétrie des fonctions d'ondes et assuré le principe d'exclusion de Pauli. La fonction d'onde totale ne peut être obtenue que par un déterminant de Slater [23] qui incorpore à la fois les permutations possibles r_i modulées par ± 1 . Elles sont effectuées de manière à obéir à la règle d'exclusion de Pauli $\phi_i^{\uparrow\downarrow}(r_j) = \phi_i(r_j) \cdot \sigma_j^{\uparrow\downarrow}$ [24]. On peut écrire

$$\psi(r_1, r_2, \dots, r_N) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \phi_1^{\uparrow\downarrow}(r_1) & \phi_1^{\uparrow\downarrow}(r_2) & \dots & \phi_1^{\uparrow\downarrow}(r_N) \\ \phi_2^{\uparrow\downarrow}(r_1) & \phi_2^{\uparrow\downarrow}(r_2) & \dots & \phi_2^{\uparrow\downarrow}(r_N) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \phi_N^{\uparrow\downarrow}(r_1) & \phi_N^{\uparrow\downarrow}(r_2) & \dots & \phi_N^{\uparrow\downarrow}(r_N) \end{vmatrix} \quad (1.10)$$

Où $\frac{1}{\sqrt{N!}}$ est la constante de normalisation de cette fonction d'onde. La condition d'antisymétrie est obtenue en permutant deux électrons entre eux, deux colonnes seront permutées et le déterminant changera de signe. Aussi, si deux électrons occupent le même état cela se traduit par l'égalité de deux lignes et le déterminant s'annule, de même pour la fonction d'onde totale du système. Autrement dit, le principe d'exclusion de Pauli sera satisfait. Par l'application du

principe variationnel, la valeur moyenne de l'Hamiltonien total du système est donnée sous l'expression de la nouvelle fonction d'onde de Hartree-Fock. Pour l'électron i , l'équation aux valeurs propres de Schrödinger sera donnée par :

$$E_i |\phi_i\rangle = \left[T_{e_i} - V_i^N + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \langle \phi_j(r_j) | V_{ij} | \phi_j(r_j) \rangle - \underbrace{\frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \langle \phi_j(r_j) | V_{ij} | \phi_i(r_j) \rangle}_{\text{couplage d'échange}} \right] |\phi_i\rangle \quad (1.11)$$

L'équation (1.11) est dite équation de Hartree-Fock ayant un terme d'échange supplémentaire par rapport à l'équation de Hartree, et elle n'est pas linéaire en $\phi(r)$. Par conséquent, on peut la résoudre que dans le cas d'un gaz d'électrons libres, lorsque le potentiel est périodique et les fonctions $\phi_i(r)$ sont choisies orthonormées. L'échange est décrit par une séparation spatiale entre les électrons de même spin, illustré par le trou de Fermi. Tandis que les corrélations sont prises par rapport à la séparation entre deux électrons de spins opposés. On voit que l'approximation de Hartree-Fock ne rend pas compte des interactions d'échange-corrélation. La contribution à l'énergie totale due à la corrélation apparaît comme la différence entre l'énergie totale du système électronique et celle de Hartree-Fock.

$$E_{corr} = E_{exacte} - E_{HF} \quad (1.12)$$

E_{HF} étant toujours supérieur à E_{exacte} , E_{corr} est une quantité négative. Intuitivement, le trou de corrélation doit être plus petit que celui d'échange, mais on parlera du même trou d'échange-corrélation, son énergie est E_{XC} , E_{exacte} que l'on souhaite atteindre :

$$E_{exacte} = E_{Hartree} - E_{XC} \quad (1.13)$$

1.2. Formalisme de la DFT

La théorie de la DFT est basée sur deux théorèmes de Hohenberg-Kohn [25]. L'idée est d'écrire l'énergie totale du système comme une fonctionnelle de la densité de charge électronique. Elle a été introduite par Thomas-Fermi en 1927 [26, 27], développée théoriquement par Hohenberg-Kohn en 1964 pour la formulation de la théorie de la DFT. En 1965, Kohn-Sham [9] ont développé une approche de calcul des structures électroniques. En général, l'étude quantique des systèmes poly-électroniques est basée sur une recherche des fonctions d'onde propres correspondantes aux énergies propres qui sont solutions de l'équation aux valeurs propres de Schrödinger.

$$H|\psi\rangle = E|\psi\rangle \quad (1.14)$$

La fonction d'onde utilisée dans ce contexte est donnée par l'équation (1.10) qui dérive du déterminant de Slater. La densité de charge électronique a une importance capitale pour la

détermination du nombre d'électrons de valence dans un solide et du potentiel externe. Dans la nouvelle base des fonctions d'ondes et d'après l'équation (1.10), la densité de charge électronique s'écrit :

$$\rho(\vec{r}) = \langle \psi | \psi \rangle = \sum_{\sigma_i} \int \psi^*(\vec{r}_i) \psi(\vec{r}_i) d\vec{r}_i \quad \text{avec } i = 1, 2, \dots, n \quad (1.15)$$

Les occupations électroniques du système sont exprimées par :

$$N = \int \rho(\vec{r}) d\vec{r} \quad (1.16)$$

L'énergie sera minimale si sa densité est égale à celle de l'état fondamental. Kohn et Sham ont dérivé de cette théorie des équations similaires à l'équation de Schrödinger pour un système d'électrons, chacun d'entre eux voit un potentiel moyen créé par les autres électrons, les différentes méthodes de structure électronique ont pour but la solution de ces équations.

1.2.1. Théorèmes de Hohenberg-Kohn

Théorème. 1 : «*L'énergie totale d'un système est décrite par une fonctionnelle unique de la densité électronique de l'état fondamental.*».

Théorème. 2 : «*La densité de charge électronique de l'état fondamental correspond à l'énergie $E[\rho(r)]$ la plus basse.*».

La densité électronique de l'état fondamental permet la détermination de sa fonction d'onde, mais le théorème de Hohenberg-Kohn ne construit pas l'application $\rho(r) \rightarrow \psi[\rho(r)]$ qui permet de déterminer la fonctionnelle universelle de la densité électronique. Pour illustrer cette dépendance, nous écrivons $\psi[\rho(r)]$ qui est à l'origine du 2^{ème} théorème de Hohenberg-Kohn. L'application de ces théorèmes aux systèmes poly-électroniques à l'état fondamental est manifestée par la formulation des minimums des énergies totales qui coïncident avec les densités de charge propres à leur état fondamental. Pour un potentiel externe $V_{ext}[\rho] = V_{e-N}$, l'usage de l'équation (1.3) dans l'équation (1.6) donne :

$$E[\rho] = \underbrace{\langle \psi | T_e + V_{e-e} | \psi \rangle}_{F[\rho]} + \langle \psi | V_{e-N} | \psi \rangle + \int V_{e-N}[\rho] \rho(\vec{r}) d\vec{r} = F[\rho] + V_{e-N}[\rho] \quad (1.17)$$

$F[\rho]$ ne comporte aucune information sur les noyaux ni sur leurs positions. Elle est entièrement indépendante du potentiel des noyaux qui est déterminé à partir de la densité de charge de l'état fondamental. Cette dernière est calculée à son tour par la méthode de Kohn-Sham à travers une résolution de leurs équations mono-électroniques. Pour la démonstration

des deux théorèmes de Hohenberg-Kohn, voir par exemple la thèse de Magister de N. Ouarab [28].

1.2.2. Méthode de Kohn-Sham

Kohn-Sham ont mis en œuvre une opération pour l'obtention d'une fonctionnelle universelle $G[\rho]$ entièrement indépendante du potentiel des noyaux. Ils ont supposé que la nouvelle fonctionnelle a une forme de sommation d'un écart d'énergie entre l'interaction exacte $V_{e-e}[\rho]$ et l'interaction Coulombienne $V_H[\rho]$ avec la partie cinétique, on peut écrire :

$$G[\rho] = F_{HK}[\rho] - \underbrace{\int v_H(\vec{r})[\rho]\rho(\vec{r})d\vec{r}}_c = F_{HK}[\rho] - F_{HK}[\rho] \quad (1.18)$$

Afin de construire le potentiel effectif de Kohn-Sham $V_{KS}[\rho]$, cette équation a été établie pour un système hypothétique d'électrons sans interaction (S) et de densité de charge $\rho(\vec{r})$ similaire à celle d'un système réel. Dans un système hypothétique, la fonctionnelle de Hohenberg-Kohn est réécrite sous la forme :

$$\left\{ \begin{aligned} F_{HK}[\rho] &= T_e[\rho] + V_{e-e}[\rho] + \{T_s[\rho] - T_s[\rho]\} \\ &= T_s[\rho] + V_{e-e}[\rho] + \underbrace{\{T_e[\rho] - T_s[\rho]\}}_{E_c[\rho]} \\ &= T_s[\rho] + V_{e-e}[\rho] + E_c[\rho] + \{V_H[\rho] - V_H[\rho]\} \\ &= T_s[\rho] + V_H[\rho] + E_c[\rho] + \underbrace{\{V_{e-e}[\rho] - V_H[\rho]\}}_{E_x[\rho]} \\ &= T_s[\rho] + V_H[\rho] + \underbrace{\{E_c[\rho] - E_x[\rho]\}}_{E_{xc}[\rho]} \end{aligned} \right. \Rightarrow G_{KS}[\rho] = F_{HK}[\rho] - V_H[\rho] = T_s[\rho] + E_{xc}[\rho] \quad (1.19)$$

E_{XC} décrivant le terme d'échange-corrélation (eXchange-Correlation, XC). Alors, Kohn-Sham proposent ainsi d'écrire l'énergie totale du système sans interaction sous la forme [28] :

$$E[\rho(r)] = T_s[\rho(r)] + \int [v_{ext} + V_H(r)]\rho(r)d^3r + E_{xc} \quad (1.20)$$

Dans ces conditions, l'équation aux valeurs propres de Schrödinger d'un électron ' i ' soumis au potentiel effectif de Kohn-Sham $V_{KS}[\rho]$ peut s'écrire :

$$H_i |\phi_i\rangle = \varepsilon_i |\phi_i\rangle \Rightarrow \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_i^2}{2m_e} + V_{KS}[\rho] \right) |\phi_i\rangle = \varepsilon_i |\phi_i\rangle \quad (1.21)$$

Où les fonctions qui figurent dans l'équation (1.21) sont les orbitales mono-électroniques de Kohn-Sham (spin-orbital) de l'électron i noté aussi $|\phi_i^{KS}\rangle$. A ce niveau, nous signalons la ressemblance de cette équation avec celle de Hartree-Fock, à la seule différence que le potentiel effectif est le même pour tous les électrons, ce qui n'est pas le cas pour l'équation de Hartree-Fock. Les spins orbitaux du système mono-électronique définissent leur état

fondamental ψ représenté comme un déterminant de Slater en absence de la corrélation entre les électrons. Pour tenir compte de l'effet d'échange de ces derniers, nous considérons le spin comme un degré de liberté supplémentaire des états $|\phi_i^{KS}\rangle$ et nous allons trouver des fonctions d'ondes pour les spins up $|\phi_{i\uparrow}^{KS}\rangle$ et pour les spins down $|\phi_{i\downarrow}^{KS}\rangle$. Cependant, la densité ρ_{sm} du système mono-électronique est la même que celle du système réel ($\rho_{sm} = \rho$) et elle sera donnée par :

$$\rho_{sm}(r) = \rho(r) = \underbrace{\sum_{i=1}^{N_{\uparrow}} |\phi_{i\uparrow}^{KS}(R)|^2}_{\rho_{\uparrow}} + \underbrace{\sum_{i=1}^{N_{\downarrow}} |\phi_{i\downarrow}^{KS}(R)|^2}_{\rho_{\downarrow}} \quad (1.22)$$

On aboutit finalement à la relation qui relie l'énergie cinétique T_{sm} à la densité ρ :

$$T_{sm}[\rho(r)] = T_{sm}[\rho_{\uparrow}] + T_{sm}[\rho_{\downarrow}] = \sum_{i=1}^{N_{\uparrow}} \langle \phi_{i\uparrow}^{KS} | -\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_e} | \phi_{i\uparrow}^{KS} \rangle + \sum_{i=1}^{N_{\downarrow}} \langle \phi_{i\downarrow}^{KS} | -\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_e} | \phi_{i\downarrow}^{KS} \rangle \quad (1.23)$$

Nous signalons que les orbitales $\phi_{\sigma_i}^{KS}$ définissent les densités ρ_{\uparrow} , ρ_{\downarrow} et ρ figurant dans l'équation (1.23). Elles permettent simplement de calculer la densité du système réel. Maintenant, on cherche à avoir la forme de l'énergie de Kohn-Sham, alors nous minimisons l'énergie totale du système réel par rapport à la densité électronique et on obtient :

$$\frac{\delta E[\rho(r)]}{\delta \rho(r)} = \frac{\delta T_{sm}[\rho(r)]}{\delta \rho(r)} + v_{ext} \frac{1}{2} \int \frac{\rho(r')}{|r-r'|} d^3 r' + \frac{\delta E_{xc}[\rho(r)]}{\delta \rho(r)} = \mu_{sm} \quad (1.24)$$

Où μ_{sm} est le potentiel chimique réel. On peut toujours écrire l'énergie du système mono-électronique comme une fonctionnelle de sa densité et qui vérifie le théorème de Hohenberg-Kohn. La minimisation de l'énergie du système mono-électronique conduit donc à la relation suivante :

$$\frac{\delta E[\rho(r)]}{\delta \rho(r)} = \frac{\delta T_{sm}[\rho(r)]}{\delta \rho(r)} + V_{sm} = \mu_{sm} \quad (1.25)$$

On remplace (1.25) dans (1.24) et on trouve :

$$V_{sm}(r) = V_{eff}(r) = v_{ext}(r) + \int \frac{\rho(r')}{|r-r'|} d^3 r' + \underbrace{\frac{\delta E_{xc}[\rho(r)]}{\delta \rho(r)}}_{\mu_{xc}} \quad (1.26)$$

La résolution de l'équation (1.21) est faite avec un potentiel effectif donnée par l'équation (1.26), il dépend de la densité électronique que nous voulons déterminer. Il faut effectuer un calcul du champ self-consistent où une densité électronique initiale est utilisée. Le potentiel effectif est utilisé ensuite pour la résolution de l'équation (1.21) avec une nouvelle densité électronique calculée de (1.15). Ce cycle est répété jusqu'à ce que la convergence soit atteinte. Mais, l'énergie d'échange corrélation dans l'équation (1.20) est loin

d'être calculée vu les problèmes du choix des approximations de 2^{ème} niveau. Des approximations ont été utilisées notamment la LDA et La GGA.

1.3. Choix du potentiel d'échange-corrélation de Kohn-Sham

1.3.1 Approximation de la densité locale (LDA)

L'idée de l'approximation de la densité locale est de considérer le potentiel d'échange-corrélation comme une quantité locale définie en un point r et dépend faiblement des variations de la densité autour de ce même point r . La LDA (Local Density Approximation) doit reproduire au mieux les caractéristiques physiques de la moyenne sphérique du trou d'échange-corrélation plutôt que du trou lui-même. Cette approximation est à la base de toutes les fonctionnelles d'échange-corrélation, et donc :

$$E_{xc}^{LDA}[\rho(r)] = \int \rho(r) \varepsilon_{xc}^{LDA}[\rho(r)] d^3r \quad (1.27)$$

Le terme $\varepsilon_{xc}^{LDA}[\rho(r)]$ se sépare en deux contributions, à savoir :

$$\varepsilon_{xc}^{LDA}[\rho(r)] = \varepsilon_x[\rho(r)] + \varepsilon_c[\rho(r)] \quad (1.28)$$

L'énergie d'échange-corrélation est loin d'être connue, mais le terme d'échange peut être évalué exactement, car il découle du principe d'exclusion de Pauli. Cependant, nous pouvons développer la vraie énergie d'échange E_x comme :

$$E_x[\rho(r)] = \int \varepsilon_x[\rho(r)] \rho(r) d^3r \quad (1.29)$$

Donc, la contribution à l'énergie d'échange par électron est donnée par la formule de Dirac [29] :

$$\varepsilon_x[\rho(r)] = -\frac{3}{4} \left(\frac{3}{\pi} \right)^{1/3} \rho^{1/3} = -\frac{3}{4} \left(\frac{9}{4\pi^2} \right)^{1/3} \frac{1}{r_s}, \text{ avec } \rho = \frac{3}{4\pi r_s^3} \quad (1.30)$$

L'énergie d'échange est sous la forme :

$$E_x^{LDA}[\rho(r)] = -\frac{3}{4} \left(\frac{3}{\pi} \right)^{1/3} \int [\rho(r)]^{4/3} d^3r \quad (1.31)$$

Par analogie avec l'énergie d'échange, nous exprimons l'énergie de corrélation :

$$E_c^{LDA}[\rho(r)] = \int \varepsilon_c[\rho(r)] \rho(r) d^3r \quad (1.32)$$

La question qui se pose à présent est comment expliciter la forme de l'énergie de corrélation par électron? Ceperly et Alder [30] ont calculé l'énergie d'un gaz électronique uniforme pour un grand nombre de densités en utilisant des techniques Monte-Carlo quantiques pour représenter la fonction d'onde de corrélation. Le comportement de ε_c est connu pour les très basses densités électroniques (paramétrisation de Ceperly) [31] et pour les très hautes densités (paramétrisation de Gell-Mann et Brueckner) [32]. Perdew et Zunger [31] ont interpolé une

fonction pré-choisie entre ces deux limites. Alors, la contribution de corrélation par électron est donnée par :

$$\varepsilon_c[\rho(r)] = \begin{cases} A \ln(r_s) + B + C r_s \ln(r_s) + D r_s & \text{si } r_s \leq 1 \\ \frac{\gamma}{1 + \beta_1 \sqrt{r_s} + \beta_2 r_s} & \text{si } r_s > 1 \end{cases} \quad (1.33)$$

r_s est défini comme étant r/a_0 , A , B , C et D sont des constantes calculées par Gell-Mann et Brueckner [32]. β_1 , β_2 et γ sont des paramètres calculés par Perdew et Zunger [31]. On s'attend à ce que les résultats fournis par une telle approximation ne seront bons que dans le cas où la densité est peu variable. Or, l'expérience montre le contraire. Le prix à payer avec cette approximation est qu'elle néglige certains effets relatifs à la non-localité de la densité, comme le cas du gap des isolants et des semi-conducteurs.

1.3.2. Approximation de la densité locale des spins et du gradient généralisé (LSDA-GGA)

Pour le traitement des systèmes aux spins polarisés, l'équation de Kohn-Sham (1.21) prend une nouvelle forme de manière à tenir compte des effets relativistes et du couplage spin-orbite pour la description des systèmes magnétiques. De ce fait, l'Hamiltonien dans l'équation (1.21) devient :

$$H_i = -\frac{\hbar^2 \nabla_i^2}{2m_e} + V_{KS}(\vec{r}) + \frac{1}{c^2} \left\{ (E - v_{KS}(\vec{r}))^2 + \frac{\partial v(\vec{r})}{\partial \vec{r}} \frac{\partial}{\partial r} \right\} + \lambda \vec{l} \vec{s} \quad (1.34)$$

La célérité c désigne la vitesse de la lumière dans le vide, \vec{l} le moment orbital et \vec{s} le spin de l'électron.

Afin de corriger l'erreur sur le terme d'échange et de corrélation dû à la forte corrélation des spins antiparallèles, on introduit la LSDA (Local Spin Density Approximation) dans le calcul du terme d'échange et de corrélation $E_{xc}^{LDA}[\rho(r)]$ au niveau local. De même, la LSDA repose sur les mêmes hypothèses et permet ainsi de calculer la contribution d'échange et de corrélation à l'énergie totale avec plus de précision. Alors dans le cas magnétique, nous considérons :

$$E_{xc}^{LSDA}[\rho_\uparrow(r), \rho_\downarrow(r)] = \int [\rho_\uparrow(r) + \rho_\downarrow(r)] \varepsilon_{xc}^{LSDA}[\rho_\uparrow(r), \rho_\downarrow(r)] d^3r \quad (1.35)$$

Le terme $\varepsilon_{xc}^{LSDA}[\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]$ est la densité de l'énergie par particule d'un gaz homogène au point r .

Le spin des électrons fut introduit dans le cadre de la LSDA pour décrire le magnétisme dans les matériaux, l'équation (1.28) devient :

$$\varepsilon_{xc}^{LSDA}[\rho_{\uparrow}(r), \rho_{\downarrow}(r)] = \varepsilon_x[\rho_{\uparrow}(r), \rho_{\downarrow}(r)] + \varepsilon_c[\rho_{\uparrow}(r), \rho_{\downarrow}(r)] \quad (1.36)$$

Dans la LSDA, l'énergie d'échange-corrélation se compose de quatre termes; deux pour l'énergie d'échange et deux autres pour l'énergie de corrélation selon la polarisation des spins. De même pour la densité de charge électronique, $\rho(r) = \rho_{\uparrow}(r) + \rho_{\downarrow}(r)$. Il existe différents schémas de paramétrisation pour $\varepsilon_{xc}[\uparrow, \downarrow]$, tels que : ceux anciens de Dirac [29] et Wigner [33] et d'autres plus récents, comme ceux de Von Barth-Hedin [34, 35] et Vosko, Wilk et Nusair (VWN) [36, 37]. Ils conduisent tous à des résultats similaires et obtenus avec une précision numérique de ε_{xc} et le calcul du terme E_{xc}^{LSDA} est suffisamment fiable. Notons que l'obtention de $\varepsilon_{xc}[\uparrow, \downarrow]$ ne fait pas appel à des paramètres externes empiriques dans la procédure de paramétrisation. Des améliorations ont été apportées à l'approximation locale pour introduire des termes en gradient dans l'expression de l'énergie d'échange-corrélation; parmi elles la GEA (Gradient Expansion Approximation) qui apporte des résultats moins bons. En revanche, la GGA (Generalized Gradient Approximation) [38, 39] qui introduit une combinaison entre les termes locaux en terme de gradient de la densité, donne de meilleurs résultats pour les énergies d'atomisation des molécules ainsi que pour les systèmes étendus (cristaux) où les gaps énergétiques et les éclatements des bandes dans les oxydes ou les fluorures des métaux de transition sont mieux reproduits. D'autres paramétrisations sont mieux recommandées pour la GGA qu'on pourra citer comme celle de Perdew et al [40] ou Perdew, Burke et Ernzerhof (PBE) [41]. Des versions plus récentes ont été développées par Perdew et al [42] et Tao et al [43] et elles sont utilisées pour l'évaluation de l'énergie d'échange-corrélation non seulement pour le gradient de la densité, mais aussi pour la densité de l'énergie cinétique $T(r)$. Malheureusement, de tels plans ne sont pas self-consistants.

1.4. Importance des effets relativistes et du couplage spin-orbite

Les approximations faites auparavant comme la théorie de la fonctionnelle de la densité de Hohenberg-Kohn [25] et celle de Kohn-Sham [9] sont très utilisées pour déterminer la structure des bandes pour la plupart des matériaux. Cependant, elles sont insuffisantes pour expliquer beaucoup de phénomènes liés à l'optique. La LSDA (Local Spin Density Approximation) est introduite spécialement pour expliquer le magnétisme des matériaux reste incapable d'expliquer l'anisotropie magnétique, la position de seuil d'absorption optique de l'or [44], l'effet Faraday [45], l'effet Kerr [46], le dichroïsme magnétique et la réduction de symétrie due à l'aimantation. Tous ces phénomènes ne peuvent être expliqués que lorsqu'on tient compte des effets relativistes et de couplage spin-orbite au niveau des sphères Muffin-

Tin. Hors, la vitesse des électrons est loin d'être égale à la vitesse de la lumière dans la zone interstitielle. Pour remédier à ces problèmes relativistes, on fait appel à la théorie classique des champs où on utilise l'équation de Dirac qui traite les systèmes de fermions (électrons de spin $\frac{1}{2}$).

1.4.1. Origine relativiste du spin

Le magnétisme atomique est expliqué par l'introduction d'un moment magnétique propre, indépendamment de tout mouvement de rotation dans l'espace autour d'un centre. L'existence de ce moment magnétique entraîne à son tour l'existence d'un moment cinétique propre, ou intrinsèque, qui a été baptisé spin. Le spin comme on pourra le décrire, est un degré de liberté interne qui n'a pas d'image classique. L'hypothèse de spin de l'électron a été formulée par Uhlenbeck et Goudsmit en 1925 [47]. L'existence de spin a été exposée par l'expérience de Stern et Gerlach dans sa version historique, et par l'effet Zeeman anormal. Pour mettre en évidence la nature relativiste de degré de liberté interne que constitue le spin, nous considérons le cas d'une particule libre, un électron pour fixer les idées, cette version première de la théorie est due à Dirac et s'appelle historiquement « la théorie de l'électron de Dirac ».

1.4.2. L'équation de Klein-Gordon

Partant d'un Hamiltonien classique pour une particule libre de masse m :

$$H^2 = p^2 c^2 + m^2 c^4 \quad (1.37)$$

Remplaçant la substitution : $H \rightarrow i\hbar\partial_t$, $p_i \rightarrow -i\hbar\partial_i$ dans l'équation (1.37) et on obtient :

$$-\hbar^2\partial_t^2 = -\hbar^2c^2\partial_i^2 + m^2c^4 \Leftrightarrow \partial_i^2 - \frac{1}{c^2}\partial_t^2 = \frac{m^2c^2}{\hbar^2}, \text{ avec } i = x, y, z \quad (1.38)$$

Appliquons l'équation (1.38) sur la fonction d'onde ψ et on obtient :

$$\left(\partial_i^2 - \frac{1}{c^2}\partial_t^2 - \frac{m^2c^2}{\hbar^2} \right) \psi = 0 \quad (1.39)$$

Le terme $\frac{\hbar}{mc}$ qui apparaît dans cette équation est la longueur d'onde Compton de l'électron et vaut environ 0.024 Å. L'équation (1.39) s'appelle équation de Klein-Gordon elle conduit à deux difficultés :

- C'est une équation du 2^{ème} ordre par rapport au temps, alors jusqu'ici on a admis que la connaissance de l'état à $t = 0$ suffit de déterminer l'état à tout instant ultérieur.
- L'équation de Klein-Gordon convient pour une particule de spin nul.

La forme linéarisée de l'équation de Klein-Gordon suggère d'introduire les deux combinaisons :

$$\psi_a = \psi + \frac{i\hbar}{mc^2} \partial_t \psi, \quad \psi_b = \psi - \frac{i\hbar}{mc^2} \partial_t \psi \quad (1.40)$$

D'où il résulte que :

$$\psi = (\psi_a + \psi_b), \quad \partial_t \psi = \frac{mc^2}{2i\hbar} (\psi_a - \psi_b) \quad (1.41)$$

Les deux combinaisons font penser aux deux composantes d'un spineur de rang 2. En effet, si l'on examine la limite non-relativiste, on trouve que l'une des composantes est d'ordre 0 en v/c , alors que l'autre est de l'ordre 1.

1.4.3. Construction de l'équation de Dirac

Maintenant, il s'agit de construire une équation relativiste qui tient compte des rôles symétriques aux coordonnées d'espace et de temps. En particulier, si l'on maintient l'idée d'une équation d'ordre 1 en temps, les coordonnées doivent également figurer par des dérivées du 1er ordre introduites par la forme linéarisée de l'équation de Klein-Gordon. Ce qui revient à dire que chaque combinaison ψ_a et ψ_b est en fait elle-même un doublet produit des spineurs de rang 2 [48, 49]. Finalement, chaque une d'elle peut être représentée par une fonction d'onde à quatre composantes. En retenant cette hypothèse de travail, la fonction d'onde de Dirac est désormais notée ψ_μ , avec $\mu = 1, 2, 3, 4$ tel que :

$$\psi_\mu = \begin{pmatrix} \psi_1 \\ \psi_2 \\ \psi_3 \\ \psi_4 \end{pmatrix} \quad (1.42)$$

On posera que la densité de probabilité est :

$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_{\mu=1}^4 |\psi_\mu(\vec{r}, t)|^2 \quad (1.43)$$

Dirac a posé une équation de la forme :

$$i\hbar \partial_t \psi(\vec{r}, t) = (c\vec{\alpha} \vec{p} + \beta mc^2) \psi(\vec{r}, t) \equiv H_D \psi(\vec{r}, t) \quad (1.44)$$

H_D est l'Hamiltonien de Dirac, $\vec{\alpha} = (\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z)$ est un ensemble de trois objets agissant sur des vecteurs à quatre composantes ; ils sont des matrices sans dimension physique de 4×4 , tout comme β . Ces matrices mélangent entre elles les quatre composantes ψ_μ . En présence d'un champ de forces statiques associé à l'énergie potentielle $V(\vec{r})$, la généralisation de (1.44) est :

$$i\hbar \partial_t \psi(\vec{r}, t) = [c\vec{\alpha} \vec{p} + V(\vec{r})I + \beta mc^2] \psi(\vec{r}, t) \quad (1.45)$$

Cette équation peut être réécrite sous sa forme la plus explicite :

$$\left[\frac{1}{c} \partial_t + \alpha_j \partial_j + i \frac{mc}{\hbar} \beta \right] \psi(\vec{r}, t) = 0, \text{ avec } j = x, y, z \quad (1.46)$$

L'équation (1.45) peut se simplifier aussi sous la forme :

$$\left[i\partial_4 + \alpha_j \partial_j + i \frac{mc}{\hbar} \beta \right] \psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.47)$$

Maintenant, Toute la question est de trouver les matrices $\vec{\alpha}$ et β . Il convient bien sûr de maintenir le lien avec l'équation (1.37). La façon d'agir est de faire des manipulations sur l'opérateur entre crochets dans l'équation (1.45) pour lui donner l'allure de l'opérateur apparaissant dans l'équation (1.39). Au total, il s'agit de trouver la marche à suivre permettant d'écrire une relation entre les matrices $\vec{\alpha}$ et β afin de les déterminer. Pour exhiber à partir de l'équation (1.45) une ressemblance avec le premier terme de l'équation de Klein-Gordon, il faut fabriquer des dérivées secondes en temps et en espace, sans autant faire apparaître de dérivées croisées temps-espace. Par la prise en compte de la forme (A+B) de l'opérateur au premier membre de l'équation (1.45), on montre qu'il faut introduire l'opérateur de la forme (A – B) [49] :

$$i\partial_4 - \alpha_j \partial_j - i \frac{mc}{\hbar} \beta \quad (1.48)$$

L'opérateur (1.48) sera agi sur le premier terme de l'équation (1.47), on obtient :

$$\left[i\partial_4 - \alpha_j \partial_j - i \frac{mc}{\hbar} \beta \right] \left[i\partial_4 + \alpha_k \partial_k + i \frac{mc}{\hbar} \beta \right] \psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.49)$$

Maintenant, il suffit d'expliciter les termes au premier membre et de jouer avec les indices muets de sommation pour obtenir :

$$\left[-\partial_4^2 - \frac{1}{2}(\alpha_j \alpha_k + \alpha_k \alpha_j) \partial_j \partial_k - i \frac{mc}{\hbar} (\alpha_j \beta + \beta \alpha_j) \partial_j + \left(\frac{mc}{\hbar} \right)^2 \beta^2 \right] \psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.50)$$

Cette équation se réduit à celle de Klein-Gordon à condition que les relations suivantes soient vérifiées:

$$\begin{cases} \alpha_j \alpha_k + \alpha_k \alpha_j = 2g_{jk} \Leftrightarrow \alpha_j^2 = 1 \quad (j = k = x, y, z) \\ \alpha_j \alpha_k + \alpha_k \alpha_j = 0 \text{ si } j \neq k \\ \beta^2 = 1, \alpha_j \beta + \beta \alpha_j = 0 \end{cases} \quad (1.51)$$

Les matrices (α_j et β) sont bien des matrices de rang 4*4 que nous cherchons, ils peuvent s'écrire en bloc par des matrices de rang 2*2, sachant que les relations (1.51) ne sauraient être satisfaites par des nombres ordinaires.

$$\alpha_j = \begin{bmatrix} 0 & \sigma_j \\ \sigma_j & 0 \end{bmatrix}, \beta = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \quad (1.52)$$

Où les σ_j sont les matrices de Pauli, tel que :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ +i & 0 \end{pmatrix}, \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (1.53)$$

Ici « I » est la matrice identité de rang 2×2 et $I = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$. L'ensemble des quatre matrices données par l'équation (1.52) est appelé « représentation standard de Pauli ». Etant donné qu'il existe une infinité de couple (α_j, β) vérifiant les relations (1.51), elles sont identifiables de (1.52) par une transformation unitaire quelconque [48, 51]. On écrit maintenant l'équation de Dirac dans la représentation spinorielle en prenant l'expression de p_i dans l'équation (1.38) et on la remplace dans l'équation (1.44). Avec quelques réarrangements, on aboutit à l'équation suivante :

$$\left(\partial_4 - i\alpha_i \partial_i + \beta \frac{mc}{\hbar} \right) \psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.54)$$

On multiplie par β à gauche de l'équation (1.54) et on trouve

$$\left(\beta \partial_4 - i\beta \alpha_i \partial_i + \frac{mc}{\hbar} \right) \psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.55)$$

Avec

$$\gamma^4 = \beta \Rightarrow \left(\gamma^\mu \partial_\mu + \frac{mc}{\hbar} \right) \psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.56)$$

L'Eq (1.56) est l'équation de Dirac covariante dans la représentation de spin avec :

$$\gamma_i = -i\beta \alpha_i = i\alpha_i \beta \quad (1.57)$$

$$\{\gamma^\mu, \gamma^\nu\} = 2g^{\mu\nu}, \{\gamma^\mu, \gamma^\nu\} = 0 \text{ si } \mu \neq \nu \quad (1.58)$$

On peut trouver une équation analogue à celle de Schrödinger sans oublier de mettre les unités naturelles égales à 1, c.-à-d. que $\hbar = c = 1$ et à partir de l'équation (1.44) :

$$-\partial_4 \psi(\vec{r}, t) = (\gamma^i \gamma^i \partial_i + m\gamma^4) \psi(\vec{r}, t) \quad (1.59)$$

Dans cette représentation, H_D s'écrit :

$$H_D = \begin{bmatrix} mc^2 I & c\sigma_i p_i \\ c\sigma_i p_i & -mc^2 I \end{bmatrix} \quad (1.60)$$

Notons que le carré de H_D n'est autre que la matrice $(m^2 c^2 + p^2 c^2) * I$, résultant du fait que l'on a imposé à ψ_μ de satisfaire l'équation (1.39). On va maintenant établir le premier résultat de la théorie de Dirac, à savoir l'apparition naturelle du spin. Il s'agit de montrer que l'opérateur (1.61) fournit le degré de liberté de spin.

$$\vec{S} = \frac{\hbar}{2} \vec{\Sigma} = \frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} \vec{\sigma} & 0 \\ 0 & \vec{\sigma} \end{bmatrix} \quad (1.61)$$

La base de l'argument consiste à montrer que le vecteur (Eq. 1.62) exhibe un moment cinétique puisqu'il incorpore déjà le moment cinétique orbital.

$$\vec{J} = \vec{L} + \frac{\hbar}{2} \vec{\Sigma} = \vec{L} + \vec{S} \quad (1.62)$$

Effectivement, il est une constante de mouvement, car le Hamiltonien est celui qui figure au second membre de l'équation (1.45). Soit alors,

$$H_D = [c\vec{\alpha}\vec{p} + V(\vec{r})I + \beta mc^2] \quad (1.63)$$

Le terme de l'énergie potentielle est proportionnel à la matrice identité I ; il commute donc avec les matrices $\vec{\alpha}$, β et à symétrie sphérique avec \vec{L} . Il en résulte :

$$[\vec{J}, H_D] = [\vec{J}, c\vec{\alpha}\vec{p} + \beta mc^2] \quad (1.64)$$

$$\vec{L} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} (\vec{r} \wedge \vec{p}) \quad (1.65)$$

1.4.4. Equation de Dirac dans un champ électromagnétique

Le passage de l'équation de Dirac à une particule libre vers la particule chargée dans un champ électromagnétique ($\vec{\mathcal{E}}, \vec{\mathcal{B}}$) se fait par les substitutions suivantes :

$$\begin{cases} i\hbar\partial_t \rightarrow i\hbar\partial_t - eU \\ -i\hbar\partial_i \rightarrow -i\hbar\partial_i - eA_i \end{cases} \quad (1.66)$$

Où A_i et U sont le potentiel vecteur et le potentiel électrique du champ électromagnétique, respectivement. Le quadrivecteur énergie impulsion est remplacé par le quadrivecteur quantité de mouvement sous la forme suivante :

$$\pi_\mu = P_\mu - eA_\mu \quad (1.67)$$

Où A_μ est le quadrivecteur potentiel vecteur, l'équation (1.44) devient dans ces conditions :

$$(i\hbar\partial_t - eU)\psi(\vec{r}, t) = [c\vec{\alpha}(\vec{p} - e\vec{A}) - \beta mc^2]\psi(\vec{r}, t) \quad (1.68)$$

L'Hamiltonien de Dirac devient donc :

$$H_D = c\vec{\alpha}(\vec{p} - e\vec{A}) - \beta mc^2 + eU \quad (1.69)$$

De la même manière pour la particule libre dans la représentation spin-position, nous introduisons les spineurs à deux composantes :

$$\psi = \begin{pmatrix} \zeta \\ \chi \end{pmatrix} \text{ avec } \zeta = \begin{pmatrix} \zeta_1 \\ \zeta_2 \end{pmatrix} \text{ et } \chi = \begin{pmatrix} \chi_1 \\ \chi_2 \end{pmatrix} \quad (1.70)$$

On obtient un système d'équations couplées :

$$\begin{cases} i\hbar\partial_t\zeta = c\vec{\alpha}(\vec{p} - e\vec{A})\chi + (mc^2 + eU)\zeta \\ i\hbar\partial_t\chi = c\vec{\alpha}(\vec{p} - e\vec{A})\zeta + (eU - mc^2)\chi \end{cases} \quad (1.71)$$

Alors, la théorie relativiste de Dirac contient en soi le spin électronique [48]. En outre, elle fournit la valeur du facteur gyromagnétique $g_c = 2$. A la limite non relativiste, le Hamiltonien de particule libre en présence d'un champ magnétique sera donné par l'équation

$$H_{c \rightarrow \infty} = \frac{1}{2}(\vec{p} - e\vec{A})^2 - \frac{e\hbar}{2m}\vec{\Sigma}\vec{B} + eU \quad (1.72)$$

Et il est appelé « Hamiltonien de Pauli », le couplage magnétique est $-\frac{e}{m}\vec{S}\vec{B}$ et il fait ressortir

le moment magnétique $\vec{\mu} = \frac{e}{m}\vec{S}$, soit

$$\vec{\mu} = 2\frac{e\hbar}{2m}\vec{S} \leftrightarrow g_c = 2 \quad (1.73)$$

1.5. Résolution de l'équation de Kohn-Sham

À ce niveau, plusieurs méthodes et fonctionnelles de la densité sont employées pour la résolution de l'équation de Kohn-Sham. On peut citer à titre d'exemple : la LCAO (Linear Combination of Atomic Orbitals), LMTO (Linear Muffin-Tin Orbitals) et FP-LAPW (Full Potential-Linear Augmented Plane Waves) [50]. La recherche d'une base qui emploie des fonctions d'onde en tenant compte de la constance du potentiel cristallin, Slater a stipulé que la solution de l'équation de Schrödinger est une onde plane. Cependant, la solution est une fonction radiale pour le cas d'un potentiel sphérique. Cela donne naissance à l'approximation Muffin-Tin afin de décrire tout le potentiel du cristal. Selon cette dernière, le système se divise en deux régions : La première décrit les sphères sans recouvrement (de rayon s et de volume τ) centrées sur les sites atomiques dans lesquelles les solutions radiales de l'équation de Schrödinger sont envisagées. La seconde décrit la région interstitielle où les fonctions d'ondes, la densité de charge électronique et le potentiel sont développés en série de Fourier.

1.5.1. La méthode Linéaire des Ondes Planes Augmentées (FP-LAPW)

La méthode LAPW est l'une des méthodes les plus répandues à la perfection des calculs des structures électroniques. Elle est basée sur la théorie de la DFT pour la paramétrisation du potentiel d'échange-corrélation dans le cadre de l'approximation LDA ou LSDA et récemment la GGA qui est aussi valable. Bien que cette méthode trouve son originalité dans

l'approche Muffin-Tin, le potentiel cristallin peut avoir deux valeurs selon la région qu'on considère. Elle est construite par une procédure fréquemment appelée « Full Potential ». Dans la MTA, le potentiel cristallin peut avoir la forme :

$$V(r) = \begin{cases} \sum_{lm} V_{lm}(r) Y_{lm}(r) & r \leq s \\ \sum_k V_k(r) e^{ikr} & r > s \end{cases} \quad (1.74)$$

Où les indices lm signifient le moment orbital et le moment du spin, respectivement. Tandis que l'indice k est le vecteur d'onde, les solutions des équations de Kohn-Sham sont développées sur cette base par une combinaison linéaire des fonctions d'ondes planes [15, 50].

$$\psi_k = \sum_n C_n \phi_{k_n} \quad (1.75)$$

Les coefficients C_n sont déterminés par le principe variationnel de Rayleigh-Ritz. La convergence à la base de cet ensemble est contrôlée par le paramètre $Cut-off = R_{mt} * K_{max}$ qui varie de 5 à 11, où R_{mt} est le plus petit rayon de la sphère atomique dans la cellule unitaire et K_{max} est la magnitude de la plus grande valeur de vecteur K dans l'équation (1.75)

$$\phi_{k_n} = \begin{cases} \sum_{lm} [A_{lm,k_n} u_l(r, E_l) + B_{lm,k_n} \dot{u}(r, E_l)] Y_{lm}(r) & r \leq s \\ \frac{1}{\sqrt{\omega}} e^{ik_n r} & r > s \end{cases} \quad (1.76)$$

Où $u_l(r, E_l)$ est la solution régulière (à l'origine) de l'équation de Schrödinger pour l'énergie E_l et $\dot{u}(r, E_l)$ est sa dérivée par rapport à l'énergie. Dans l'espace interstitiel, une expansion en ondes planes est utilisée où $k_n = k + K$ avec K un vecteur de réseau réciproque. La méthode ainsi décrite fournit une base suffisamment flexible. Contrairement à la méthode APW, Cette base servira pour décrire correctement les fonctions propres avec les énergies propres d'un schéma permettant de les obtenir à travers une simple diagonalisation. Elle assure la continuité des fonctions d'ondes auprès de la surface des sphères Muffin-Tin. Elle permet aussi, avec un seul E_l qui figure dans l'équation (1.76), d'obtenir toutes les bandes de valence dans un grand intervalle d'énergie. Dans l'ordre d'augmenter la flexibilité de la base des fonctions d'ondes utilisées et de rendre possible un processus auto-cohérent des états de valence et de semi-core, nous proposons d'ajouter dans le cadre des orbitales locales (LO) une combinaison linéaire de deux fonctions radiales avec deux énergies différentes et une seule dérivée (k_n étant indépendant) [52]. Ici, la méthode FP-LAPW+LO vient de naître. Dans ce cas, l'équation (1.76) à l'intérieur des sphères MT devient :

$$\phi_{lm}^{LO} = \sum_{lm} [A_{lm} u_l(r, E_{1,l}) + B_{lm} \dot{u}(r, E_{1,l}) + C_{lm} u_l(r, E_{2,l})] Y_{lm}(r) \quad (1.77)$$

Les coefficients A_{lm} , B_{lm} et C_{lm} sont déterminés par les conditions que les fonctions ϕ^{LO} doivent être normalisées et nulles aux limites des sphères MT.

1.5.2. La méthode des Ondes Planes Augmentées (APW)

Sjöstedt, Nordström et Singh [53] ont montré que la méthode standard de LAPW avec l'addition d'une contrainte des ondes planes égalent en valeur et convergent à la limite des sphères MT n'est pas la manière la plus effective pour linéariser la méthode APW de Slater. Il peut être possible quand on utilise la base standard de APW, mais bien sûr le terme $u_l(r, E_l)$ a une énergie fixe E_l dans l'ordre de garder le problème aux valeurs propres. On peut ajouter les Orbitales Locales (LO) pour avoir suffisamment de flexibilité variationnelle dans la base des fonctions radiales. De ce fait, les fonctions ϕ dans la base d'APW peuvent s'écrire :

$$\phi_{k_n} = \sum_{lm} [A_{lm, k_n} u_l(r, E_l)] Y_{lm}(r) \quad (1.78)$$

Et dans la nouvelle extension (lo) l'équation (1.78) devient :

$$\phi_{lm}^{lo} = \sum_{lm} [A_{lm} u_l(r, E_{1,l}) + B_{lm} \dot{u}_l(r, E_{1,l})] Y_{lm}(r) \quad (1.79)$$

La nouvelle fonction est indexée par (lo) afin de la distinguer des (LO) figurant dans l'équation (1.77) et ressemble à l'ancienne base de LAPW. Mais, les A_{lm} et B_{lm} ne dépendent pas de k_n et ils sont déterminés par la condition que les (lo) sont normalisés et nulles aux limites des sphères MT. Donc nous construisons les fonctions de base enveloppées aux limites des sphères MT. Cependant, il est nécessaire d'inclure le terme en surface dans la partie de l'énergie cinétique dans l'Hamiltonien. Notez bien que la fonction d'onde totale est différentielle et homogène. Comme il a été montré par Madsen et al [54], la nouvelle méthode donne des résultats pratiquement identiques aux ceux de LAPW à condition de diminuer les R^*K_{max} . Elle conduit significativement aux sous-ensembles de base et donc le temps de calcul correspondant est radicalement réduit. Dans un calcul où les bases de LAPW et APW sont mixées, différentes valeurs de l peuvent être utilisées dans le même atome [54]. En général, ces orbitales peuvent être décrits par la méthode APW+lo. Les calculs convergent lentement pour un nombre d'ondes planes dans le cas des atomes de petites tailles. Le reste sera décrit par la méthode ordinaire de LAPW. En outre, on peut ajouter les (LO) et les manier avec les (lo) tout en différenciant leurs énergies. Les états de valence et semi-cores peuvent être décrits simultanément.

1.5.3. La méthode des Orbitales Muffin-Tin Linéarisées

La méthode LMTO (Linear Muffin-Tin Orbitals) est utilisée pour étudier la structure de bande des systèmes aux spins polarisés. Elle consiste à exprimer la fonction d'onde du cristal comme une combinaison linéaire des orbitales muffin-tin relativistes puis résoudre l'équation de Dirac. Les demandes de matériels informatiques destinés pour les calculs de cette méthode deviennent comparables aux méthodes originales d'APW et de KKR. La situation devient beaucoup plus simple si nous utilisons les orbitales Muffin-Tin indépendantes de l'énergie [55]. Pour commencer, nous considérons une sphère atomique unité de sorte que le potentiel est sous la forme de l'équation :

$$V(r) = \begin{cases} V(r) & r \leq s \\ V_{MT\text{zéro muffin-tin}} & r > s \end{cases} \quad (1.80)$$

La fonction d'onde d'un électron satisfera l'équation de Schrödinger avec l'Hamiltonien en coordonnées sphériques. La fonction d'onde radiale est sous la forme :

$$\phi_l(l, E) = \begin{cases} u_l(r, E) & r \leq s \\ \left[\frac{D_l + l + 1}{2l + 1} \left(\frac{r}{s}\right)^l + \frac{l - D_l}{2l + 1} \left(\frac{r}{s}\right)^{-l-1} \right] u_l(r, E) & r > s \end{cases} \quad (1.81)$$

D'après l'hypothèse de Wigner-Seitz en 1933 [56], les cellules sont remplacées dans l'approximation ASA (Atomic Sphere Approximation) par des sphères de volume équivalent aux cellules de Wigner-Seitz et les conditions aux limites sont remplacées par celles spécifiées par les dérivées logarithmiques radiales définies par :

$$D_l(E) = s \frac{\dot{u}_l(E, s)}{u_l(E, s)} \quad (1.82)$$

Le rayon de la sphère est défini par la condition $s = \left(\frac{3\Omega_0}{4\pi}\right)^{\frac{1}{3}}$, Ω_0 est le volume de la cellule de Wigner-Seitz. Les fonctions (1.81) ne sont pas utilisées comme des fonctions de base du moment que la solution pour $r > s$ contient une fonction d'onde divergente. Par conséquent, nous écrivons de nouvelles fonctions :

$$\bar{\phi}_l(r, D) = \begin{cases} \phi_l(r, D) - \frac{D_l + l + 1}{2l + 1} \frac{\phi_l(s, D)}{\phi_l(s, l) \phi_l(r, l)} & r \leq s \\ \frac{l - D_l}{2l + 1} \left(\frac{r}{s}\right)^{-l-1} \phi_l(s, D) & r > s \end{cases} \quad (1.83)$$

Cette expression est obtenue à partir de l'équation (1.81) en soustrayant la fonction d'onde divergente $\frac{D_l + l + 1}{2l + 1} \left(\frac{r}{s}\right)^l$. Pour $r \leq s$, l'expression $\left(\frac{r}{s}\right)^l$ est remplacée par $\frac{\phi_l(r, l)}{\phi_l(s, l)}$ et le terme d'énergie E

est remplacé par la dérivée logarithmique D . Ceci peut toujours être fait si le nombre de nœuds de la fonction d'onde est connu. Jusqu'à présent, la fonction (1.83) n'est pas la solution de l'équation de Schrödinger à l'intérieur de la sphère atomique. Par conséquent, nous pouvons l'utiliser pour écrire la fonction de base

$$\bar{\phi}_{lm}(r, D) = i^l Y_{lm}(\bar{r}) \bar{\phi}_l(r, D) \quad (1.84)$$

Pour la simplicité, nous considérons un atome par unité cellulaire dans l'approximation (ASA) et nous dérivons la fonction de base. Il est nécessaire d'inclure toutes les queues des fonctions contribuant dans la sphère centrale venant des positions situées à R , nous écrivons la fonction d'onde en somme de Bloch

$$\chi_{lm}^{\bar{k}}(r, D) = \sum_{R \neq 0} e^{i\bar{k}\bar{R}} \bar{\phi}_{lm}(r-R, D) \quad (1.85)$$

La contribution venant de vecteur d'onde \bar{k} positionné en R est :

$$\bar{\phi}_{lm}(r-R, D) = i^l Y_{lm}(\bar{r}-\bar{R}) \left| \frac{r-R}{s} \right|^{-l-1} \frac{l-D}{2l+1} \phi_l(r, D) \quad (1.86)$$

En utilisant le théorème d'additivité [57]

$$i^l Y_{lm}(\bar{r}-\bar{R}) \left| \frac{r-R}{s} \right|^{-l-1} = 4\pi \sum_{l''=l+l'}^{l''=l+l'} C_{lm'l''m''} \frac{(2l''-1)!!}{(2l-1)!!(2l'+1)!!} (-i)^{l''} \left(\frac{R}{s} \right)^{-l''-1} Y_{l''m''}^*(\bar{R}) \left(\frac{r}{s} \right)^{l'} i^{l'} Y_{l'm'}(\bar{r}) \quad (1.87)$$

Pour que cette équation soit continue et dérivable sur la surface de la sphère, nous devons effectuer une augmentation, c.-à-d. on utilise $\frac{\phi_l(r, l')}{\phi_l(s, l')}$ au lieu de $\left(\frac{r}{s} \right)^{l'}$ dans l'équation (1.87).

Finalement, nous avons la fonction de base :

$$\chi_{lm}^{\bar{k}}(r, D) = \begin{cases} \phi_{lm}(r, D) - \phi_l(s, D) \frac{l-D}{2l+1} \sum_{l'm'} \left[S_{l'm'lm}^{\bar{k}} - \frac{l+1+D}{1-D} 2(2l+1) \delta_{l'm'lm} \right] \phi_{l'm'}(r, l') \frac{1}{\phi_{l',m'}(s, l') 2(2l'+1)} & r \leq s \\ \phi_l(s, D) \frac{l-D}{2l+1} \left[i^l Y_{lm}(r) \left(\frac{r}{s} \right)^{-l-1} + \sum_{l'm'} S_{l'm'lm}^{\bar{k}} i^{l'} Y_{l'm'}(\bar{r}) \left(\frac{r}{s} \right)^{l'} \frac{1}{2(2l'+1)} \right] & r > s \end{cases} \quad (1.88)$$

Les $S_{l'm'lm}^{\bar{k}}$ sont les constantes de structure définies comme suit :

$$S_{l'm'lm}^{\bar{k}} = \sum_{R \neq 0} e^{i\bar{k}\bar{R}} S_{l'm'lm}(R) \quad (1.89)$$

$$S_{l'm'lm}(R) = -\frac{8\pi(2l+2l'-1)!!}{(2l-1)!!(2l'-1)!!} \sum_{l''=l+l'}^{l''=l+l'} C_{lm'l''m''} (-i)^{l''} \left(\frac{R_s}{s} \right)^{-l''-1} Y_{l''m''}(\bar{R}) \quad (1.90)$$

Les $C_{lm'l''m''}$ sont les coefficients de Gaunt, tel que :

$$C_{lm'l''m''} = \int Y_{lm}(\bar{r}) Y_{l'm'}^*(\bar{r}) d\Omega \quad (1.91)$$

Les orbitaux figurants dans l'équation (1.88) sont les orbitales Muffin-Tin. Les fonctions obtenues peuvent être utilisées comme des fonctions de base. L'équation de Schrödinger est remplacée par l'équation de Dirac relativistes, alors la solution cette l'équation est :

$$\phi_{k\mu}(r, E) = i^l Z_{k\mu}(\hat{r}) \phi_k(r, E) \quad (1.92)$$

Les lm sont des nombres quantiques simples tandis que $k\mu$ sont des nombres quantiques relativistes, et $\phi_k(r, E)$ est la matrice de la solution radiale, donc :

$$\phi_k(r, E) = \begin{pmatrix} g_k(r, E) \\ if_k(r, E) \end{pmatrix} \quad (1.93)$$

La fonction $Z_{k\mu}(\hat{r})$ est la matrice de couplage spin-orbite, tel que :

$$Z_{k\mu}(\hat{r}) = \begin{pmatrix} \chi_k^\mu(\hat{r}) & 0 \\ 0 & \chi_{-k}^\mu(\hat{r}) \end{pmatrix} \quad (1.94)$$

$$\chi_k^\mu(\hat{r}) = \sum_{m=\pm\frac{1}{2}} C_{l, \mu-m, \frac{1}{2}, m}^{j\mu} Y_{l, \mu-m}(\hat{r}) \chi(m) \quad (1.95)$$

Les coefficients ‘ $C_{l, \mu-m, \frac{1}{2}, m}^{j\mu}$ ’ sont de Clebsch-Gordon, $Y_{lm}(\hat{r})$ sont les harmoniques sphériques, j est la valeur propre de l'opérateur moment orbitale total $j = l \pm 1/2$.

$$\chi^\uparrow = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \chi^\downarrow = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (1.96)$$

Les équations (1.96) sont les spineurs de Pauli. Les fonctions d'ondes radiales sont normalisées dans la sphère de rayon s tel que :

$$\langle \phi_k(r, E) | \phi_k(r, E) \rangle = \int_0^s r^2 (g_k^2(r, E) + f_k^2(r, E)) dr = 1 \quad (1.97)$$

L'analogie relativiste de la dérivée logarithmique pour la fonction d'onde radiale $\phi_k(r, E)$ a la forme :

$$D_k(E) = s \frac{cf'_k(s, E)}{g_k(s, E)} - k - 1 \quad (1.98)$$

Supposant que $E = V_{MTz} = 0$ dans la région interstitielle, ici les équations radiales de Dirac pour un électron libre sont :

$$\begin{aligned} \left(\frac{d}{dr} + \frac{1-k}{r} \right) \tilde{\phi}_k(r) &= 0 \\ \left(\frac{d}{dr} + \frac{1+k}{r} \right) \tilde{\gamma}_k(r) - c\tilde{\phi}_k(r) &= 0 \end{aligned} \quad (1.99)$$

Les équations (1.99) ont les solutions suivantes [58]

$$\tilde{\phi}_k(r, D) = \begin{pmatrix} g_k(D, r) \\ if'_k(D, r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \left(\frac{r}{s} \right)^k \\ i \frac{(2k+1)}{\left(\frac{r}{s} \right)^{k-1}} \\ cs \left(\frac{r}{s} \right) \end{pmatrix}, D = k \quad (1.100)$$

$$\tilde{\phi}_k(r, D) = \begin{pmatrix} g_k(D, r) \\ if_k(D, r) \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \left(\frac{r}{s}\right)^{-k-1} \\ \left(\frac{r}{s}\right)^{-k-1} \\ 0 \end{pmatrix}, D = -k - 1 \quad (1.101)$$

Et
$$\tilde{\phi}_{k\mu}(r, D) = i^l Z_{k\mu}(\hat{r}) \tilde{\phi}_{k\mu}(r, D)$$

(1.102)

Généralement, l'expression utilisée pour les solutions singulières à l'origine de l'équation (1.100) a la forme :

$$\tilde{\phi}_{k\mu}(r, -l - 1) = i^l Z_{k\mu}(\hat{r}) \begin{pmatrix} \left(\frac{r}{s}\right)^{-l-1} \\ (-l + k) \\ cs \left(\frac{r}{s}\right)^{-l-1} \end{pmatrix} \quad (1.103)$$

Et pour les solutions régulières à l'origine de l'équation (1.101) :

$$\tilde{\phi}_{k\mu}(r, l) = i^l Z_{k\mu}(\hat{r}) \begin{pmatrix} \left(\frac{r}{s}\right)^l \\ (2 + k) \\ cs \left(\frac{r}{s}\right)^l \end{pmatrix} \quad (1.104)$$

Ainsi dans la région interstitielle, la solution de l'équation de Dirac est continue à la surface, donc la solution à l'intérieur et l'extérieur de la sphère sera :

$$\phi_{k\mu}(r, D) = i^l Z_{k\mu}(\hat{r}) \otimes \begin{cases} \begin{pmatrix} g_k(D, r) \\ if_k(D, r) \end{pmatrix} & r \leq s \\ \left(\frac{D+l+1}{2l+1}\right) \tilde{\phi}_{k\mu}(r, l) + \frac{l-D}{2l+1} \tilde{\phi}_{k\mu}(r, -l-1) g_k(s, D) & r > s \end{cases} \quad (1.105)$$

Par analogie avec l'équation (1.83), nous écrivons les nouvelles fonctions en soustrayant la fonction d'onde divergente de la solution de l'équation de Dirac à l'intérieur et l'extérieur de la sphère Muffin-Tin :

$$\phi_{k\mu}(r, D) = i^l Z_{k\mu}(\hat{r}) \otimes \begin{cases} \phi_k(r, D) - \frac{D+l+1}{2l+1} \frac{g_k(s, D)}{g_k(s, l)} \tilde{\phi}_l(r, l) & r \leq s \\ \frac{l-D}{2l+1} \tilde{\phi}_{k\mu}(r, -l-1) g_k(s, D) & r > s \end{cases} \quad (1.106)$$

Nous utilisons ces fonctions en formant les sommations de Bloch :

$$\chi_{k\mu}^{\vec{k}}(r, D) = \sum_R e^{i\vec{k}\vec{R}} \bar{\phi}_{k\mu}(r - R, D) \quad (1.107)$$

De la même manière nous augmentons la queue de la fonction, en utilisant le théorème généralisé de l'additivité [57]

$$i^l Z_{k\mu}(\hat{r}) \tilde{\phi}_k(|r - R|, -l - 1) = \sum_{k'\mu'} i^{l'} Z_{k'\mu'}(\hat{r}) \tilde{\phi}_{k'}(r, l') \frac{S_{k'\mu'k\mu}(R)}{-2(2l'+1)} \quad (1.108)$$

$$S_{k',\mu',k\mu}(R) = \sum_{lm'l'm''m''}^{l''=l+l'} -\frac{2\pi(2l''-1)!!}{(2l-1)!!(2l'-1)!!} C_{l',\mu'-m,\frac{1}{2},m}^{j',\mu'} C_{l''m''l'm''m''} (-i)^{l''} \left(\frac{R}{s}\right)^{-l''-1} Y_{l''m''}^*(R) C_{l,\mu-m,\frac{1}{2},m} \quad (1.109)$$

Les $C_{l''m''l'm''m''}$ sont aussi les coefficients de Gaunt. Maintenant, nous effectuons l'extension par analogie avec le cas non-relativiste. Ceci est fait pour obtenir l'expression exacte des orbitales Muffin-Tin relativistes à l'intérieur de la sphère centrale.

$$\chi_{k\mu}^{\bar{k}}(r,D) = i^l Z_{k\mu}(\hat{r}) \tilde{\phi}_k(r,D) - \frac{D-l}{2l+1} g_k(s,D) \sum_{k',\mu'} i^{l'} Z_{k',\mu'}(\hat{r}) \phi_k(r,l') \frac{1}{g_k(s,l')} \left(-\frac{1}{2(2l'+1)}\right) \left(S_{k',\mu',k\mu} - \delta_{k',\mu',k\mu} \frac{D+l+1}{D-1} 2(2l+1)\right) \quad (1.110)$$

Ici,

$$S_{k',\mu',k\mu} = \sum_{R \leq 0} e^{i\bar{k}R} S_{k',\mu',k\mu}(R) = \sum_{m=\pm\frac{1}{2}} C_{l',\mu'-m,\frac{1}{2},m}^{j',\mu'} S_{l',\mu'-m,l,\mu-m}^{\bar{k}} C_{l,\mu-m,\frac{1}{2},m} \quad (1.111)$$

Les $S_{l',m',lm}^k$ sont les constantes de structure. Maintenant si on veut en décrire avec plus de détails la méthode LMTO (Linear Muffin-Tin Orbitals), on utilise les orbitales (1.88) avec leurs analogues relativistes (1.110) comme fonction d'essai dans la méthode variationnelle de Ritz. Cela est entrepris pour trouver la combinaison linéaire des orbitales Muffin-Tin. Elle conduit à :

$$\det \left\langle \chi_{l',m'}^{\bar{k}}(r-R_l) \middle| H - E \middle| \chi_{l',m'}^{\bar{k}}(r-R_l) \right\rangle = 0 \quad (1.112)$$

Pour la méthode LMTO-ASA, les fonctions de base (les orbitales Muffin-Tin sont indépendantes de l'énergie) sont choisies correctement. Alors, les intégrales multi centrées sont facilement calculables à partir des matrices correspondantes.

I. La fonction d'onde de l'électron de valence dans le cristal

Supposons que l'énergie $E_{j\bar{k}}$ est la valeur propre qui correspond au vecteur propre $C_{lm}^{j\bar{k}}$ obtenue par la résolution de l'équation séculaire. Ceci est fait par l'usage des matrices Hamiltonien et de recouvrement du problème aux valeurs propres de la LMTO. La fonction d'onde de l'électron de valence peut être écrite comme :

$$\psi_{j\bar{k}}(r) = \sum_{lm} C_{lm}^{j\bar{k}} \chi_{lm}^{\bar{k}}(r, D_{lv}) \quad (1.113)$$

En outre [28],

$$\psi_{j\bar{k}}(r) = \sum_{lm} \left[\pi_{lm}^{j\bar{k}} \phi_{lmv}(r) + \Omega_{lm}^{j\bar{k}} \dot{\phi}_{lmv}(r) \right] \quad (1.114)$$

La représentation de la fonction d'onde radiale de base est déterminée par le développement en série de Taylor au voisinage d'un point arbitraire E_0 [59] et limitons nous au terme linéaire. D'où,

$$\pi_{lm}^{j\bar{k}} = C_{l'm'}^{j\bar{k}} + \omega_l^{-1}(l) \sum_{l'm'} T_{lm'l'm'}^{\bar{k}} C_{l'm'}^{j\bar{k}}, \text{ et } \Omega_{lm}^{j\bar{k}} = \sum_{l'm'} T_{lm'l'm'}^{\bar{k}} C_{l'm'}^{j\bar{k}} \quad (1.115)$$

Les expressions de la fonction d'onde sont exactes [55] dans le terme $(E - E_v)$, quand le vecteur propre $C_{lm}^{j\bar{k}}$ et l'énergie propre correspondante $E_{j\bar{k}}$ sont déterminés dans $(E - E_v)^3$. Pour pouvoir écrire $\psi_k(E_j, r)$ également à l'intérieur de $(E - E_v)^3$, on peut substituer $\phi_{lm}(r, -l-1)$ dans l'équation (1.113) par les orbitales Muffin-Tin dépendantes de l'énergie exacte, (voir 1.88).

II. La matrice densité

Si les calculs de SP-LMTO (Spin Polarized LMTO) sont performants, la solution radiale de l'équation de Schrödinger à l'intérieur de la sphère prend un indice supplémentaire de spin, tel que :

$$\phi_{lm\sigma}(r) = u_{l\sigma}(r) i^l Y_{lm}(\hat{r}) \chi_\sigma \quad (1.116)$$

Où χ_σ est la fonction propre de l'opérateur de spin correspondant au projecteur de spin σ . Substituant le développement de la fonction d'onde de la LMTO (Eq. 1.114) dans la définition de la densité de charge électronique, on aura :

$$\rho(r) = \sum_{jk} f(E_{jk}) \left| \psi^{j\bar{k}}(r) \right\rangle \left\langle \psi^{j\bar{k}}(r) \right| = \sum_{jk} f(E_{jk}) \left| \psi^{*j\bar{k}}(r) \right|^2 \quad (1.117)$$

Où $f(E)$ est la fonction de Fermi, on peut écrire les éléments de la matrice densité de spin comme :

$$\rho_{\sigma\sigma'}(r) = \sum_{jk} f(E_{jk}) \sum_{lm'l'm'} i^{l+l'} Y_{lm}(\hat{r}) Y_{l'm'}^*(\hat{r}) \left[\pi_{lm\sigma}^{j\bar{k}} u_{vl\sigma}(r) + \Omega_{lm\sigma}^{j\bar{k}} \dot{u}_{vl\sigma}(r) \right] \left[\pi_{l'm'\sigma'}^{*j\bar{k}} u_{vl'\sigma'}(r) + \Omega_{l'm'\sigma'}^{*j\bar{k}} \dot{u}_{vl'\sigma'}(r) \right] \quad (1.118)$$

Les éléments de la matrice densité de spin sont pris à partir de la projection de la fonction d'onde sur le sous espace Y_{lm} et l'équation (1.118) devient :

$$\rho_{lm\sigma, l'm'\sigma'}(r) = \sum_{jk} f(E_{jk}) \left[\pi_{lm\sigma}^{j\bar{k}} u_{vl\sigma}(r) + \Omega_{lm\sigma}^{j\bar{k}} \dot{u}_{vl\sigma}(r) \right] \left[\pi_{l'm'\sigma'}^{*j\bar{k}} u_{vl'\sigma'}(r) + \Omega_{l'm'\sigma'}^{*j\bar{k}} \dot{u}_{vl'\sigma'}(r) \right] \quad (1.119)$$

Habituellement, la matrice est diagonale en indice de spin. Cependant, les éléments non diagonaux apparaissent si on tient compte de couplage spin-orbite dans l'Hamiltonien, où des structures magnétiques non-colinéaires sont considérées. Par l'utilisation de l'Eq (1.114), l'équation (1.119) peut être réécrite sous la forme :

$$\eta_{lm\sigma, l'm'\sigma'} = \sum_{jk} f(E_{jk}) \left(\left\langle u_{vl} Y_{lm} \chi_\sigma \left| \psi^{j\bar{k}} \right\rangle \left\langle \psi^{j\bar{k}} \left| u_{vl} Y_{l'm'} \chi_{\sigma'} \right\rangle + \left\langle \phi_l^2 \right\rangle^{-1} \left\langle \dot{u}_{vl} Y_{lm} \chi_\sigma \left| \psi^{j\bar{k}} \right\rangle \left\langle \psi^{j\bar{k}} \left| \dot{u}_{vl} Y_{l'm'} \chi_{\sigma'} \right\rangle \right) \quad (1.120)$$

La variation de $\eta_{lm\sigma, l'm'\sigma'}$ par rapport à $\psi^{*j\bar{k}}$ est :

$$\frac{\delta \eta_{lm\sigma, l'm'\sigma'}}{\delta \psi^{*j\bar{k}}} = \left[\left\langle u_{vl} Y_{lm} \chi_\sigma \left| u_{vl} Y_{l'm'} \chi_{\sigma'} \right\rangle + \left\langle \phi_l^2 \right\rangle^{-1} \left\langle \dot{u}_{vl} Y_{lm} \chi_\sigma \left| \dot{u}_{vl} Y_{l'm'} \chi_{\sigma'} \right\rangle \right] \psi^{j\bar{k}} \quad (1.121)$$

1.5.4 La méthode Spin Polarized Relativistic-LMTO

Cette approche est la plus utilisée pour traiter simultanément l'effet de champ magnétique et l'effet relativiste sur les électrons du solide. Elle est basée sur un schéma proposé par MacDonal et Vosko [60]. Dans cette approximation, l'équation de Dirac pour un potentiel dépendant de spin a la forme de l'Eq (1.72) :

$$H_{c \rightarrow \infty} = \frac{1}{2}(\vec{p} - e\vec{A}) - \frac{e\hbar}{2m} \vec{\Sigma} \cdot \vec{B}(r) + eU$$

Le champ magnétique dans cette équation est qualifié d'effectif et peut être écrit sous la forme :

$$B(r) = \mu_B [B_{xc}(r) + B_{ext}(r)] \quad (1.122)$$

Ici, B_{ext} est le champ magnétique externe et l'indice xc souscrit rapporte le potentiel d'échange corrélation

$$V_{xc}(r) = \frac{\delta}{\delta \rho} E_{xc}[\rho, m]; B_{ext} = \frac{\delta}{\delta m} E_{xc}[\rho, m] \quad (1.123)$$

Où $\rho(r)$ et $m(r)$ sont la densité électronique et la densité magnétique, respectivement.

La solution au problème de structure de bande aux spins polarisés peut être obtenue en arrangeant les R-MTO par l'utilisation des solutions appropriées à l'équation de Dirac. Les méthodes purement relativistes aux spins polarisés LMTO (SPR-RLMTO) ont été développées par H. Ebert [61], Solovyev et al [62] et Krasovskii [63]. Feder et al [64], Strange et al [65], et également Cortona et al [66] ont montré que le potentiel dépendant de spin dans l'équation de Dirac résulte dans un ensemble de nombre infini d'équations couplées pour les fonctions radiales. Habituellement, l'approximation consiste à négliger le couplage spin-orbite de l'ordre de $\left(\frac{1}{c^2}\right)\left(\frac{1}{r}\right)\left[\frac{dB(r)}{dr}\right]$ entre les états, dont $\Delta l = \pm 2$ et $\Delta j = \pm \frac{1}{2}$ de sorte que l'ensemble infini se décompose en un ensemble de quatre (pour $|\mu| \leq l + \frac{1}{2}$) ou de deux (pour $|\mu| = l + \frac{1}{2}$) équations couplées pour chaque l_μ . Par conséquent, la solution de l'équation aux valeurs propres de Dirac à l'intérieur de la sphère atomique est choisie comme :

$$\psi(E, r) = \sum_{l_\mu} \sum_{\eta=1,2} c_{l_\mu}^\eta \phi_{l_\mu}^{\eta}(E, r) \quad (1.124)$$

Où la solution partielle prend la forme :

$$\phi_{l_\mu}^{\eta}(E, r) = i^l \begin{pmatrix} g_{l_\mu}^{\eta}(E, r) & \chi_{l_\mu}^s(\vec{r}) \\ i f_{l_\mu}^{\eta}(E, r) & \chi_{l+2s, \mu}^{-s}(\vec{r}) \end{pmatrix} \quad (1.125)$$

L'expression de la fonction d'onde avec une dérivée logarithmique arbitraire D a la forme [63]

$$\phi_{l\mu}^s(D, r) = \sum_{\eta} \left[a_{l\mu}^{\eta}(D) \phi_{l\mu}^{s\eta}(E_{\nu}, r) + b_{l\mu}^{\eta}(D) \dot{\phi}_{l\mu}^{s\eta}(E_{\nu}, r) \right] \quad (1.126)$$

Les fonctions $\phi_{l\mu}^s(D, r)$ sont maintenant trouvées en faisant sortir des combinaisons linéaires des solutions $\phi_{l\mu}^{s\eta}(E_{\nu}, r)$ et leurs premières dérivées par rapport à l'énergie $\dot{\phi}_{l\mu}^{s\eta}(E_{\nu}, r)$ avec la solution de Neumann $\rho_{l\mu}(r)$ pour $D = -l-1$ et la solution de Bessel $j_{l\mu}(r)$ pour $D = +l$, respectivement.

1.6. Convergence et stabilité

Dans une équation discrète, il faut s'assurer que la solution approchée converge vers la solution exacte lorsque les paramètres de discrétisation (le pas du temps Δt et le pas d'espace Δr) tendent vers zéro indépendamment. Les équations dans le cadre de cette thèse dépendent du temps. La discrétisation s'applique pour calculer les solutions de façon itérative. Les calculs s'effectuent avec une précision finie, et donc ils sont sujet à des erreurs d'approximations. Lors d'un calcul itératif, ces erreurs peuvent être amplifiées par le schéma numérique. Mais, ce schéma doit être stable au sens de Von-Neumann.

Soit le potentiel d'entrée $V_{n+1}(r)$ à la $(n+1)^{ième}$ itération à partir de la densité de sortie $\rho_n^{out}(r)$ de la $(n)^{ième}$ itération. Théoriquement, la convergence est obtenue lorsque le potentiel $V_{n+1}(r)$ conduit à une densité $\rho_{n+1}^{out}(r) = \rho_{n+1}^{in}(r)$. Où,

$$\rho_{n+1}^{in}(r) = \alpha_n \rho_n^{in}(r) + (1 - \alpha_n) \rho_n^{out}(r) \quad (1.127)$$

α_n est le facteur de mixage. Il varie entre zéro et un selon le problème traité.

Chapitre II :

Effet Kerr magnéto-optique dans les métaux de transition

Les effets magnéto-optiques s'imposent désormais dans un grand nombre de domaines, à savoir : les télécommunications, les capteurs et le stockage des données informatiques. L'effet Kerr est découvert, il y a plus d'un siècle. Mais, il y a que peu de temps qu'il est devenu un sujet de large discussion dans le domaine de caractérisation des matériaux magnétiques. De nouveaux enjeux se présentent maintenant, comme pour étudier les comportements du courant polarisé en spin. L'intérêt marqué a suscité une compréhension approfondie de l'interaction rayonnement-matière.

2.1. Introduction

L'effet Kerr magnéto-optique a été découvert par John Kerr en 1875 [46], 30 ans après la découverte de l'effet Faraday [45]. Il avait observé que l'onde polarisée linéairement se transforme en une onde polarisée elliptiquement lors de la réflexion sur un matériau magnétique et que le plan de polarisation tourne d'un angle θ_k qu'on appelle la rotation Kerr [67]. En effet, une polarisation rectiligne peut toujours être décomposée en deux polarisations circulaires tournant en sens contraire l'une de l'autre. Les mécanismes microscopiques à l'origine de l'interaction entre la lumière et les moments magnétiques de la matière sont bien complexes, une interprétation quantique plus rigoureuse s'appuie sur la modification des niveaux d'énergie avec le champ magnétique (effet Zeeman). L'effet Kerr ne peut être expliqué que lorsqu'on tient compte du couplage spin-orbite et des effets relativistes. Seuls les matériaux ferromagnétiques et ferrimagnétiques ont une réponse importante à l'effet Kerr, car ils possèdent une aimantation spontanée non nulle. En spectroscopie magnéto-optique de la lumière polarisée linéairement, on distingue deux modes propres s et p dans lesquelles le vecteur champ électrique est orienté, respectivement perpendiculairement ou parallèlement au plan d'incidence. Par conséquent, les quantités magnéto-optiques dépendent de l'état de polarisation s ou p de la lumière incidente [68-69]. Selon l'orientation de l'aimantation par rapport à la surface de réflexion et de vecteur d'onde de la lumière, on distingue trois configurations possibles pour l'effet Kerr magnéto-optique, à savoir l'effet Kerr polaire, longitudinal et transversal.

La variété des propriétés magnétiques des films minces par rapport à leur état « massif » provient de son caractère quasi-bidimensionnel conjugué aux effets de surface et d'interface. Ces derniers correspondent à une rupture de symétrie dans le réseau cristallin du matériau. Ces états quantiques du cristal infini ne sont plus les états propres du cristal semi-infini et des modifications importantes de la structure électronique sont à prévoir. Cela peut être considéré comme conséquence des effets du confinement spatial des fonctions d'ondes électroniques. Par ailleurs, la nature de l'interface influence l'hybridation des orbitales électroniques du métal magnétique avec celles du matériau non magnétique en contact. Ces effets sont à l'origine de la modification éventuelle des interactions entre spins dans le matériau. D'autres phénomènes peuvent aussi modifier considérablement les propriétés magnétiques des films minces, par exemple : la réduction de symétrie due à l'ordre magnétique [70-71], le désaccord de maille entre les métaux en contact (mismatch) et par

ailleurs, la rugosité des interfaces et parfois la formation d'un alliage peuvent aussi influencer les propriétés d'anisotropie magnétique.

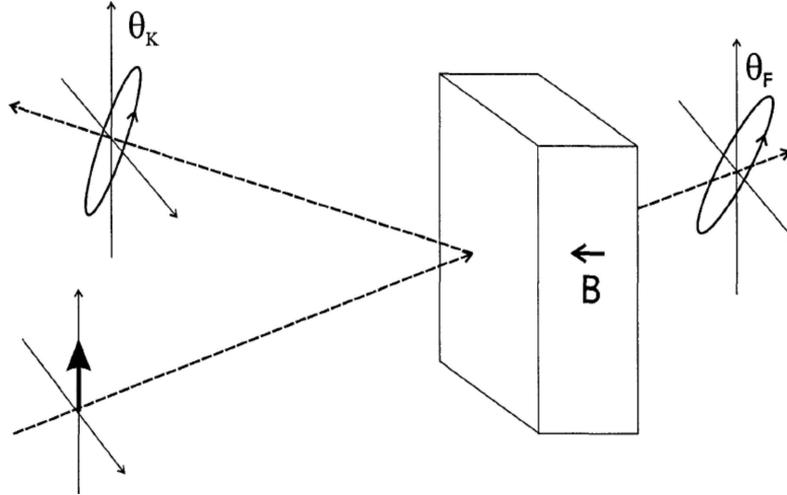


Figure. 2.1 : Illustration de deux effets magnéto-optiques quand une lumière incidente est polarisée linéairement et elle sera polarisée elliptiquement par réflexion de la surface d'un film magnétique (effet Kerr), ou par transmission (effet Faraday) [72].

2.2. La théorie classique du tenseur de la conductivité

Pour comprendre les phénomènes de l'optique et de la magnéto-optique, des ondes électromagnétiques classiques sous la vision de Maxwell sont adoptées. L'interaction de deux ondes électromagnétiques circulairement polarisées avec un matériau magnétique explique bien les effets magnéto-optiques, mais elle n'explique pas pourquoi les interactions sont différentes dans différents matériaux. Pour comprendre l'origine des différentes interactions, un appel à la théorie quantique est primordial.

Dans le cas d'un métal ayant une densité $\rho(r)$ d'électrons libres, on suppose dans l'approche classique que l'électron est soumis à la force électrique $-e\vec{E}$ due au champ de l'onde, à la force magnétique due à un champ statique externe \vec{H} et à une force de frottement proportionnelle à sa vitesse :

$$\vec{F}_f = \lambda\vec{v} = -\frac{m}{\tau}\vec{v} \quad (2.1)$$

En négligeant la force magnétique due au champ magnétique de l'onde, l'équation du mouvement s'écrit :

$$m \frac{d^2\vec{r}}{dt^2} = -\frac{m}{\tau} \frac{d\vec{r}}{dt} - e\vec{E} - e \frac{d\vec{r}}{dt} \wedge \vec{H} \quad (2.2)$$

La densité de courant est donnée par :

$$\vec{J} = -\rho(r)e \frac{d\vec{r}}{dt} \quad (2.3)$$

Et donc, il est solution de (l'Eq. 2.2):

$$m \frac{d\vec{J}}{dt} = -\frac{m}{\tau} \vec{J} - \rho(r)e^2 \vec{E} - e\vec{J} \wedge \vec{H} \quad (2.4)$$

On considère que l'onde électromagnétique incidente est plane et harmonique $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)}$. Le terme de phase spatiale est négligeable, car la longueur d'onde est très grande devant les dimensions atomiques. En choisissant que \vec{H} soit dirigé suivant oz et $\vec{J} = \vec{J}_0 e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)}$, on obtient en régime permanent les équations suivantes :

$$\begin{cases} mj_{0x}(i\omega - \frac{1}{\tau}) - eHj_{0y} & = -\rho(r)e^2 E_{0x} \\ eHj_{0x} + mj_{0y}(i\omega - \frac{1}{\tau}) & = -\rho(r)e^2 E_{0y} \\ mj_{0z}(i\omega - \frac{1}{\tau}) & = -\rho(r)e^2 E_{0z} \end{cases} \quad (2.5)$$

Dans ces équations, nous avons considéré que le métal est un conducteur parfait ($\epsilon_r = 1$), caractérisé par une perméabilité magnétique égale à celle du vide. La résolution des équations précédentes conduit à :

$$\begin{cases} j_{0x} & = \frac{\sigma_0}{(1-i\omega\tau)^2 + \omega_c^2\tau^2} [(1-i\omega\tau)E_{0x} - \omega_c\tau E_{0y}] \\ j_{0y} & = \frac{\sigma_0}{(1-i\omega\tau)^2 + \omega_c^2\tau^2} [\omega_c\tau E_{0x} + (1-i\omega\tau)E_{0y}] \\ j_{0z} & = \frac{\sigma_0}{(1-i\omega\tau)} E_{0z} \end{cases} \quad (2.6)$$

L'équation (2.6) donne directement le tenseur de conductivité dans le métal. On veut faire apparaître dans cette équation la conductivité statique $\sigma_0 = \frac{\rho(r)e^2\tau}{m}$ et la fréquence cyclotron $\omega_c = \frac{eH}{m}$. Le tenseur de conductivité effectif est défini comme :

$$\zeta_{eff} = \zeta + \frac{1}{\omega} \sigma \quad (2.7)$$

En appliquant l'équation (2.7), on trouve le tenseur de conductivité comme suit :

$$\zeta_{eff} = \begin{pmatrix} \epsilon_0 + i \frac{\rho(r)e^2\tau}{\omega m} \frac{(1-i\omega\tau)}{(1-i\omega\tau)^2 + \omega_c^2\tau^2} & -i \frac{\rho(r)e^2\tau}{\omega m} \frac{\frac{eB\tau}{m}}{(1-i\omega\tau)^2 + \omega_c^2\tau^2} & 0 \\ \frac{\rho(r)e^2\tau}{\omega m} \frac{\frac{eB\tau}{m}}{(1-i\omega\tau)^2 + \omega_c^2\tau^2} & \epsilon_0 + i \frac{\rho(r)e^2\tau}{\omega m} \frac{(1-i\omega\tau)}{(1-i\omega\tau)^2 + \omega_c^2\tau^2} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_0 + i \frac{\rho(r)e^2\tau}{\omega m} \frac{1}{(1-i\omega\tau)} \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

Si on suppose que $\omega\tau \gg 1$; ce qui est en général vrai pour les fréquences optiques, (3.8) devient

$$\zeta_{eff} = \begin{pmatrix} \varepsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - \omega_c^2} \right) & i\varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\omega} \frac{eH}{m} \frac{1}{\omega^2 - \omega_c^2} & 0 \\ -i\varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\omega} \frac{eH}{m} \frac{1}{\omega^2 - \omega_c^2} & \varepsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - \omega_c^2} \right) & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \right) \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

Où l'on a noté la fréquence de plasma $\omega_p = \sqrt{\frac{\rho(r)e^2}{m\varepsilon_0}}$, ceci définit donc une constante de conductivité et un indice complexe pour un métal. En outre, si on remarque que la fréquence cyclotron est également petite devant les fréquences optiques, on voit que les parties diagonales du tenseur de conductivité sont de signes opposés. La forme de l'équation (2.9) est utile si le champ \vec{H} est un champ appliqué. Mais, il aura la même forme dans un métal magnétique en remplaçant \vec{H} par $\mu_0 \vec{M}$. On utilisera dans la suite les tenseurs simplifiés (en prenant l'axe z suivant la direction de l'aimantation \vec{M}) suivants :

$$\zeta^{[001]} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & 0 \\ -\varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & ikM & 0 \\ -ikM & \varepsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

Et

$$\mu = \mu_0 \begin{pmatrix} \mu_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \mu_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{zz} \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

Remarquons qu'on a écrit dans l'équation (2.11) une forme diagonale du tenseur de perméabilité magnétique. Cette forme sera plus compliquée, si on tient compte des éléments non-diagonaux tout comme le tenseur de conductivité. La forme choisie est plus rigoureuse, mais elle alourdit les calculs. Dans l'équation (3.10), M est la valeur absolue de l'aimantation qui est proportionnelle au champ appliqué.

Bien évidemment, l'aimantation mène à une anisotropie magnétique pour le tenseur de conductivité $\zeta(\omega)$. En outre, la symétrie du système dépend de l'orientation de l'aimantation, c.-à-d. l'anisotropie induite par magnétisation est anisotrope. Et si l'on pouvait éliminer le couplage spin-orbite pour un système aux spins polarisés, ses propriétés ne dépendraient plus de l'orientation de l'aimantation. Pour cette raison, sa symétrie serait celle de l'état paramagnétique correspondant. Ainsi, l'aimantation et le couplage spin-orbite réduisent la symétrie comparée au cas paramagnétique. Cependant, les conséquences de la symétrie réduite sur le magnétisme des films minces sont toujours observables. L'existence de tous les phénomènes magnéto-optiques peuvent être expliqués par la forme du tenseur de conductivité ζ .

Pour un système cubique, la situation est assimilée au cas de l'équation (3.10) si $\varepsilon_{xy} = -\varepsilon_{yx}$. On suppose que \vec{M} est selon la direction [001], la différence dans les éléments diagonaux de ζ provoquent l'anisotropie spontanée de magnétorésistance (SMA) dans la limite où ω tend vers 0. En d'autre part, la présence des éléments non-diagonaux cause la résistivité anormale de Hall (AHR). Pour les fréquences finies, les éléments non-diagonaux de ζ sont responsables de l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) dans le domaine du visible aussi bien dans le domaine des rayons X [73-74].

2.3. Le champ électromagnétique dans le solide

Un petit rappel des équations de Maxwell dans le vide peut mieux éclaircir l'approche classique et donc :

$$\text{div}\vec{E} = \frac{\rho}{\varepsilon_0} \quad (2.12)$$

$$\text{div}\vec{B} = 0 \quad (2.13)$$

$$r\vec{\partial}t\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t} \quad (2.14)$$

$$r\vec{\partial}t\vec{B} = \mu_0\vec{j} + \varepsilon_0\mu_0\frac{\partial\vec{E}}{\partial t} \quad (2.15)$$

Où \vec{E} est le vecteur champ électrique, ρ et la densité de charge, ε_0 est la permittivité du vide, \vec{B} est le vecteur d'induction magnétique, μ_0 est la perméabilité magnétique et \vec{j} est le vecteur de densité de courant. Les équations de (2.12) à (2.15) portent le nom d'équation de Maxwell proposées pour la première fois par J-C. Maxwell dans une série de publications s'étalant de 1856 à 1864 [75], elles doivent être considérées comme le fondement de l'électromagnétisme et elles sont vérifiées par leurs conséquences. Parmi ces conséquences, elle figure la propagation de la lumière dans le vide à une vitesse $c = (\varepsilon_0\mu_0)^{-\frac{1}{2}}$.

La vérification de cette prédiction est une preuve quasi directe et elle peut être rendue très précise de la validité de ces équations. L'apport le plus général de Maxwell est sans doute le terme $\varepsilon_0\frac{\partial\vec{E}}{\partial t}$ qui a la même dimension que le vecteur \vec{j} et il porte le nom de courant de déplacement. Il joue un rôle indispensable pour assurer la conservation de la charge et pour aboutir aux phénomènes de propagation [75-78]. Les équations de Maxwell sont complétées par la loi de force de Lorentz donnant l'action de champ électromagnétique, alors [75]

$$\vec{f}_L = q(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B}) \quad (2.16)$$

Avec q est la charge de la particule, \vec{v} sa vitesse dans le référentiel considéré. Dans le domaine macroscopique, les équations de Maxwell n'ont jamais été mises en défaut. Dans le domaine atomique, il faut les interpréter dans le formalisme de l'électrodynamique quantique pour tenir compte de la quantification de champ électromagnétique [49,79-81]. Les équations de Maxwell dans le milieu prennent une nouvelle forme :

$$\text{div}\vec{D} = \rho \quad (2.17)$$

$$\text{div}\vec{H} = 0 \quad (2.18)$$

$$r\vec{\partial}t\vec{D} = -\varepsilon\mu \frac{\partial\vec{H}}{\partial t} = -\frac{\varepsilon_r\mu_r}{c^2} \frac{\partial\vec{H}}{\partial t} \quad (2.19)$$

$$r\vec{\partial}t\vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial\vec{D}}{\partial t} \quad (2.20)$$

L'étude des milieux matériels conduit à introduire deux nouveaux vecteurs \vec{D} et \vec{H} . Pour les décrire, on utilise la définition du tenseur de perméabilité et la loi d'Ohm, alors :

$$\vec{D} = \varepsilon\vec{E} = \varepsilon_0\varepsilon_r\vec{E} \quad (2.21)$$

$$\vec{B} = \mu\vec{H} = \mu_0\mu_r\vec{H} = \vec{H} + 4\pi\vec{M} \quad (2.22)$$

Avec ε_r et μ_r sont la permittivité relative et la perméabilité relative du matériau considéré, respectivement.

$$\vec{J} = \sigma\vec{E} \quad (2.23)$$

Les vecteurs \vec{D} et \vec{H} sont liés à \vec{E} et \vec{B} par des relations constructives qui dépendent du milieu étudié et que l'on peut atteindre soit expérimentalement, soit à l'aide d'un modèle plus ou moins développé du milieu en question [75-77, 81-82]. Les équations (2.21 à 2.23) appelées équations du matériau. Elles complètent les équations de Maxwell et elles introduisent les propriétés spécifiques du matériau considéré à travers la conductivité électrique σ , la permittivité ε et la perméabilité magnétique μ .

Maintenant, la propagation de la lumière dans le matériau peut être déterminée en fonction des ondes planes monochromatiques, soit :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} \text{ et } \vec{H} = \vec{H}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} \quad (2.24)$$

Qui ont l'avantage d'être facilement dérivables et dans ce cas, on a :

$$\vec{\nabla} = i\vec{k} \text{ et } \frac{\partial}{\partial t} = -i\omega$$

Pour cela, les deux dernières équations de Maxwell dans un milieu peuvent s'écrire de cette façon :

$$\vec{k} \wedge \vec{E} = \omega\mu\vec{H} \quad (2.25)$$

$$i\vec{k} \wedge \vec{H} = \sigma \vec{E} - i\omega \zeta \vec{E} = -\omega \zeta_{eff} \vec{E} \quad (2.26)$$

Avec

$$\zeta_{eff} = \zeta - i \frac{\sigma}{\omega} \quad (2.27)$$

ζ_{eff} est le tenseur de conductivité figurant dans l'équation (2.9). A présent, l'équation de propagation de la lumière dans le matériau peut être écrite dans ces conditions:

$$r\vec{\partial}t(r\vec{\partial}t\vec{A}) = g\vec{r}ad(div\vec{A}) - \Delta\vec{A} \quad (2.28)$$

\vec{A} est un potentiel vecteur. On déduit des équations de Maxwell les équations de propagation de champ électrique \vec{D} et de champ magnétique \vec{H} , tel que :

$$r\vec{\partial}t(r\vec{\partial}t\vec{D}) = -\frac{\epsilon_r \mu_r}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} (r\vec{\partial}t\vec{H}) \quad (2.29)$$

Et donc,

$$\Delta\vec{D} - \frac{\epsilon_r \mu_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} = \frac{\epsilon_r \mu_r}{c^2} \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} \quad (2.30)$$

De même pour le champ magnétique \vec{H}

$$\Delta\vec{H} - \frac{\epsilon_r \mu_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{H}}{\partial t^2} = -r\vec{\partial}t\vec{j} \quad (2.31)$$

Les expressions (2.30) et (2.31) sont les équations de mouvement de champ électrique \vec{D} et de champ magnétique \vec{H} , respectivement.

Les propriétés optiques du solide (indice de réfraction, coefficient d'absorption, coefficient de réflexion) peuvent être obtenues à partir du tenseur diélectrique. L'équation (2.21) peut être réécrite sous forme tensorielle comme suit :

$$\begin{bmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{bmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} & \epsilon_{zy} & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \quad (2.32)$$

Les éléments du tenseur diélectrique sont symétriques $\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji}$. Dans un cristal optiquement isotrope avec une symétrie cubique, les éléments diagonaux du tenseur diélectrique sont identiques $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{zz}$ et les éléments non-diagonaux $\epsilon_{i \neq j}$ sont égaux à zéro. Des cristaux uniaxiaux, au sens de l'optique (aux symétries hexagonal, tétragonal et trigonal), ont des composantes diagonales zz différentes par rapport aux composantes xx et yy , tel que: $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} \neq \epsilon_{zz}$. Contrairement aux cristaux bi-axiaux (orthorhombique, monoclinique et triclinique), ils ont des composantes diagonales différentes $\epsilon_{xx} \neq \epsilon_{yy} \neq \epsilon_{zz}$ [81, 83].

Dans la géométrie polaire de l'effet Kerr magnéto-optique, le champ magnétique est appliqué parallèlement au plan d'incidence de la lumière et la rotation Kerr est plus

importante que dans d'autre géométrie. Le tenseur diélectrique dans une symétrie cubique a la forme de l'équation (2.10) [84]. Dans ce cas, les éléments diagonaux du tenseur diélectrique sont des fonctions paires du champ magnétique appliqué et les éléments non-diagonaux sont des fonctions impaires. Les éléments ε_{ij} sont des nombre complexes, tel que :

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{1ij} + i\varepsilon_{2ij}, \text{ avec } (i, j = x, y, z) \quad (2.33)$$

La composante $\varepsilon_{xx}(0)$ ne dépende pas du champ magnétique appliqué. La composante $\varepsilon_{zz}(H^2) = \varepsilon_{xx}(0) + \Delta(H^2)$ a un terme supplémentaire au second ordre en champ magnétique externe, et il est légèrement différent des composantes en xx dans des conditions expérimentales normales de la magnéto-optique [84-86]. Le terme non-diagonal $\varepsilon_{xy}(H)$ est en premier ordre en champ magnétique.

Dans les calculs des effets magnéto-optiques, le tenseur de conductivité complexe $\sigma_{ij} = \sigma_{1ij} + i\sigma_{2ij}$ est très utilisé. Sa relation avec le tenseur diélectrique est obtenue à partir des équations de Maxwell et la loi d'Ohm (Eq. 2.23).

$$\varepsilon_{ij} = \delta_{ij} + \frac{4\pi i}{\omega} \sigma_{ij}, \text{ ou } \delta_{ij} = \begin{cases} 1 \text{ si } (i = j) \\ 0 \text{ si } (i \neq j) \end{cases} \quad (2.34)$$

Pour une symétrie cubique si le champ H est selon l'axe z , le tenseur de conductivité a la forme suivante :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & 0 \\ -\sigma_{xy} & \sigma_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \quad (2.35)$$

2.4. Les vecteurs et les matrices de Jones pour décrire la lumière polarisée

Le formalisme de Jones est un formalisme matriciel permettant de décrire l'état de polarisation d'une onde électromagnétique et son évolution à travers un système optique. Soit une onde plane monochromatique complètement polarisée se propage selon la direction de z , elle peut être décrite par un vecteur champ électrique $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(kz - \omega t)}$, avec $\vec{E}_0 = E_x \vec{i} + E_y \vec{j}$. Un état polarisé se représente simplement par un vecteur de Jones en éliminant des termes exponentiels communs dans les composants de x et de y du vecteur de champ électrique [87-88]

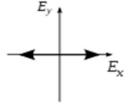
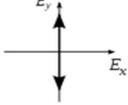
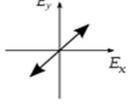
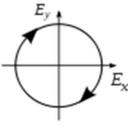
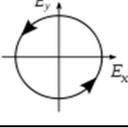
$$\vec{E} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} |E_x^{(0)}| e^{i(-\omega t + \phi_x)} \\ |E_y^{(0)}| e^{i(-\omega t + \phi_y)} \end{bmatrix} \quad (2.36)$$

Cependant, les paramètres les plus utiles pour décrire l'état de polarisation sont les différences de phase $\phi_y - \phi_x$ et le rapport $\frac{E_x^{(0)}}{E_y^{(0)}}$. Habituellement, on choisit donc un point qui sert de référence d'intensité et de phase, on note :

$$\begin{pmatrix} E_x(t) \\ E_y(t) \end{pmatrix} = E^{(0)} e^{i(-\omega t + \phi_x)} \begin{pmatrix} V_x \\ V_y \end{pmatrix} \quad (2.37)$$

Où le vecteur de Jones est défini par $\vec{v} = v_x \vec{i} + v_y \vec{j}$. Dans le tableau suivant on trouve certains exemples de vecteurs de Jones :

Tableau. 2.1 : Exemples de vecteurs de Jones normés.

Polarisation	Vecteur de Jones correspondant	Notation sous forme d'un ket	Représentation
Rectiligne selon l'axe x	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$	$ H\rangle$	
Rectiligne selon l'axe y	$\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$	$ T\rangle$	
Rectiligne selon un axe à 45° par rapport à l'axe x	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}$	$ D\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (H\rangle + T\rangle)$	
Circulaire droite (RCP)	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}$	$ R\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (H\rangle - i T\rangle)$	
Circulaire gauche (LCP)	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix}$	$ R\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (H\rangle + i T\rangle)$	

En outre, il existe les matrices de 2x2 de Jones, elles sont utilisées pour décrire les éléments optiques. Pour un polariseur linéaire avec des axes de polarisation selon la direction x ou y, la matrice de Jones est

$$P_x = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \text{ et } P_y = \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.38)$$

Et si l'axe de polarisation est à un angle θ par rapport à l'axe x, donc :

$$P_\theta = \begin{bmatrix} \cos^2 \theta & \sin \theta \cos \theta \\ \sin \theta \cos \theta & \sin^2 \theta \end{bmatrix} \quad (2.39)$$

Pour un polariseur circulaire droit ou gauche, la matrice de Jones est définie comme suit :

$$P_R = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & i \\ -i & 1 \end{bmatrix} \text{ et } P_L = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & -i \\ i & 1 \end{bmatrix} \quad (2.40)$$

En générale, la matrice de Jones sera appliquée sur un état de polarisation pour donner un nouvel état comme suit :

$$\xi'_P = M_{Jones} \xi_P \quad (2.41)$$

2.5. Explication macroscopique de l'effet magnéto-optique

Une lumière linéairement polarisée arrive en incidence directe sur la surface d'un matériau magnétique, elle peut être décomposée en deux polarisations circulaires indépendantes. Une lumière linéairement polarisée selon l'axe x peut être décrite par le vecteur de Jones si le champ électrique a une seule composante suivant l'axe des x , il peut être écrit comme

$$\vec{E} = E_0 \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \frac{E_0}{\sqrt{2}} (\vec{E}_+ + \vec{E}_-) = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} + \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \right) \quad (2.42)$$

L'effet Faraday résulte de l'interaction de deux ondes différentes polarisées circulairement droite et gauche par transmission d'un matériau magnétique. L'amplitude complexe de l'onde résultante après transmission de l'échantillon d'épaisseur l_0 est :

$$E_{out} = \frac{E_0}{2} \left(\begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} e^{ik+l_0} + \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} e^{ik-l_0} \right) = \frac{E_0 e^{i(k_+ + k_-)l_0/2}}{2} \left(\begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} e^{i(k_+ - k_-)l_0/2} + \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} e^{-i(k_+ - k_-)l_0/2} \right) = E_0 e^{i(k_+ + k_-)l_0/2} \begin{bmatrix} \cos \frac{\Delta}{2} \\ \sin \frac{\Delta}{2} \end{bmatrix} \quad (2.43)$$

Avec $k_{\pm} = n_{\pm} \omega / c$, le changement de phase après transmission est :

$$\Delta = \frac{(\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-) \omega l_0}{c} = \frac{2\pi (\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-) l_0}{\lambda} \quad (2.44)$$

Où $\tilde{n}_{\pm} = n_{\pm} + ik_{\pm}$ est l'indice de réfraction complexe pour la lumière polarisée droite (+) et gauche (-) et λ est la longueur d'onde de la lumière dans le vide. La rotation Faraday est définie comme une rotation de grand axe de polarisation

$$\theta_F = \text{Re} \left[\frac{\Delta}{2} \right] = \text{Re} \left[\frac{\pi l_0 (\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-)}{\lambda} \right] = \frac{\omega l_0}{2c} (n_+ - n_-) \quad (2.45)$$

L'effet Faraday se produit dans les matériaux transparents comme les oxydes des métaux de transitions. L'ellipticité est définie comme le rapport de petit axe sur le grand axe de l'ellipse, avec l'approximation de la faible absorption on a :

$$\epsilon_F = \tanh \left(\text{Im} \left[\frac{\Delta}{2} \right] \right) = \tanh \left(\frac{\omega l_0}{2c} (k_+ - k_-) \right) \approx \frac{\omega l_0}{2c} (k_+ - k_-) \quad (2.46)$$

Quand la lumière est réfléchi de la surface de métal, son état de polarisation change de sens c.-à-d. La polarisation circulaire droite change en polarisation circulaire gauche et vice versa [72]. Les interactions de la matière avec la lumière polarisée circulairement sont différentes et elles peuvent être décrites par les vecteurs de Jones comme :

$$\vec{E}^{out} = \frac{E_0}{2} \left(\tilde{r}_+ \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} + \tilde{r}_- \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} \right) = \frac{E_0}{2} \begin{bmatrix} (\tilde{r}_+ + \tilde{r}_-) \\ (\tilde{r}_+ - \tilde{r}_-)i \end{bmatrix} = E_0 \frac{(\tilde{r}_+ + \tilde{r}_-)}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ \frac{(\tilde{r}_+ - \tilde{r}_-)}{(\tilde{r}_+ + \tilde{r}_-)}i \end{bmatrix} \quad (2.47)$$

Où \tilde{r}_\pm est le coefficient de réflexion complexe de Fresnel pour la lumière polarisée droite et gauche et il est défini comme suit :

$$\tilde{r}_\pm = r_\pm e^{i\Lambda_\pm} = \frac{\vec{E}_\pm^{out}}{\vec{E}_\pm^{in}} \quad (2.48)$$

Le champ électrique réfléchi avait une composante selon y non nulle. Dans ce cas, la lumière incidente est polarisée linéairement et elle sera polarisée elliptiquement après réflexion. Le grand axe de l'ellipse est tourné d'un angle θ . Pour l'approximation des petits angles de rotation Kerr, la composante y de champ électrique est directement liée à l'effet Kerr.

$$\frac{\tilde{r}_-}{\tilde{r}_+} = \frac{1 - \tan(\epsilon_K)}{1 + \tan(\epsilon_K)} e^{2i\theta_K} \quad (2.49)$$

Par l'utilisation de l'équation (2.49), on voit que la composante y contribue à l'effet Kerr et donc :

$$\frac{(\tilde{r}_+ - \tilde{r}_-)}{(\tilde{r}_+ + \tilde{r}_-)}i \approx \theta_K + i\epsilon_K \quad (2.50)$$

La substitution du coefficient de Fresnel \tilde{r}_\pm avec l'indice de réfraction complexe $\tilde{n}_\pm = n_\pm + ik_\pm$ donne :

$$\tilde{r}_\pm = r_\pm e^{\Lambda_\pm} = \frac{\tilde{n}_\pm - 1}{\tilde{n}_\pm + 1} = \frac{\sqrt{\epsilon_\pm} - 1}{\sqrt{\epsilon_\pm} + 1} \quad (2.51)$$

Et on peut trouver une relation entre l'angle complexe de Kerr $\phi_K = \theta_K + i\epsilon_K$ et les constantes diélectriques [89]

$$\phi_K = -\frac{\epsilon_{xy}}{(\epsilon_{xx} - 1)\sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (2.52)$$

D'après l'équation (2.34), l'angle complexe de Kerr peut être exprimé en fonction de la conductivité :

$$\phi_K = -\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}\sqrt{1 + \frac{4\pi i}{\omega}\sigma_{xx}}} \quad (2.53)$$

Cela peut être résolu pour obtenir la rotation Kerr et l'ellipticité en fonction des éléments non-diagonaux du tenseur de conductivité et les constantes optiques (indice de réfraction, etc.),

$$\theta_K = \frac{4\pi}{\omega} \frac{B\sigma_{1xy} + A\sigma_{2xy}}{A^2 + B^2} \text{ et } \epsilon_K = \frac{4\pi}{\omega} \frac{A\sigma_{1xy} - B\sigma_{2xy}}{A^2 + B^2} \quad (2.54)$$

Si $\tilde{n} \approx \frac{(\tilde{n}_+ + \tilde{n}_-)}{2}$ et $|\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-| \ll \tilde{n}_+, \tilde{n}_-$, Les coefficients A et B sont en fonction des éléments diagonaux et de l'indice de réfraction complexe, tel que :

$$A = \frac{4\pi}{\omega} (n\sigma_{2xx} - k\sigma_{1xx}) = n^3 - 3nk^2 - n, \quad (2.55)$$

$$B = \frac{4\pi}{\omega} (n\sigma_{1xx} + k\sigma_{2xx}) = -k^3 + 3n^2k - k \quad (2.56)$$

Les éléments non-diagonaux doivent être considérables dans un large effet Kerr. Cependant, les petites valeurs des coefficients A et B rendent l'effet Kerr plus important. Feil et al. [90] étudient l'augmentation de l'effet Kerr par la résonance plasma, en conséquent, la petite valeur du dénominateur dans l'équation (2.52) provoque des pics dans les rotations Kerr. La condition de la résonance plasma est $\varepsilon_{xx} = 1$ et elle satisfait la condition du minimum de réflexion si $\tilde{r} \approx 0$,

$$\tilde{r} = \frac{\sqrt{\varepsilon_{xx} - 1}}{\sqrt{\varepsilon_{xx} + 1}} \quad (2.57)$$

2.6. La théorie microscopique classique

En outre, la théorie microscopique classique montre que le tenseur de conductivité $\tilde{\sigma}_{ij}$ est divisé en deux parties, à savoir les transitions intrabandes et interbandes. Les transitions intrabandes se produisent dans la même bande d'énergie où l'impulsion de l'électron n'est pas conservée. Les transitions interbandes sont des transitions d'un état occupé vers un état inoccupé. Le tenseur de conductivité est la somme de deux contributions, à savoir :

$$\tilde{\sigma}_{ij}^{total}(\omega) = \tilde{\sigma}_{ij}^{Inter}(\omega) + \tilde{\sigma}_{ij}^{Intra}(\omega) \quad (2.58)$$

Nous pouvons aisément penser à la contribution intrabande par le modèle classique de Drude. Dans ce modèle, Drude considère les métaux comme des gaz classiques d'électrons exécutant des mouvements diffusifs [59, 91-92]. La raison principale de ce modèle est l'existence d'un temps de relaxation moyen τ qui régit la relaxation du système à l'équilibre. Pour les transitions optiques et à partir de la réponse linéaire de Kubo-GreenWood, la conductivité contient une double somme sur toutes les bandes d'énergies. Ce qui est naturellement la séparation entre la contribution interbande responsable de l'électrodynamique lorsque $n \neq n'$ et la contribution intrabande lorsque $n = n'$, et donc l'expression de la conductivité s'écrit sous forme de l'équation (2.58). Elles ont un terme supplémentaire en (ω_0^2) dans le modèle d'électron libre. Les valeurs exactes des paramètres utilisés dans le modèle de Lorentz-Drude sont obtenues par le fit des courbes expérimentales. Tandis que, les transitions intrabandes apparaissent typiquement dans le cas des basses fréquences. Les

transitions interbandes peuvent être expliquées par le modèle classique de Lorentz ou par le modèle quantique dû à Sommerfeld. Dans ce dernier, les termes au carré de la fréquence plasma sont calculés comme $\omega_p^2 \equiv \frac{4\pi e^2}{m^2 \Omega} \sum_{\alpha\beta} \delta(\epsilon_{\alpha\beta} - E_F) |M_{\alpha\beta}|^2$, où E_F est l'énergie de Fermi et Ω est le volume atomique. Le paramètre de temps de relaxation intrabande $\gamma_D = \gamma/\epsilon_D$ est dû à Drude. Ce dernier est un paramètre intrinsèque qui diffère d'un métal à un autre. Le terme $M_{\alpha\beta}$ est la matrice de transition calculée par le modèle de Kubo.

2.6.1. Le modèle classique de Lorentz-Drude

Le mouvement des électrons libres d'une masse m et d'une charge $-e$ dans le solide peut être considéré comme des particules classiques ponctuelles. Ils sont confinés à l'intérieur d'un volume défini par l'ensemble des atomes. On obtient un gaz d'électrons qui est entraîné dans un mouvement d'ensemble par des champs électriques et magnétiques. Les collisions envisagées par Drude sont ceux des électrons en mouvement. Bien que, il se basant sur des hypothèses démenties depuis la description purement classique du mouvement des électrons, il permet de rendre compte de plusieurs propriétés des métaux comme la conductivité électrique, la conductivité thermique et l'effet Hall. Un électron au mouvement amorti peut avoir une fréquence de résonance d'un oscillateur harmonique, tel que :

$$m^* \left(\frac{d^2 \vec{r}}{dt^2} + \gamma \frac{d\vec{r}}{dt} + \omega_0^2 \vec{r} \right) = -e \left(\vec{E} + \frac{1}{c} \frac{d\vec{r}}{dt} \wedge \vec{B} \right) \quad (2.59)$$

Avec m^* est la masse effective de l'électron, γ est la constante d'amortissement et ω_0 est la fréquence de résonance. La force motrice externe est une force de Lorentz de l'onde électromagnétique et elle est dépendante du temps par $e^{-i\omega t}$. Le déplacement \vec{r} est à la forme de $\vec{r}_0 e^{-i\omega t}$ et sa dérivé par rapport au temps donne $\frac{d\vec{r}}{dt} = -i\omega \vec{r}$. Après avoir trouvé la solution, on introduit l'approximation du moment dipolaire $\vec{p} = -e\vec{r}$. Le moment dipolaire macroscopique \vec{P} est le produit du moment dipolaire atomique par le nombre des électrons de valence dans le cristal.

$$\vec{P} = N \langle \vec{p} \rangle = -Ne \langle \vec{r} \rangle \quad (2.60)$$

Le moment dipolaire total est proportionnel au champ électrique, d'où il découle une relation donnant la fonction diélectrique. La force magnétique peut être négligée, car le champ magnétique de l'onde est très petit devant le champ électrique aussi bien pour les composantes diagonales du tenseur de conductivité. Le vecteur déplacement si on garde la configuration polaire de l'effet Kerr est comme suit :

$$\vec{r} = -\frac{e}{m^*} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) - i\gamma\omega} \vec{E}_{local} \quad (2.61)$$

Le champ électrique local est défini comme une somme du champ appliqué plus le champ électrique microscopique dû aux autres charges.

$$\vec{E}_{local} = \vec{E} + \frac{4}{3} \pi \vec{P} \quad (2.62)$$

Pour les matériaux conducteurs, on peut considérer que $\vec{E}_{local} = \vec{E}$ dans le cas des électrons uniformément distribués. Donc, le moment dipolaire total peut être réécrit comme

$$\vec{P} = \frac{Ne^2}{m^*} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) - i\gamma\omega} \langle \vec{E} \rangle \quad (2.63)$$

La composante interbande et complexe de la diagonale du tenseur diélectrique devient

$$\varepsilon_{xx}^{inter} = 1 + \frac{4\pi Ne^2}{m^*} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) - i\gamma\omega} \quad (2.64)$$

Le premier terme dans l'équation (2.64) est issu du vide et il est remplacé par ε_∞ dans le matériau. Il peut être omis d'éliminer la redondance lorsque nous ajoutons le terme d'intrabande. Dans le cas de plusieurs oscillateurs harmoniques, le modèle de Lorentz tend à associer une fréquence de résonance ω_k et une force f_k pour chaque oscillateur, l'équation (2.64) devient [93] :

$$\varepsilon_{xx}^{inter}(\omega) = \frac{4\pi Ne^2}{m^*} \sum_k \frac{f_k}{(\omega_k^2 - \omega^2) - i\gamma\omega} \quad (2.65)$$

Pour la contribution intrabande, on peut trouver en considérant $\omega_0=0$,

$$\varepsilon_{xx}^{intra}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} \quad (2.66)$$

Où ω_p est la fréquence plasma avec $\omega_p^2 = \frac{4\pi Ne^2}{m^*}$. Pour un métal, la fréquence plasma peut être dans le domaine visible ou dans le domaine ultraviolet et le facteur d'amortissement $\gamma = \tau^{-1}$ est de $0.07 \sim 0.66$ eV. Aussi, le premier terme de l'équation (2.66) peut être remplacé par ε_∞ et cette équation change de forme avec la fréquence plasma écranté $\omega_p^2 = \frac{4\pi Ne^2}{\varepsilon_\infty m^*}$. Les contributions majeurs à ε_∞ sont dus aux électrons fortement liés c.-à-d. les électrons de cœur [94].

$$\varepsilon_{xx}^{intra}(\omega) = \varepsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} \right) \quad (2.67)$$

La conductivité complexe en fonction de fréquence pour la contribution intrabande sera donnée par la relation :

$$\sigma_{xx}^{intra}(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau}, \text{ avec } \sigma_0 = \frac{Ne^2\tau}{m} \quad (2.68)$$

Où σ_0 est la conductivité de Drude.

2.6.2. Les composantes non-diagonales du tenseur diélectrique

Pour calculer les composantes non-diagonales du tenseur diélectrique, on utilise le vecteur de déplacement pour une lumière polarisée circulairement défini par $\vec{r}_{\pm} = \hat{x} \pm i\hat{y}$. Quand un champ magnétique externe $\vec{B} = B_z\hat{z}$ est appliqué selon la direction z , on a

$$\vec{r}_{\pm} \wedge \vec{B} = \pm iB_z\vec{r}_{\pm} \quad (2.69)$$

La solution pour le vecteur déplacement avec un vecteur champ électrique $\vec{E}_{\pm} = \vec{E}(\hat{x} \pm i\hat{y})e^{i(kz - \omega t)}$ est

$$\vec{r}_{\pm} = -\frac{e\vec{E}_{\pm}}{m^*} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega \pm \omega_c\omega} \quad (2.70)$$

Où $\omega_c = \frac{eB}{m^*c}$ est la fréquence cyclotron.

Pour les contributions interbandes, la constante diélectrique pour une lumière polarisée circulairement est exprimée comme

$$\varepsilon_{\pm} = 1 + \frac{4\pi Ne^2}{m^*} \sum_k \frac{f_k}{(\omega_k^2 - \omega^2) \pm \omega\omega_c - i\omega\gamma} \quad (2.71)$$

Avec cette relation $\varepsilon_{\pm} = \varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy}$, les termes non-diagonaux sont

$$\varepsilon_{xy}^{inter}(\omega) = \frac{\varepsilon_+ - \varepsilon_-}{2i} = \frac{\omega_p^2}{2i} \sum_k f_k \left[\frac{1}{\omega_k^2 - \omega^2 + \omega\omega_c - i\omega\gamma} - \frac{1}{\omega_k^2 - \omega^2 - \omega\omega_c - i\omega\gamma} \right] \quad (2.72)$$

$$\sigma_{xy}^{inter}(\omega) = \frac{\omega\varepsilon_{xy}}{4\pi i} = \frac{\omega_p^2\omega}{8\pi} \sum_k f_k \left[-\frac{1}{\omega_k^2 - \omega^2 + \omega\omega_c - i\omega\gamma} + \frac{1}{\omega_k^2 - \omega^2 - \omega\omega_c - i\omega\gamma} \right] \quad (2.73)$$

Le terme non-diagonal de la contribution intrabande dans la fonction diélectrique est obtenu par poser $\omega_0 = 0$ dans le modèle de Lorentz-Drude,

$$\varepsilon_{\pm} = 1 + \frac{4\pi Ne^2}{m^*} \frac{\omega_p^2}{\omega(-\omega \pm \omega_c - i\gamma)} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega \mp \omega_c + i\gamma)} \quad (2.74)$$

$$\varepsilon_{xy}^{intra}(\omega) = \frac{\varepsilon_+ - \varepsilon_-}{2i} = \frac{\omega_p^2}{\omega} \frac{\omega_c}{(\omega + i\gamma)^2 + \omega_c^2} i \quad (2.75)$$

$$\sigma_{xy}^{intra}(\omega) = \frac{\omega\varepsilon_{xy}}{4\pi i} = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \frac{\omega_c}{(\omega + i\gamma)^2 + \omega_c^2} \quad (2.76)$$

La partie absorptive de la constante diélectrique et les éléments non-diagonaux du tenseur de conductivité sont :

$$\varepsilon_{1,xy}^{intra}(\omega) = \frac{2\omega_c \gamma \omega_p^2}{(\omega^2 + \omega_c^2 - \gamma^2)^2 + 4\omega^2 \gamma^2} \quad (2.77)$$

$$\sigma_{2,xy}^{intra}(\omega) = -\frac{1}{2\pi} \frac{\omega_c \omega \gamma \omega_p^2}{(\omega^2 + \omega_c^2 - \gamma^2)^2 + 4\omega^2 \gamma^2} \quad (2.78)$$

2.7. La théorie quantique de l'effet Kerr magnéto-optique

La réponse du milieu aux ondes électromagnétiques a été décrite par la conductivité électrique liée à la fréquence de l'onde incidente. Il est important de rapporter ces paramètres aux changements des états électroniques du solide. Ils sont provoqués par les champs électromagnétiques ou par des potentiels externes. La formule de Kubo [51,59] sera utilisée dans laquelle la conductivité est donnée en termes de fonction de corrélation courant-courant. L'expression est générale et elle a été utile dans une série des formulations des phénomènes de transport et de propriétés spectrales dans la matière condensée. Nous décrirons ici le mouvement d'une charge $-e$ dans un champ appliqué avec le potentiel vecteur \vec{A} . L'Hamiltonien pour un champ électromagnétique appliqué est [95-96]

$$H = \frac{1}{2m} \sum_{i=1}^N \left(p_i + \frac{e}{c} A(r_i) \right)^2 + \sum_{i=1, j=1}^{N, m} V_j(r_i - R_j) + \frac{1}{2} \sum_{i=1, i'=1}^{N, N'} \frac{e^2}{|r_i - r_{i'}|} - \sum_{i=1}^N e\phi(r_i) \quad (2.79)$$

Ici (e, m) sont la charge et la masse de l'électron, respectivement. Le premier terme décrit le couplage entre les ondes électromagnétiques. Les électrons sont décrits par les moments p_i et les positions r_i . Le deuxième terme définit l'interaction entre les ions et les électrons. Le troisième terme décrit l'interaction électron-électron ($i \neq i'$). Nous supposons que seule la répulsion coulombienne est importante, donc nous utilisons l'approche adiabatique de Born-Oppenheimer [18, 59]. Le dernier terme dans l'Hamiltonien décrit un potentiel scalaire ϕ produit par une charge externe. En général, l'Hamiltonien peut être écrit sous trois termes en introduisant le potentiel vecteur pour un champ magnétique DC (direct-current) et un potentiel vecteur \vec{A}_L de l'onde électromagnétique comme :

$$H = H_0 + H_M + H_I \quad (2.80)$$

L'interaction impliquant des transitions optiques peut être regardée comme une petite perturbation. L'énergie de l'interaction magnétique H_M se divise en interactions spin-orbite et de Zeeman. Tandis que l'interaction Zeeman est provoquée par un champ magnétique externe

qui sépare le spin up de spin down, le potentiel vecteur \vec{A}_M dans un champ magnétique uniforme \vec{B} est remplacé par $-\frac{1}{2}\vec{r} \wedge \vec{B}$ en négligeant les termes de \vec{A}_L^2 et $\vec{A}_M \cdot \vec{A}_L$, le Hamiltonien devient :

$$H_0 = \frac{1}{2m} p^2 + V(\vec{r}), \quad (2.81)$$

$$H_M = \zeta \vec{L} \cdot \vec{S} + \mu_B (\vec{L} + g_0 \vec{S}) \cdot \vec{B}, \quad (2.82)$$

$$H_I = \frac{e}{mc} \vec{A}_L \cdot \vec{p} \quad (2.83)$$

Les magnitudes des interactions sont montrées dans le tableau 2. L'énergie cinétique et l'énergie potentiel d'un électron de valence dans un atome est de l'ordre de quelque eV [97]. L'énergie de l'interaction spin-orbite augmente en fonction de nombre atomique. Cependant, l'énergie d'interaction Zeeman qui apparait dans le second terme de H_M est très petite, typiquement elle est de l'ordre de 10^{-4} eV quand le champ magnétique est de l'ordre de 10^4 Gauss [98]. L'énergie d'interaction électron-photon H_I est très petite comparée aux autres interactions.

Tableau. 2.2 : Ordre de grandeur des importantes des énergies d'interaction dans l'effet Kerr magnéto-optique.

Energie	Expression	Ordre de grandeur (eV)
H_0 , cinétique + potentiel	$\frac{1}{2m} p^2 + V(\vec{r})$	1-10
H_{SO} , interaction spin-orbite	$\zeta \vec{L} \cdot \vec{S}$	10^{-3} - 10^{-1}
H_M , Zeeman	$\mu_B (\vec{L} + g_0 \vec{S}) \cdot \vec{B}$	10^{-4}
H_I , interaction électron-photon	$\frac{e}{mc} \vec{A}_L \cdot \vec{p}$	10^{-5}

Avec l'approximation de dipôle, le dernier terme dans l'Hamiltonien est réduit à :

$$H_I = \vec{p}_d \cdot \vec{E}(t) = -e\vec{r} \cdot \vec{E}(t) \quad (2.84)$$

Soit un électron dans son état fondamental, son Hamiltonien est indépendant du temps et il est dans un état stationnaire. Le terme d'interaction électron-photon peut être considéré comme une perturbation. La théorie de la perturbation dépendante du temps en premier ordre [96] montre que $H_I(t) = H_I \sin(\omega t)$ et elle induit des transitions entre les états stationnaires. La probabilité de transition d'un état fondamental $|\alpha\rangle$ vers un état excité $|\beta\rangle$ par absorption d'un photon d'énergie $\hbar\omega$ est issue de la règle d'or de Fermi. Elle donne le nombre de transitions par unité de temps :

$$W_{\alpha\beta} = \frac{2\pi}{\hbar} \rho(\beta) |\langle \beta | H_I | \alpha \rangle|^2 \delta(E_\beta - E_\alpha - \hbar\omega) \quad (2.85)$$

Où $\rho(\beta)$ est la densité des états excités et (E_ω, E_β) sont les énergies de l'état initial et de l'état final avec $E_\beta - E_\alpha = \hbar\omega$. La probabilité de transition est proportionnelle au carré des éléments de la matrice des transitions optiques. Bennett et Stern ont calculé la conductivité optique par une relation entre la puissance d'absorption et les transitions optiques [85]. La puissance absorbée par unité de volume V est :

$$\tilde{P} = \frac{1}{2} \int \text{Re}(\vec{J}^* \cdot \vec{E}) dV = \frac{1}{2} \text{Re} \left(\sum_{ij} \sigma_{ij} E_j^* E_i \right) \quad (2.86)$$

Elle est liée à la probabilité de transition par

$$\tilde{P} d\omega = \hbar\omega \sum_i W_i \quad (2.87)$$

La partie absorptive de la conductivité est en termes d'éléments diagonaux de la matrice,

$$\sigma_{1,xx} = \frac{\pi e^2}{\hbar\omega m^2 V} \sum_{\alpha\beta} |\langle \beta | \pi_x | \alpha \rangle|^2 \delta(\omega_{\beta\alpha} - \omega) \quad (2.88)$$

Où $\hbar\omega_{\beta\alpha} = E_\beta(\vec{k}) - E_\alpha(\vec{k})$ et l'opérateur de transition est $\pi_x = \vec{P} + \left(\frac{\hbar}{4mc^2} \right) (\sigma \cdot \nabla(\vec{r}))$, avec $\vec{P} = \vec{p} + \left(\frac{e}{c} \right) \vec{A}_M$.

La partie absorptive en termes d'éléments non-diagonaux de la matrice a aussi la forme :

$$\sigma_{2,xy} = \frac{\pi e^2}{4\hbar\omega m^2 V} \sum_{\alpha\beta} \left\{ |\langle \beta | \pi^- | \alpha \rangle|^2 - |\langle \beta | \pi^+ | \alpha \rangle|^2 \right\} \delta(\omega_{\beta\alpha} - \omega) \quad (2.89)$$

Avec $\pi_\pm = \pi_x \pm i\pi_y$.

Par l'utilisation des relations de Kramers-Krönig, nous obtenons $\sigma_{2,xx}$ et $\sigma_{1,xy}$. Le tenseur de conductivité dans ses parties réelle et imaginaire a les formes suivantes :

$$\sigma_{1,ij} = \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\omega' \sigma_{2,ij}(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (i, j = x, y, z), \quad (2.90)$$

$$\sigma_{2,ij} = -\frac{2\omega}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\omega' \sigma_{1,ij}(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (i, j = x, y, z) \quad (2.91)$$

Où P est la valeur principale. Par l'utilisation des équations précédentes, les autres parts de la conductivité sont :

$$\sigma_{2,xx} = -\frac{2e^2\omega}{\hbar m^2 V} \sum_{\alpha\beta} \frac{|\langle \beta | \pi_x | \alpha \rangle|^2}{|\omega_{\beta\alpha}|^2 (\omega_{\beta\alpha}^2 - \omega^2)}, \quad (2.92)$$

$$\sigma_{1,xy} = -\frac{e^2}{2\hbar m^2 V} \sum_{\alpha\beta} \left\{ \frac{|\langle \beta | \pi^- | \alpha \rangle|^2}{(\omega_{\beta\alpha}^2 - \omega^2)} - \frac{|\langle \beta | \pi^+ | \alpha \rangle|^2}{(\omega_{\beta\alpha}^2 - \omega^2)} \right\} \quad (2.93)$$

Pour chaque état de spin, les éléments non-diagonaux du tenseur de conductivité sont obtenus par la différence entre les transitions issues des ondes polarisées circulairement droite ou gauche et les éléments diagonaux sont obtenus par la somme des deux. L'ajout des deux

termes de conductivité pour les états de spin up et down donne la conductivité totale. Si il n'y pas d'interaction spin-orbite, les éléments matriciels de dipôle pour la lumière polarisées circulairement sont identiques. Les éléments non-diagonaux sont égaux à zéro.

2.8. Le calcul de la structure de bandes et le tenseur de conductivité optique

L'électron est considéré comme une particule libre dans ce qui suit, son mouvement dans un champ moyen créé par les autres particules est régit par l'approximation de densité locale de spin (LSDA). La densité électronique est obtenue par la somme et l'aimantation par une différence de deux densité de spin up et down comme suit :

$$\rho(\vec{r}) = \rho_{\uparrow}(\vec{r}) + \rho_{\downarrow}(\vec{r}) \quad (2.94)$$

$$m(\vec{r}) = \rho_{\uparrow}(\vec{r}) - \rho_{\downarrow}(\vec{r}) \quad (2.95)$$

Le tenseur de conductivité optique a été calculé par Callaway [99-100] par l'approximation des spin-polarisés avec la théorie de la réponse linéaire de Kubo [101] :

$$\sigma_{\lambda\lambda'}^{(1)} = \frac{\pi e^2}{m^2 \omega} \sum_k \sum_{\alpha\beta} \frac{f(\epsilon_{\alpha k}) - f(\epsilon_{\beta k})}{\omega_{\alpha\beta}(k)} \frac{M_{\beta\alpha}^{\lambda}(k) M_{\alpha\beta}^{\lambda'}(k)}{\omega - \omega_{\alpha\beta}(k) + i\gamma} \quad (2.96)$$

Où $f(\epsilon_{\alpha k})$ est la fonction de Fermi, $\hbar\omega_{\alpha\beta}(k) = \epsilon_{\alpha k} - \epsilon_{\beta k}$ est la différence d'énergie entre les niveaux de Kohn-Sham, γ est l'inverse de temps de relaxation et $M_{\beta\alpha}^{\lambda}$ sont les éléments matriciels des transitions optiques. Dans le cas relativiste, le vecteur de densité de courant $J = -ec\vec{\alpha}$, avec $\vec{\alpha}$ est l'opérateur de Dirac.

La matrice de transition est $M_{\alpha\beta}^{\lambda} = \langle \psi_{\alpha} | \pi_{\lambda} | \psi_{\beta} \rangle$, π_{λ} est l'opérateur de transition. Erskine et Stern utilisent le couplage spin-orbite comme une perturbation sur le système aux spin-polarisés. Dans ce cas, l'opérateur de transition est remplacé par :

$$\tilde{\pi} = \tilde{p} + \frac{\hbar}{4mc^4} \tilde{\sigma} \times \nabla V \quad (2.97)$$

Le terme \tilde{p} est l'opérateur canonique de transition, $\tilde{\sigma}$ est la matrice de Pauli et $\tilde{\sigma} \times \nabla V(r)$ représente le terme spin-orbite. Alors, les parties absorptives sont [73]:

$$\sigma_{1xx}(\omega) = \frac{\pi e^2}{2\hbar\omega m^2 V} \sum_{\alpha\beta} \left[|M_{\beta\alpha}^{+}|^2 + |M_{\beta\alpha}^{-}|^2 \right] \delta(\omega - \omega_{\alpha\beta}), \quad (2.98)$$

$$\sigma_{2xx}(\omega) = \frac{\pi e^2}{2\hbar\omega m^2 V} \sum_{\alpha\beta} \left[|M_{\beta\alpha}^{+}|^2 - |M_{\beta\alpha}^{-}|^2 \right] \delta(\omega - \omega_{\alpha\beta}) \quad (2.99)$$

Où $M^{\pm} = \langle \psi_{\alpha} | \tilde{\pi}_x \pm \tilde{\pi}_y | \psi_{\beta} \rangle$. Les spectres optiques et magnéto-optiques des métaux dépendent des transitions intrabandes et interbandes. En principe l'équation qui suit

$$\sigma_{2,xy\uparrow}(\omega) = \frac{\pi e^2}{2\hbar\omega m^2 V} \sum_{\alpha\beta} \left\{ \left| \langle \beta^\uparrow | \vec{\pi}^+ | \alpha^\uparrow \rangle \right|^2 - \left| \langle \beta^\uparrow | \vec{\pi}^- | \alpha^\uparrow \rangle \right|^2 \right\} \delta(\omega_{\alpha\beta\uparrow} - \omega) \quad (2.100)$$

Tient en compte des deux transitions (intra et inter). Aussi, elle tient compte de la contribution des spins up et elle est identique pour les spins down à la seule condition d'alterner entre le spin up de spin down. Il y a trois cas possible pour l'élimination de $\sigma_{2,xy}$ qui sont :

1. La levée de dégénérescence des niveaux d'énergie des états de spin,
2. Les états d'hybridation des différents caractères de spin,
3. Les transitions des spin-flip due au couplage spin-orbite.

Pour évaluer les propriétés magnétiques et magnéto-optiques, nous avons utilisé deux méthodes différentes, à savoir la LMTO et la FP-LAPW dans l'approximation de la sphère atomique. La structure de bandes d'énergie, les moments magnétiques, les densités d'états et les propriétés optiques sont calculés dans le cadre du couplage spin-orbite.

Chapitre III :

Les films ultraminces de chrome et de manganèse

Les films ultra-minces à base des métaux de transitions ont devenu un domaine de recherche très actif vu les propriétés physiques qu'ils peuvent présenter. D'une part, de nouvelles structures cristallines peuvent être réalisées pour certains éléments qui diffèrent de celles en volume. D'autre part, ils montrent des comportements magnétiques, optiques et magnéto-optiques très différents en comparaison avec les systèmes massifs. Leurs buts ont pour objet l'augmentation des densités de stockage et l'amélioration des performances d'écriture et de lecture (vitesse et efficacité, taux de transfert et temps d'accès). Ces films peuvent présenter un couplage anti ferromagnétique à une anisotropie perpendiculaire qui peut être considéré comme une solution imminente de l'augmentation des densités de stockage.

3.1. Introduction

Les films magnétiques ultraminces de quelques monocouches atomiques sont très étudiés, car ils présentent des propriétés physiques importantes. Le magnétisme de ces films a révélé des ordres complexes, comme l'antiferromagnétisme de Mn ou les modulations à longue période liées à l'interaction d'échange de Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) dans des films ultraminces avec une symétrie d'inversion [102]. On pouvait penser que c'était une particularité des systèmes de basse dimensionnalité présentant une anisotropie perpendiculaire au plan du film, or de simples expériences de dynamique de parois magnétiques dans des couches de cobalt de 0.6 nm d'épaisseur déposées sur platine peuvent présenter des résultats surprenants (les multicouches Pt/Co/AlO_x et Pt/Co/Pt présentent une anisotropie perpendiculaire) [103]. Disposer de couches de faible épaisseur peut réduire l'intensité des courants requise pour propager les parois de domaines. Dans ces couches ultra-minces, les parois sont en effet beaucoup plus étroites (~10 nm) que dans les couches à aimantation planaire (~100 nm ou plus). En conséquence, les densités limites pour le stockage d'information sont supérieures dans ces matériaux. D'autre part, les effets de chauffage par effet Joule y sont moins importants [103]. Physiquement, l'anisotropie perpendiculaire dans les couches ultra-minces est un phénomène d'interface. Cependant, la rupture de symétrie due à la réduction du nombre de coordination offre la possibilité de nouveaux et exotiques phénomènes. Pour montrer le comportement de l'anisotropie dans des films ultraminces, nous avons étudié les systèmes de Cr/Ag(001), Mn/Ag(001) et Mn/Au(001). L'effet Kerr est utilisé dans sa géométrie polaire, car des systèmes de taille nanométrique présentent dans des rares cas une anisotropie planaire. L'étude des films nanométriques montre en général une anisotropie perpendiculaire et elle est prouvée par de multiples travaux expérimentaux ainsi que théoriques par le calcul des éléments du tenseur de conductivité. Les propriétés magnéto-optiques sont calculées par un maillage de 16x16x1 de points K dans la zone de Brillouin. L'énergie des photons incidents est élargie jusqu'à 10 eV. Le critère de convergence est fixé à 10⁻⁸.

3.1.1. L'enregistrement magnétique longitudinal et perpendiculaire

Pour un disque dur classique, les données sont inscrites de façon horizontale sur la surface du plateau. La magnétisation de chaque bit de données (en code binaire 0 ou 1) est alignée horizontalement. Pour augmenter la capacité de stockage, des physiciens ont pensé à enregistrer les données d'une façon verticale afin de réduire les dimensions du dispositif.

Dans l'enregistrement magnétique perpendiculaire (PMR), l'aimantation de chaque bit de données est alignée verticalement par rapport au disque en rotation. La théorie du PMR fournit ainsi une plate-forme pour l'évolution future de la densité des disques durs et elle est mise en œuvre depuis 2006. La figure ci-contre montre le procédé du LMR et PMR.

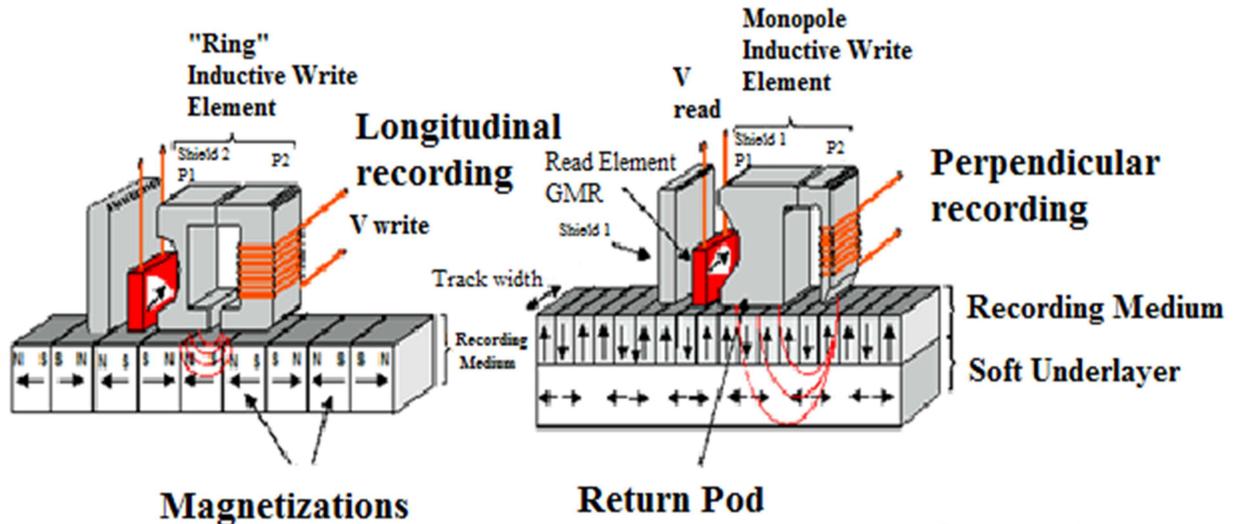


Figure. 3.1 : La tête d'écriture inscrit des domaines magnétiques sur le support de stockage. Dans le cas de l'enregistrement longitudinal, l'aimantation est dans le plan du disque, contrairement à l'enregistrement perpendiculaire. La tête de lecture dispose d'un Pod (Power storage Container) et le dispositif est doté d'une sous couche magnétiquement souple (Soft Under layer). Les champs de fuite sont localisés au niveau des transitions et sont détectés par l'élément magnéto résistif (Read Element GMR) de la partie lecture de la tête.

Dans l'enregistrement perpendiculaire, les bits adjacents s'attirent au lieu de se repousser, contrairement à l'enregistrement longitudinal, ce qui se traduit par des bits thermiquement plus stables. La disposition de la sous-couche souple magnétiquement (SUL) au-dessous de la couche d'enregistrement permet l'augmentation de la densité de stockage. En raison de l'orientation verticale des bits, la couche d'enregistrement PMR a tendance à être plus épaisse que celle utilisée pour l'enregistrement longitudinal. D'autre part, leur orientation verticale facilite l'écriture du disque par les têtes, ce qui permet indirectement de choisir des matériaux plus résistants à la température.

Des recherches actuelles viennent de montrer qu'un chauffage très local obtenu par une impulsion laser ultra rapide permet d'inverser l'aimantation dans un matériau ferrimagnétique. Ceci permet d'inscrire à une vitesse incomparable des données informatiques.

3.1.2. La rupture de symétrie et la supercellule

Les propriétés magnétiques des films ultraminces dépendent fortement du nombre d'électrons dans la couche 3d de l'élément en surface, de sa structure cristalline et de l'orientation cristallographique du substrat. L'étude des surfaces a connu un grand intérêt en raison de l'augmentation de l'aimantation des systèmes aux spins polarisés qui est une conséquence directe due à la rupture de symétrie à l'interface [104]. Le théorème de Bloch est utilisé pour étudier des systèmes possédant une symétrie de translation dans les trois directions cristallographiques (x, y, z). Pour remédier à ce problème de symétrie, on présente le cristal semi infini par un empilement fini de plans atomiques appelé Slab (les plans du substrat et les plans de la couche mince) orienté de sorte que le plan de surface soit perpendiculaire à l'axe z , la rupture de symétrie est compensée par l'introduction des sphères vides de charge nulle qu'on les notera Empty Sphere (Es). L'association d'un slab et une couche des sphères vides constitue une supercellule et la succession suivant la direction z d'un nombre infini de supercellules devient symétrique, (voir figure. 3.2). Cependant, les conditions suivantes doivent être respectées pour que la surface conçue soit bien adaptée, à savoir :

1. La charge électronique du plan central de l'espace vide doit être nulle pour éliminer toute interaction entre slab (sans affecter le calcul de la structure de bande).
2. Les propriétés de l'état massif doivent être reproduites au centre du slab. Une fois reproduit les propriétés du massif, il est inutile d'augmenter la taille de la supercellule afin de minimiser le temps de calcul.

3.1.3. Détails de calcul

Les calculs de la structure électronique sont effectués par la méthode (SPR-LMTO-ASA) [14] avec un potentiel d'échange-corrélation de Von Barth-Hedin pour des systèmes aux spins polarisés [35]. Cette méthode est très utilisée pour les calculs des propriétés magnétiques des matériaux. Elle a été développée à l'aide des fonctionnelles relativistes pour expliquer le comportement magnétique des matériaux. Le couplage spin-orbite est ainsi introduit pour tenir compte de la polarisation en spin. Cette méthode offre un gain de calcul appréciable relativement aux autres méthodes.

Les fonctions d'ondes du cristal sont exprimées comme une combinaison linéaire des sommes de Bloch appelées les orbitales Muffin-Tins relativistes centrées sur les sites

atomiques. Les queues provenant des autres sphères sont données sous forme d'une combinaison linéaire des fonctions de Hankel ou de Newman. A l'intérieur des sphères MTs, les fonctions de base sont développées en termes d'harmoniques sphériques et des fonctions radiales solutions de l'équation de Dirac. Dans la région interstitielle, les fonctions d'ondes sont décomposées sur une base d'ondes planes qui doivent vérifier les conditions de raccordement sur les sphères MTs [6]. La zone de Brillouin (BZ) est délimitée par les points de haute symétrie et l'intégration sur cette zone est effectuée par l'utilisation de la méthode des tétraèdres [105] avec 400 points k pour un calcul auto-cohérent. Les points k sont choisis de manière à avoir la convergence en un temps minimal et le critère de convergence est de l'ordre de 10^{-6} . Les points k dans la ZB pour les calculs des densités d'états, des propriétés magnétiques et magnéto-optiques, sont délimités par les côtés $2\pi/a$, $2\pi/b$, $2\pi/c$, où a , b , c sont les paramètres cristallins de la supercellule. Comme $c > (a=b)$, la ZB est aplatie selon la direction z et les bandes d'énergie présente une dispersion dans le plan (k_x, k_y) . Elle est subdivisée en micro zones pour calculer les valeurs propres de l'énergie donnant ainsi la forme de la structure de bandes. Les propriétés magnétiques, plus précisément, les moments magnétiques de spin et orbital sont donnés respectivement par [1]:

$$\mu_S = \mu_B \sum_{i,j} \langle \psi | \beta \sigma_z | \psi \rangle \delta(E_j - E_i) \quad (3.1)$$

$$\mu_L = \mu_B \sum_{i,j} \langle \psi | \beta l_z | \psi \rangle \delta(E_j - E_i) \quad (3.2)$$

Où l_z est la projection de moment cinétique orbital sur l'axe des z , E_i est l'énergie d'un état initial occupant la $i^{\text{ème}}$ bande, E_j est l'énergie d'un état final inoccupé dans un ensemble de « j » bandes. ψ est la fonction d'onde correspondante ainsi $\delta(E_j - E_i)$ est la fonction de delta de Dirac.

Dans le cas des films de manganèse, nous avons calculé les propriétés magnétiques par la LMTO. Les résultats prédisent un couplage ferromagnétique entre les plans de Mn soit sur le substrat d'Ag ou de l'Au. Nous avons recalculé notre système en utilisant la méthode FP-LAPW (Wien2k) avec les mêmes paramètres de calcul. La méthode FP-LAPW donne des résultats qui prédisent aussi le couplage ferromagnétique. Bien que, la LMTO estime mieux les distances inter plans par un processus d'optimisation de l'énergie totale, mais elle ne tient pas compte des forces de Hellmann-Feynmann [106-107] et elle suppose aussi que les constantes de réseau dans le plan sont fixes. Les études expérimentales montrent que le

[1] Ruth Durrer, *Mécanique Quantique II*, Université de Genève Quai E. Ansermet 24, 1211 Genève 4, Suisse

manganèse en film ultramine est réellement très compliqué, du fait que sa couche 3d contient 5 électrons et leur répartition offre plusieurs possibilités. Le manganèse n'est ferromagnétique qu'après un traitement spécifique.

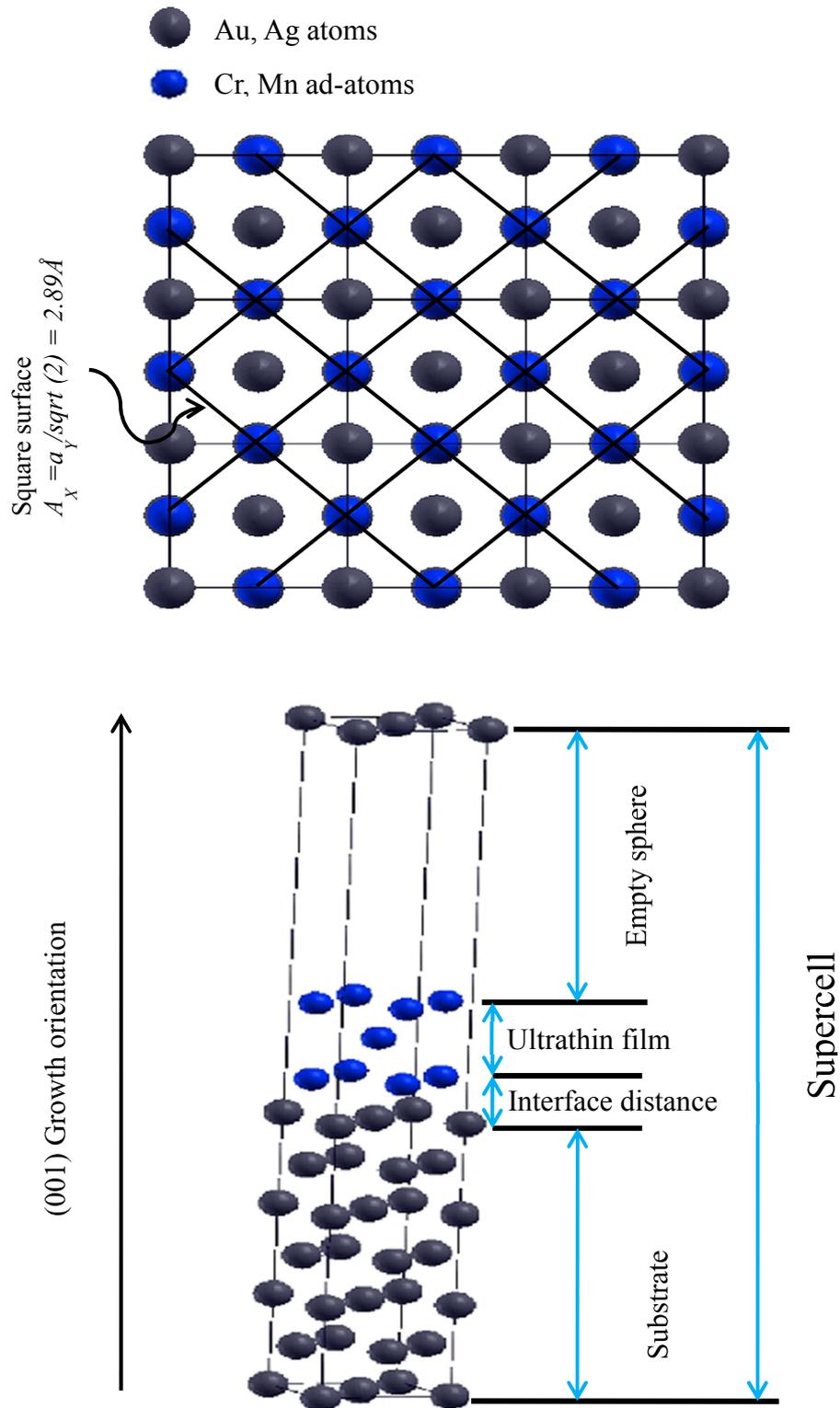


Figure. 3.2 : Exemple d'une supercellule utilisé pour le film de $X_n/Y(001)$ et illustration du mode de croissance du film $X = (Cr, Mn)$ sur le substrat $Y = (Ag, Au)$.

Pour surmonter ce problème, nous avons recalculé les nouvelles constantes de plans (les paramètres de maille a et b) par l'utilisation de l'équation d'état de Birch-Murnaghan [108] à travers le code Wien2K. Cependant, le paramètre 'c' le long de la cellule peut être trouvé via le processus d'optimisation des forces interatomiques de Hellmann-Feynmann.

3.2. Les propriétés magnétiques des films ultraminces de manganèse et de chrome

- Résultats antérieurs

Les matériaux bidimensionnels comme les films ultra-minces de manganèse et de chrome peuvent présenter des propriétés magnétiques très différentes de celles qu'ils pourraient y avoir dans un état massif. Du fait de la portée limitée des interactions interatomiques, pour des épaisseurs supérieures à 2 nanomètres, le film a un comportement massif. Néanmoins, les interfaces non parfaitement planes en présence de défauts induisent des frustrations magnétiques plus importantes. Le cas le plus simple est celui d'une monocouche parfaitement déposée sur un substrat. En général, trois configurations magnétiques sont envisagées: un ordre ferromagnétique dans le plan avec deux types de couplage avec le substrat, à savoir les configurations $p(1 \times 1)\uparrow$ et $p(1 \times 1)\downarrow$ et un ordre antiferromagnétique dans le plan comme la configuration $c(2 \times 2)$. Dans le cas d'un substrat non polarisé comme l'argent, les deux configurations $p(1 \times 1)$ sont identiques. De plus, la symétrie particulière de la monocouche rend la solution $c(2 \times 2)$ très favorable pour les éléments de milieu de série comme Cr, Mn et Fe. Ceci a été confirmé expérimentalement dans le cas d'une monocouche de Cr sur Ag(001) [109-111].

Le cas d'un film ultramine de Mn est particulièrement intéressant. En effet, le manganèse est connu pour des arrangements magnétiques complexes [6]. On peut donc s'attendre à ce qu'il en soit de même dans le cas d'une monocouche. Par spectroscopie de photoélectrons de cœur polarisés, Roth *et al.* [112] ont observé une configuration $c(2 \times 2)$ de la couche de Mn, avec un moment magnétique moyen proche de zéro ($0.3 \mu_B$) et antiparallèle au moment de Fe [113]. Mais, l'étude [114] en dichroïsme magnétique a conduit à l'existence d'un ordre qui ne pouvait être $c(2 \times 2)$ et que ces auteurs ont supposé la configuration $p(2 \times 2)\uparrow$. Pour des films d'épaisseur jusqu'à 2 monocouches (ML), un moment magnétique global, estimé à $1.7 \mu_B$ par atome de Mn, a été observé. Andrieu *et al.* [114] ont fait croître le film de Mn sur 200 plans de fer, déposé lui-même sur un substrat de MgO, alors que Roth *et al.* [112] ont considéré un film de fer beaucoup plus mince (20 plans) déposé sur un substrat d'Ag(001).

Mais, ils ont observé la ségrégation de l'argent, ce qui conduit à un autre arrangement atomique et donc à une distribution différente des moments magnétiques locaux. Dans tout les cas, les quatre atomes de Mn de la maille portent un moment magnétique de l'ordre de $3 \mu_B$. Pour la configuration $p(2 \times 2) \uparrow$ trois atomes de Mn ont un moment parallèle à ceux du fer et le quatrième a un moment antiparallèle. Dans le cas contraire, la situation est inversée. Le calcul LMTO a été effectué dans l'approximation dite ASA (Atomic Sphere Approximation) qui ne permet pas une relaxation des atomes; seule une étude utilisant un cadre FP (Full Potential) permettrait d'étudier une éventuelle "ondulation" des monocouches et l'effet des relaxations perpendiculaires à la surface sur la valeur des moments magnétiques. Néanmoins, les ordres de grandeur des différences d'énergie permettent d'affirmer que les deux états devraient rester proches en énergie. La section suivante illustre les configurations magnétiques possibles et les reconstructions surfaciques discutées ci-dessus.

3.3. La reconstruction de surface et les configurations magnétiques

La reconstruction à la surface se rapporte au processus par lequel les atomes d'un adsorbant assument des positions en respectant la structure d'origine du substrat, (figure. 3.3). Nous avons pris comme substrat les métaux nobles, tel que : l'argent (Ag) et l'or (Au).

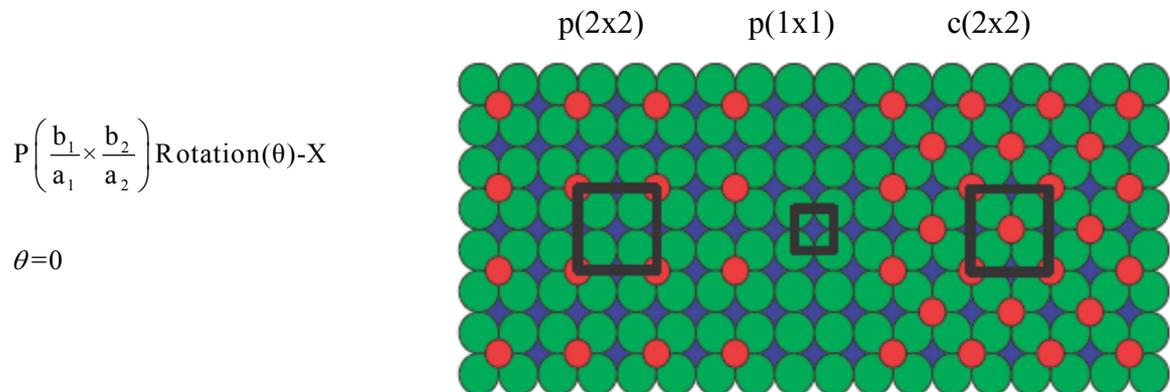


Figure. 3.3 : Exemple des configurations de la reconstruction de surface $p(2 \times 2)$ et $c(2 \times 2)$.

Ces matériaux se cristallisent dans une structure cubique à faces centrées (fcc) avec des paramètres de maille de 4.086 \AA et 4.078 \AA , respectivement. La déposition d'une couche atomique d'un élément du milieu de série 3d suit un ordre de reconstruction donnant les configurations magnétiques selon les notations de Wood « p ou c ». Pour une structure fcc, les constantes a_1 et a_2 sont les paramètres de maille du bulk qui constitue la surface, b_1 et b_2 sont les distances interatomiques d'un adsorbant. Les lettres p et c dénotent la maille primitive et la maille centrée du réseau, respectivement.

Prenant le cas de Mn/Fe, les configurations des moments magnétiques des atomes $p(1 \times 1)^\uparrow$, $p(1 \times 1)_\downarrow$, $c(2 \times 2)$, $p(2 \times 2)^\uparrow$ et $p(2 \times 2)_\downarrow$ sont comme montrées dans la figure ci-dessous. Les atomes de Mn sont colorés en bleu, tandis que l'atome de Fe est en rouge.

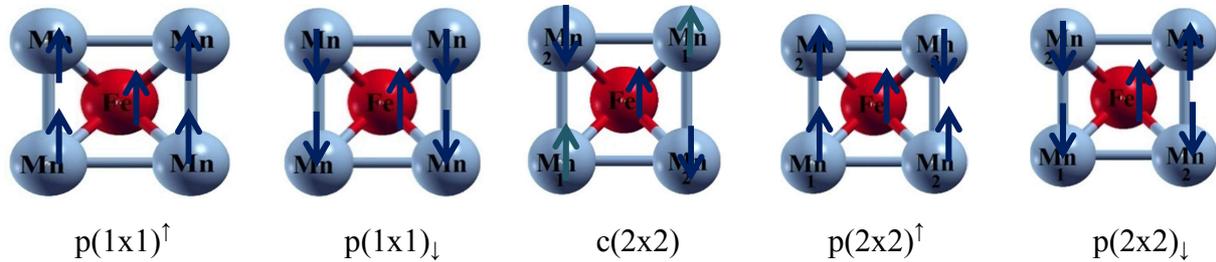


Figure. 3.4 : Les configurations magnétiques possibles à la surface de Mn/Fe pour les premiers, deuxième et troisième plus proches voisins de l'atome de fer.

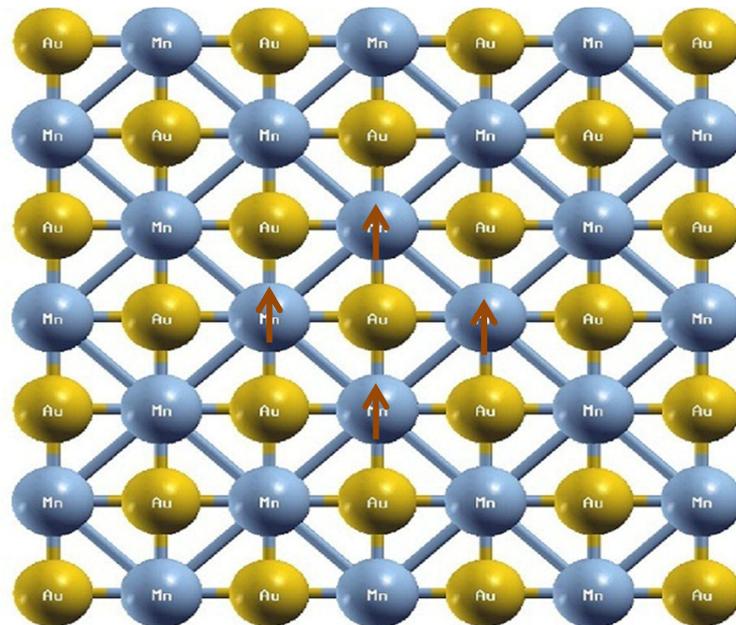


Figure. 3.5 : Reconstruction à la surface du substrat de l'Au, les atomes de Mn se situent au milieu de quatre atomes de l'Au et la configuration magnétique favorable est celle de $p(1 \times 1)$.

Le chrome et le manganèse ont une structure cubique centrée avec un paramètre de maille $a \approx 2.85 \text{ \AA}$. La reconstruction à la surface suit une rotation de 45° formant ainsi des bases carrées de côté $a = 2.89 \text{ \AA}$ pour le substrat d'or et $a = 2.88 \text{ \AA}$ pour l'oxyde. Les atomes de (Cr, Mn) du premier plan vont prendre des sites au milieu des carrés à une distance qui sera déterminée par le processus de relaxation. Dans ce cas, la configuration $p(1 \times 1)^\uparrow$ est apparue pour la première monocouche et la configuration est inversée pour le deuxième plan donnant la configuration $p(1 \times 1)_\downarrow$, (voir figure. 3.5). Le mode de croissance continue plan par plan jusqu'au nombre de couches désirées.

3.4. Résultats et discussion

3.4.1. Système Cr/Ag(001)

- **Propriétés structurales**

Dans cette section, nous étudions le cas de trois monocouches de chrome épitaxiales couche par couche sur un substrat semi infini d'Ag (001). Egalement, nous considérons que le chrome se dépose sur l'Ag sans défauts. L'argent cristallise dans la structure fcc avec un paramètre de maille $a_{Ag} = 4.086 \text{ \AA}$ et son évolution dans la direction (001) mène à un paramètre de réseau dans le plan $a_{Ag(001)} \Rightarrow \frac{1}{2}[110]_{Ag}, a_{Ag} / \sqrt{2} = 2.89 \text{ \AA}$. En conséquence, il est choisi comme substrat en raison de bon accord entre les paramètres des 2 réseaux (lattice matched). Cet intérêt est conduit par l'immiscibilité de la phase entre le chrome et l'argent. A deux dimensions (2D), les distances inter atomiques de chrome sont imposées par les atomes d'argent. Pour une relaxation des plans atomiques, nous avons effectué une optimisation de l'énergie totale du système en fonction des facteurs (d_n/f_0) , d_n sont les distances recherchées avec $n = 1, 2, 3$. Le paramètre f_0 est la distance de référence prise dans tous les systèmes égale à 2.043 \AA . En respectant les distances inter planaires et le processus de relaxation des systèmes $Cr_n/Ag(001)$, les résultats sont reproduits dans la figure (3.6). La distance optimale entre le 1^{er} plan du chrome et l'argent à l'interface est trouvée être égale à $d_{Ag-Cr1} = 1.77 \text{ \AA}$. Ce système constitue la première étape du dépôt et la formation de la première couche de chrome. La distance interatomique Cr-Cr apparaît légèrement plus grande par rapport au paramètre de maille dans la structure en bulk (2.88 \AA). La distance Cr-Ag est supérieure à $[\frac{1}{2}a_{Cr}]$ induite par la répulsion des plans atomiques à l'interface sous l'effet du légère polarisation du plan d'Ag.

Au dépôt de la deuxième couche de chrome, le processus d'optimisation de l'énergie donne une distance séparant le 1^{er} et le 2^{ème} plan du Cr par $d_{Cr1-Cr2} = 1.78 \text{ \AA}$. Elle correspond donc à une augmentation de paramètre de maille de 19% par rapport à la valeur de chrome massif.

Dans le système $Cr_3/Ag(001)$, la distance optimale entre le 2^{ème} et le 3^{ème} plan du Cr est donnée par $d_{Cr2-Cr3} = 1.83 \text{ \AA}$, la première maille conventionnelle d'un bct est ainsi complétée, ses axes sont parallèles aux axes de symétrie. Elle apparaît clairement avec un facteur de tétragonalité $c/a = 1,25$. L'énergie totale n'est minimale que lorsque les plans du film prennent des positions d'équilibre.

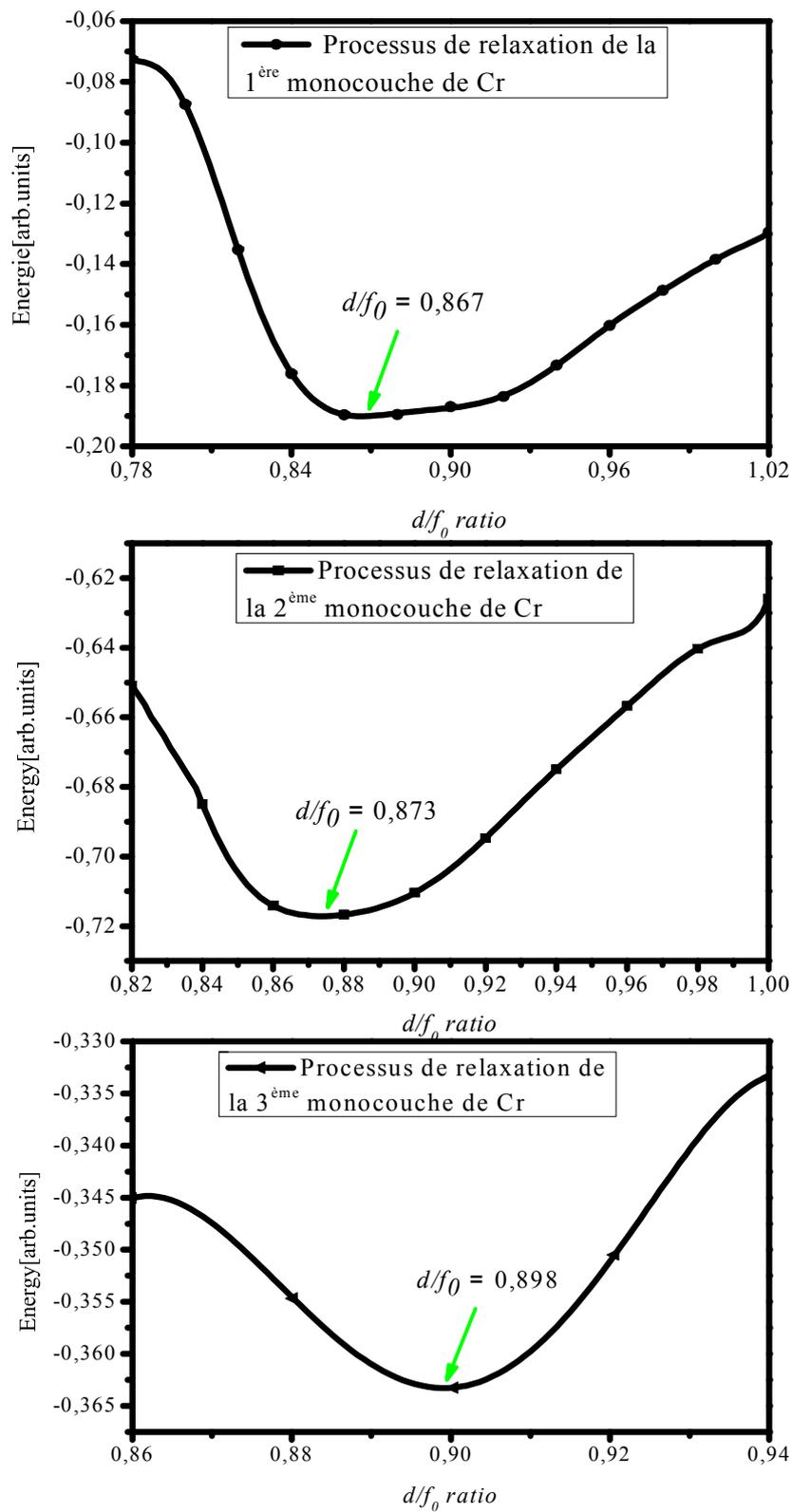


Figure. 3.6 : Le processus d'optimisation de l'énergie de (a) $Cr_1/Ag(001)$, (b) $Cr_2/Ag(001)$ et (c) $Cr_3/Ag(001)$. Les cercles, carrés et triangles noirs sont les valeurs calculées quant à la ligne continue présente le polynôme de fit.

Notre résultat de la structure cristalline est en bon accord avec d'autres travaux expérimentaux et théoriques [110,115]. Koichiro Yaji et al. [116] ont étudié la croissance par épitaxie de Fe sur le Cu (001). Ils ont introduit une très fine couche de chrome et ils ont pu constater que les propriétés magnétiques du film de fer sont rigoureusement modifiées. Ils ont trouvé que le film de fer cristallise dans la structure bcc pour plus de 11 monocouches, car les constantes de réseau de Cr et Fe sont comparables. La structure du film de Mn ressort en tétragonal centré. Généralement, les métaux de transition de milieu de série, tel que : Cr, Mn et Fe ont une structure d'un bcc. Lorsque on les dépose sur les métaux nobles, tel que : Cu, Ag et Au de structure cristalline fcc, on obtient une structure bct et/ou bcc. Notre film de chrome cristallise en bct avec les paramètres de réseau $a = 2.88 \text{ \AA}$ et $c/a \approx 1,25$.

- **Propriétés magnétiques**

Le point de départ de l'étude des propriétés magnétiques dans les systèmes $\text{Cr}_n/\text{Ag}(001)$ est basé sur le calcul des densités des états des trois plans atomiques en question. Les résultats obtenus sont reportés dans le tableau (tableau.3.1). D'après les figures (3.7 à 9), on constate que les propriétés magnétiques proviennent essentiellement de la bande d . Nous avons calculé les différents moments magnétiques par atome pour chaque plan atomique du système. Pour cela, nous avons utilisé les équations (3.1 et 3.2).

Tableau.3.1 : Les moments magnétiques calculés en unité de magnéton de Bohr (μ_B) pour chaque plan de chrome à la surface libre. Ici, nous avons désigné les indices (I-1) pour la couche d'argent à l'interface et (I + d) la $d^{\text{ième}}$ couche de chrome.

Couches de Cr	Ag(I-1)	Cr (I)	Cr (I+1)	Cr (I+1)
Une couche	- 0.11187	- 4.16155		
Deux couches	- 0.08054	- 3.15393	+ 3.71907	
Trois couches	+ 0.06053	+ 3.08358	- 2.78938	+ 3.78902

Nous avons trouvé que les résultats des moments magnétiques sont en bon accord avec les résultats expérimentaux [110]. D'après le tableau (3.1), on constate que le plan d'interface de l'Ag a subi une légère polarisation suite au dépôt de la première couche de chrome, cette polarisation est due à l'hybridation des orbitales de Cr avec celles de Ag. Le plan d'interface de l'argent est caractérisé par un petit moment magnétique de l'ordre de $0,1\mu_B$. Le moment magnétique du film du chrome indique une augmentation par rapport à celui de l'état massif. Le moment magnétique de la monocouche de Cr à la surface est égal à $4.46 \mu_B$ [110]. Dans cette étude, nous avons effectué un calcul par les 2 méthodes la LMTO et FLAPW et nous

avons trouvé un moment magnétique de $4.16 \mu_B$ et $4.30 \mu_B$, respectivement. Le plan de chrome vu sa position à l'interface, ressent deux milieux différents (le substrat et le vide). Cette différence est due au fait que les atomes du Cr sont soumis simultanément à l'effet de surface et celui d'interface. Ces deux effets conjugués conduisent à l'augmentation du moment magnétique (voir figure. 3.7).

Le dépôt du deuxième plan de chrome a induit des changements dans les propriétés magnétiques. Cependant, le moment magnétique du plan d'argent à l'interface se polarise légèrement. Le changement d'état de la structure cristalline de Cr a induit des modifications dans les propriétés magnétiques. Le moment magnétique de Cr à la surface libre est le plus important que celui de l'interface. Dans ce système, l'orientation des moments de l'argent est due au magnétisme dominant de Cr. La polarisation de l'argent à l'interface est très petite ($\mu_{Ag}=0.08 \mu_B$), (voir tableau 3.1). Le plan de Cr à l'interface ne 'ressent' pas la même chose comme dans le système $Cr_1/Ag(001)$. Ici, il est séparé de la surface par un plan de Cr, et les moments magnétiques sont orientés en sens opposé. Le film de Cr favorise donc un couplage ferrimagnétique, (voir figure. 3.8). Cependant, l'augmentation de moment magnétique à la surface est due à la réduction du nombre de coordination des atomes de la surface libre [117].

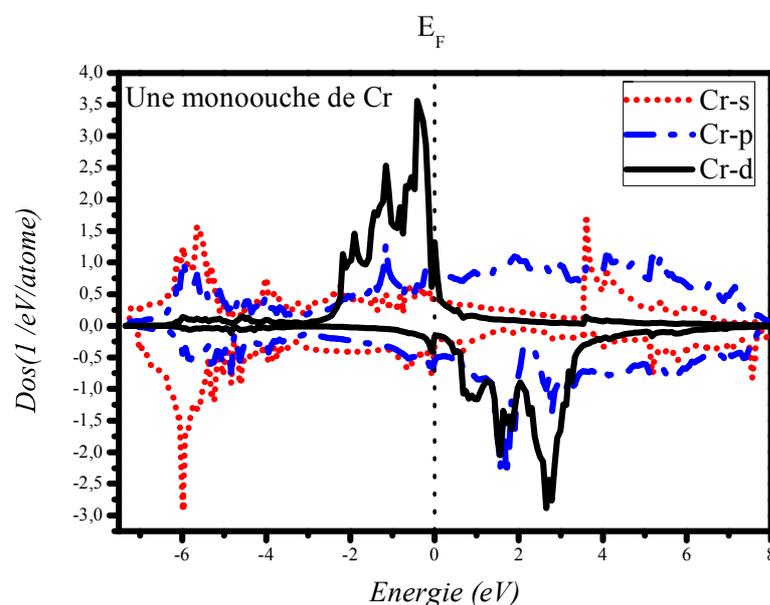


Figure. 3.7 : Les densités locales des états des spins up et down pour le plan de chrome à la surface libre. La densité totale est la somme des contributions $s + p + d$.

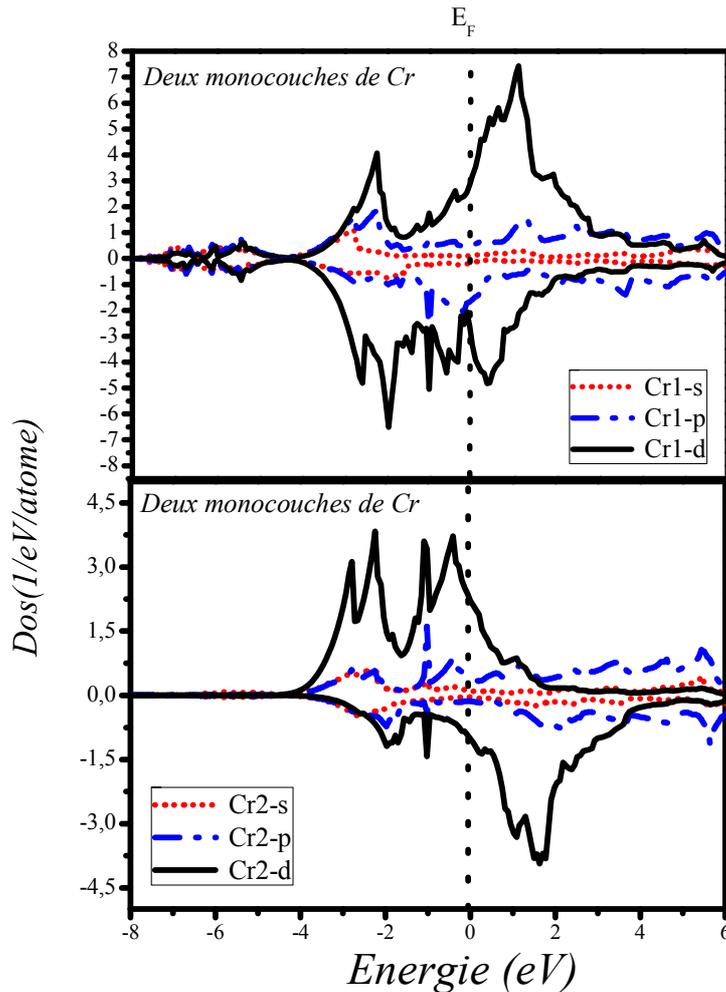


Figure. 3.8 : Les densités locales des états des spins pour deux plans de chrome. La phase antiferromagnétique apparait par l'ajout du deuxième plan de chrome les courbes des DOS sont antisymétriques.

A la troisième couche de Cr, la première maille conventionnelle s'est complétée, on constate que la polarisation de l'argent à l'interface diminue de plus en plus lorsque le nombre de plans atomiques ' n ' de chrome augmente (tableau (3.1)). En revanche, le moment magnétique du plan intermédiaire a diminué. Cela est dû au fait que ce plan est confiné entre deux plans de même nature, (voir figure. 3.9). La rupture de symétrie aux interfaces de ces systèmes contribue directement aux caractéristiques des propriétés magnétiques, tel que l'augmentation des moments magnétiques.

L'augmentation des moments magnétiques a été prévue par les calculs théoriques effectués par Jian-Tao Wang et al. [118] et aussi par des observations expérimentales [119]. Le moment magnétique de chrome est affecté par la réduction de nombre de coordination. Cela induit un comportement magnétique intéressant qui peut être exploité dans la

spintronique vu qu'il présente un couplage ferromagnétique de configuration $p(1 \times 1)^{\uparrow}$ dans le plans de la couche et un couplage ferrimagnétique entre les plans.

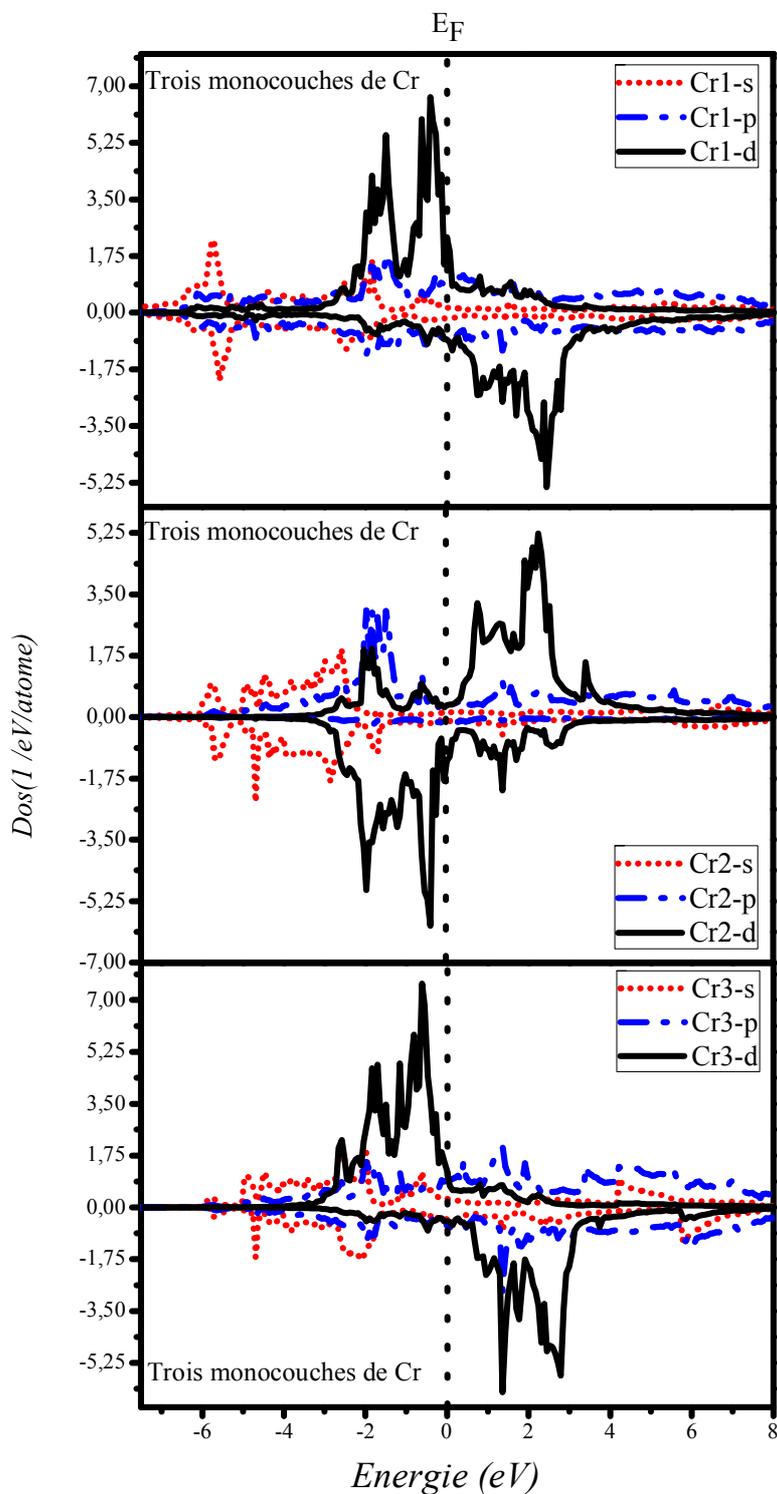


Figure. 3.9 : Les densités locales des états des spins up et down pour trois plans de chrome.

- **Propriétés magnéto-optiques**

Pour l'étude du comportement magnéto-optique des systèmes $Cr_n/Ag(001)$, nous avons calculé le spectre des rotations Kerr θ_k dans sa géométrie polaire (P-MOKE) en fonction des énergies des photons incidents élargies jusqu'à 10 eV. Les rotations correspondantes sont illustrées dans la figure (3.10).

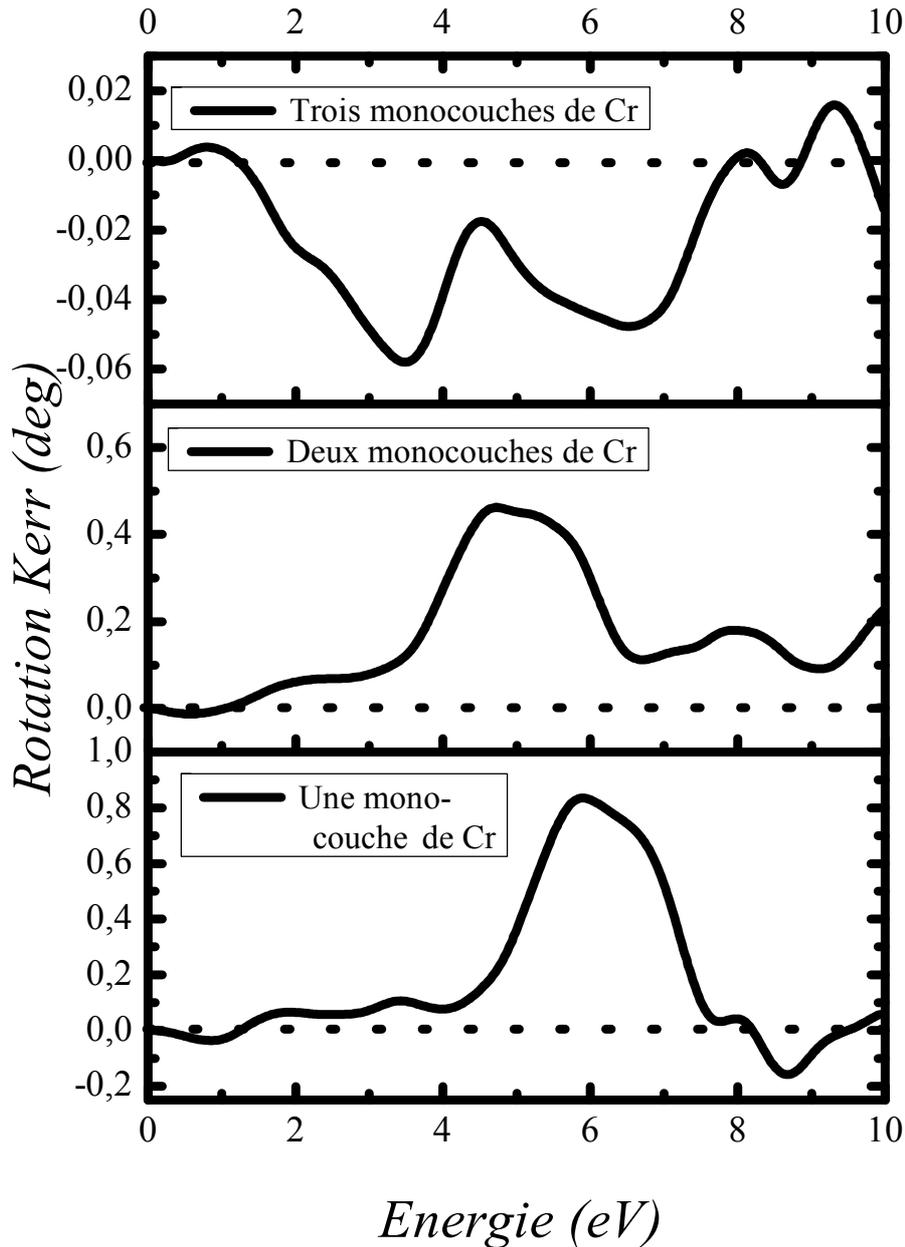


Figure.3.10 : Les spectres de rotations Kerr calculés en énergie des systèmes $Cr_n/Ag(001)$.

La réponse magnéto-optique dans le cas d'une monocouche de chrome est caractérisée par un seul pic positif qui se situe dans le domaine ultraviolet à une énergie $E = 5.88$ eV. La valeur de la rotation Kerr correspondante à ce pic est $\theta_k \sim + 0,8^\circ$. Cette rotation est diminuée pour deux monocouches de chrome. Le pic se trouve dans le domaine des radiations UV décalé vers les énergies plus petites par rapport au système précédent. L'énergie de ce pic est $E=4.60$ eV et la valeur de la rotation Kerr correspondante est $\theta_k = + 0,47^\circ$. Les pics pour les basses énergies sont négligés car nous n'avons pas pris en compte le terme de Drude pour les basses fréquences. La diminution dans le spectre des rotations Kerr peut être expliquée par la formation de la phase ferrimagnétique entre les deux plans de chrome. Le moment magnétique global par cellule est diminué, mais l'anisotropie magnétique apparaît perpendiculaire.

Le spectre des rotations Kerr pour les trois monocouches est caractérisé par deux pics négatifs. Le premier se situant dans le domaine visible avec une énergie $E = 3.51$ eV, la valeur de la rotation Kerr correspondante est $\theta_k = - 0.06^\circ$. Le deuxième pic a lieu dans le domaine ultraviolet à une énergie $E = 6.58$ eV, avec θ_k correspondante égale à $- 0.048^\circ$. Les pics positifs sont très petits par rapport aux deux pics négatifs. Dans ce système on va s'intéresser uniquement au premier pic en raison de la réponse magnéto-optique importante qu'il apporte. Pour expliquer l'origine microscopique des différents pics dans les spectres de l'effet Kerr caractérisant les systèmes étudiés, nous avons basé notre discussion sur une analyse des densités d'états partielles projetées. Les résultats pour les contributions inter bandes des éléments du tenseur de conductivité optique σ_{xx}^I et σ_{zz}^I du chrome sont obtenus par l'utilisation de la méthode SPR-LMTO-ASA. Ici, il est indiqué indirectement que l'axe de magnétisation (M) est selon l'axe des z et on a vérifié par la suite cette prédiction par le calcul des éléments du tenseur de conductivité optique σ_{xz} et σ_{yz} que nous avons trouvé nuls. Le tenseur de conductivité optique prend alors la forme de l'équation (2.35). Cependant, il convient de noter que ceci est expliqué seulement pour les contributions inter bandes. Pour $\omega = 0$, σ_{xx}^I et σ_{zz}^I peuvent différer de manière appréciable si les contributions intra bandes sont aussi impliquées [73].

L'identification de l'origine microscopique des différents pics apparaissant dans les spectres des rotations Kerr n'est pas évidente. Dans ce présent document, nous nous sommes appuyés sur une méthode de calcul des énergies des transitions électroniques entre les états initiaux et les états finaux sur la base des figures (3.7-9). Nous avons calculé les énergies des transitions électroniques entre les états initiaux et les états finaux et leurs localisations dans la

zone de Brillouin. Alors, le premier pic est produit dans le plan chrome par les transitions Cr_1 : $s^\uparrow \rightarrow p^\uparrow$ et $s_\downarrow \rightarrow p_\downarrow$ et $s^\uparrow \rightarrow p_\downarrow$.

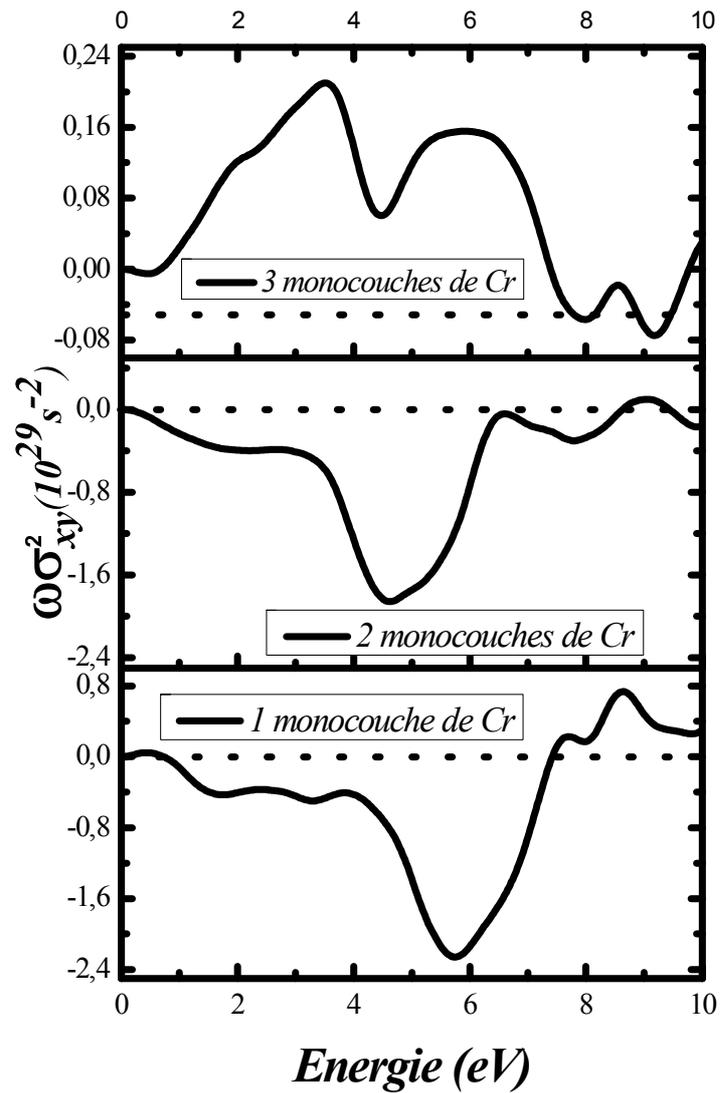


Figure. 3. 11 : L'absorption calculée des éléments non-diagonaux du tenseur de la conductivité optique du film de chrome.

Ces transitions provoquent une structure dans le spectre des rotations Kerr et le pic apparaît clairement dans un domaine bien particulier de la lumière qui caractérise le matériau en question. Par la déposition de deux plans de chrome, la réponse magnéto-optique a tendance à se décaler vers les énergies plus petites. Le seul pic caractérisant ce système trouve son origine dans les transitions $Cr_1: s^\uparrow \rightarrow p^\uparrow$ et $d_\downarrow \rightarrow p_\downarrow$ et $s^\uparrow \rightarrow p_\downarrow$ et $Cr_2: p^\uparrow \rightarrow d_\downarrow$. Ces transitions contribuent tous ensemble à la formation du pic apparaissant dans le spectre des rotations Kerr. La réponse dans le cas de deux plans de chrome aura lieu dans le domaine UV se rapprochant au domaine visible. Quant au film ultramince de trois monocouches de chrome, la réponse spectrale a eu lieu dans le domaine visible. Elle est causée par des transitions interbandes dans chaque plan de chrome, à savoir : (1)- $Cr_1: p^\uparrow \rightarrow d^\uparrow$, $p_\downarrow \rightarrow d_\downarrow$ et $s^\uparrow \rightarrow p_\downarrow$, (2)- $Cr_2: s^\uparrow \rightarrow d^\uparrow$, $d^\uparrow \rightarrow p^\uparrow$ et (3)- $Cr_3: d_\downarrow \rightarrow d^\uparrow$.

Les investigations sur σ_{xy}^2 sont applicables dans quelques cas pour calculer le spectre des rotations Kerr θ_k correspondant [120]. Les éléments non diagonaux du tenseur de conductivité optique $\omega\sigma_{xy}^2$ sont directement reliés aux transitions inter bandes microscopiques, ils sont proportionnels à la différence dans le taux d'absorption de la lumière polarisée circulairement droite et gauche. Leur signe est directement lié à la polarisation de spin des états responsables des transitions inter bandes produisant des structures dans le spectre de $\omega\sigma_{xy}^2$, (voir figure. 3.11).

3.4.2. *Système Mn/Ag(001)*

- ***Propriétés structurales***

Un grand intérêt a été focalisé sur le mode de croissance épitaxiale du film de manganèse. L'idée est de produire une structure métastable avec des propriétés prometteuses. Généralement, les films de manganèse (jusqu'à 15 monocouches sur l'argent) adoptent une structure (bct) tétragonale centrée avec $c/a = 1.13$ [121]. Afin d'étudier les propriétés surfaciques, nous avons considéré une, deux et trois monocouches de manganèse. Dans une première étape, le processus de relaxation des plans atomiques donne une position d'équilibre pour la couche de Mn_1 . La figure (3.12) montre les courbes des énergies du système en fonction du rapport de (d/f_0) . Alors, la première monocouche se stabilise à une distance de $\sim 1,81$ Å par rapport au plan d'argent à l'interface. La deuxième monocouche de Mn se situe plus près de la première monocouche avec une distance de $\sim 1,79$ Å. La troisième monocouche est à la distance $\sim 1,61$ Å par rapport à la 2^{ème} monocouche de Mn. Sous l'effet du substrat d'argent, le manganèse a une structure tétragonale centrée avec $c/a = 1,18$ et selon une orientation de 45° par rapport au plan d'argent. Cette déformation est accompagnée par

une amélioration de son comportement magnétique [122]. Cette morphologie de croissance a été examinée par Steadman et al. [123] dans les films de Cr sur Ag(001) [110]. Jian-TAO et al. [124] ont calculé les propriétés structurales des multicouches de (Cr, Mn, Fe)/Ag par la méthode FP-LAPW. Ils ont trouvé que les structures ont un comportement magnétique différent. Jonker et al. [125] ont étudié expérimentalement des films de Mn et les super-réseaux de Mn/Ag sur Ag(001). Ils ont constaté que les films de Mn ont un paramètre de maille de 2,89Å. Le désaccord de maille entre l'argent et le manganèse est de 0,03%. Cependant, les atomes de la monocouche de Mn₁ sur Ag(001) prennent des sites dans un réseau carré à 2 dimensions. Le processus d'optimisation d'énergie des films ultra-minces de Mn mène à une phase de bct caractérisée par $a=b=2,88\text{Å}$, $c=(3.40\pm 0.02)\text{Å}$ et $c/a=1,18$. C'est une conséquence directe de la différence dans le facteur de forme atomique et la différence entre les propriétés élastiques des deux matériaux [123]. Les résultats impliquent une augmentation des distances intermédiaires entre les couches de Mn. Les distances intermédiaires indiquent une augmentation du volume atomique qui contribue à une augmentation des moments magnétiques atomiques [124, 126]. Le film de manganèse a un axe de facile aimantation selon l'orientation (001), confirmé par un calcul de l'anisotropie magnétique [127].

D'autre part, l'équation d'état de Birch-Murnaghan via le code Wien2k est utilisée pour obtenir le volume d'équilibre du film de Mn. Le processus d'optimisation des paramètres de maille en fonction du volume atomique de la supercellule Mn/Ag(001) donne de nouvelles valeurs pour ($a=b$, c et c/a), (voir figure. 3.13). Le résultat prouve que le film de Mn cristallise dans la structure bct avec les nouveaux paramètres $a=2,73\text{Å}$ et $c/a=1,24$. Ici, nous pouvons récapituler que les comportements magnétiques et magnéto-optiques de ces deux structures différentes ne peuvent pas être les mêmes. Nous obtenons donc deux structures de bct pour le film de Mn : la première est caractérisée par des paramètres de $a=2,88\text{Å}$, $c=3,40\text{Å}$, et la seconde structure est caractérisée par $a=2,73\text{Å}$ et $c=3,38\text{Å}$. Nous allons associer différents noms pour ces 2 structures à savoir : la phase α -bct_Mn et β -bct_Mn, respectivement.

Dans ces films ultraminces, la croissance cristalline le long de la direction (001) est supposée être couche par couche parfaite sur le substrat d'argent. Ce mode de croissance est identique à celui du film de chrome. Par conséquent, pas d'inter diffusion entre le film et le substrat.

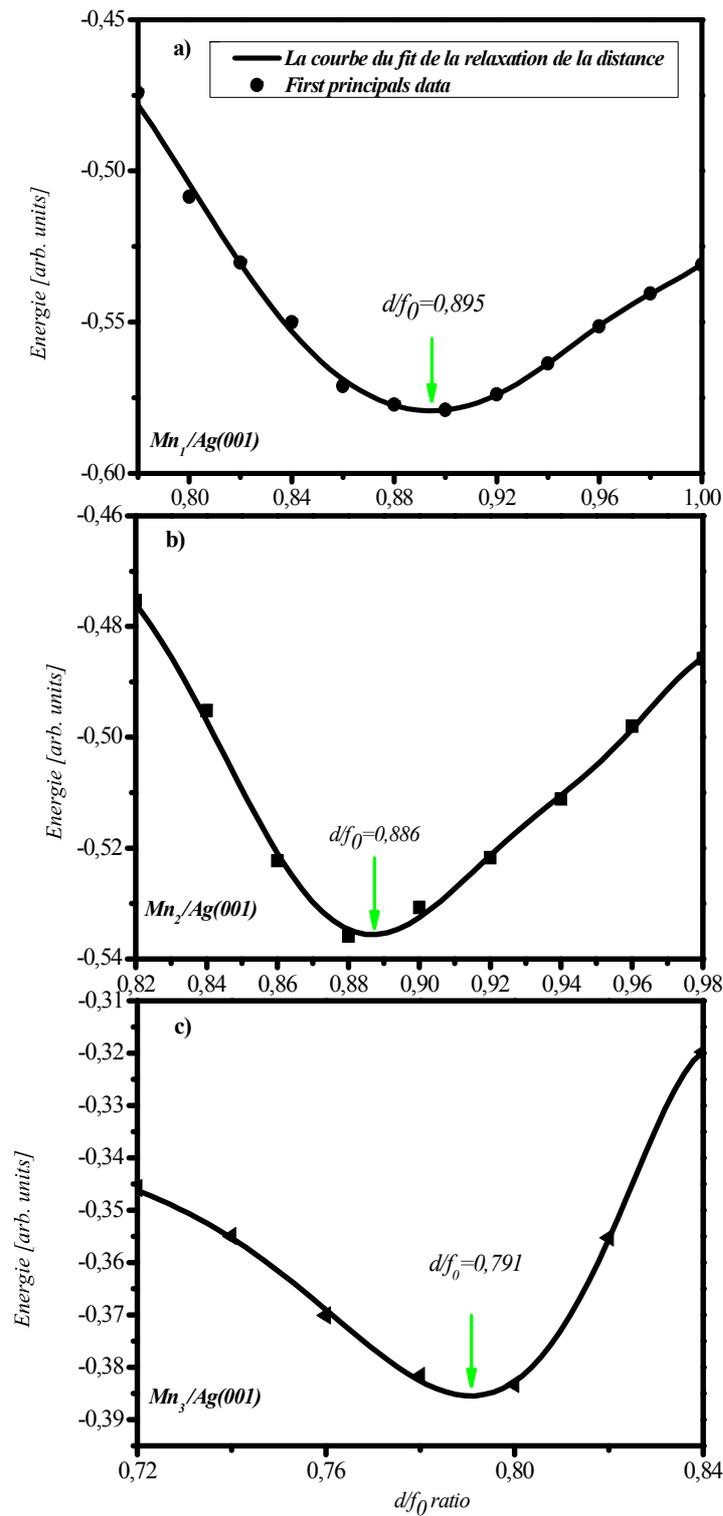


Figure.3.12 : Le processus d'optimisation de l'énergie de (a) $Mn_1/Ag(001)$, (b) $Mn_2/Ag(001)$ et (c) $Mn_3/Ag(001)$. Les cercles, carrés et triangles noirs sont les valeurs calculées, la ligne continue représente le polynôme de fit.

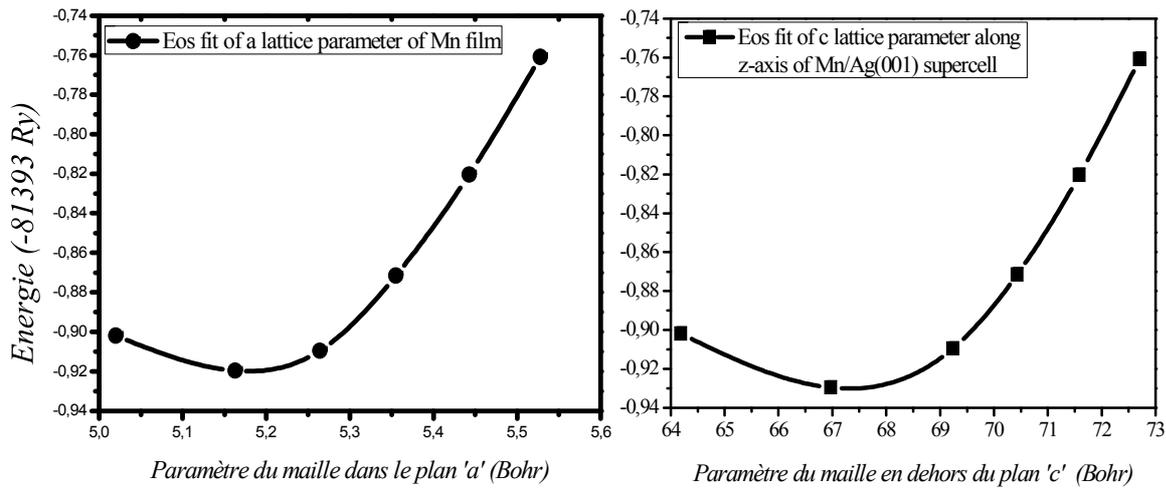


Figure. 3.13 : Le processus d'optimisation des paramètres de maille en fonction du volume atomique de la supercellule Mn/Ag(001). Les cercles et les carrés noirs sont les valeurs calculées ; la ligne continue représente le polynôme de fit.

- **Anisotropie magnétique de film de Mn**

Cette partie est particulièrement intéressante puisque la règle de Hund montre que le moment magnétique de l'atome libre de Mn devrait être égal à $5 \mu_B$ [128]. Habituellement, l'état ferromagnétique ou ferrimagnétique pour une haute densité de spin est prévu pour Mn. Egalement, le changement de l'orientation de l'aimantation est induit par les contraintes élastiques dans le cristal [129]. Les résultats des calculs sont récapitulés dans le (Tableau.3.2) et il est clair que le film α -bct_Mn préfère un couplage ferromagnétique entre les plans de Mn. Le moment magnétique calculé sur la surface libre du système $Mn_n/Ag(001)$ montre une augmentation de moment magnétique de $3,72 \mu_B$ qui est en accord avec les résultats expérimentaux [124,130].

Tableau. 3.2: Moments magnétiques calculés (couche par couche) par les deux codes LMTO et FPLAPW (en unité de μ_B par atome) du système $Mn_n/Ag(001)$ avec ($n=1, 2, 3$ couches) du film α -bct_Mn. Nous avons adopté (I-1) et (I) pour indiquer le plans d'interface Ag et Mn, respectivement. L'indice (I + d) est la $d^{ième}$ couche de Mn.

Système	Plans	$M_s + M_L$ (LMTO)	$M_s + M_L$ (FP-LAPW)
Mn₁/Ag(001)	Ag (I-1)	+ 0.027	+ 0.036
	Mn (I)	+ 4.122	+ 4.018
Mn₂/Ag(001)	Ag (I-1)	+ 0.049	+ 0.035
	Mn (I)	+ 3.550	+ 3.130
	Mn (I+1)	+ 3.870	+ 3.558
Mn₃/Ag(001)	Ag (I-1)	+ 0.052	+ 0.035
	Mn (I)	+ 3.779	+ 3.440
	Mn (I+1)	+ 2.986	+ 1.832
	Mn (I+2)	+ 3.724	+ 3.424

Le moment magnétique de la monocouche de Mn sur Ag est de $4.12 \mu_B$. Cette valeur est en accord avec le moment magnétique d'un atome libre ($\sim 5 \mu_B$). Ceci est dû à la grande distance d'interface $d_{\text{Mn-Ag}}$ qui est supérieure à $(a_{\text{Mn}})/2$ dans la phase δ de Mn [131]. Ce moment magnétique induit une faible polarisation magnétique pour la couche d'Ag à l'interface ($0.03\mu_B$) qui est due à l'hybridation des orbitales entre le substrat et le film [7,132]. Dans le système $\text{Mn}_2/\text{Ag}(001)$, la croissance pseudomorphique du deuxième plan de Mn affecte le moment magnétique à la surface. En comparaison avec la première monocouche, l'ajout de la deuxième monocouche de Mn induit respectivement, une diminution de 13,59% et de 6,07% de moments magnétiques pour la première et la deuxième monocouche de Mn. Figure (3.14) montre les densités d'états (DOS) de un, deux et trois monocouches de Mn, nous pouvons voir que la largeur de bande est réduite.

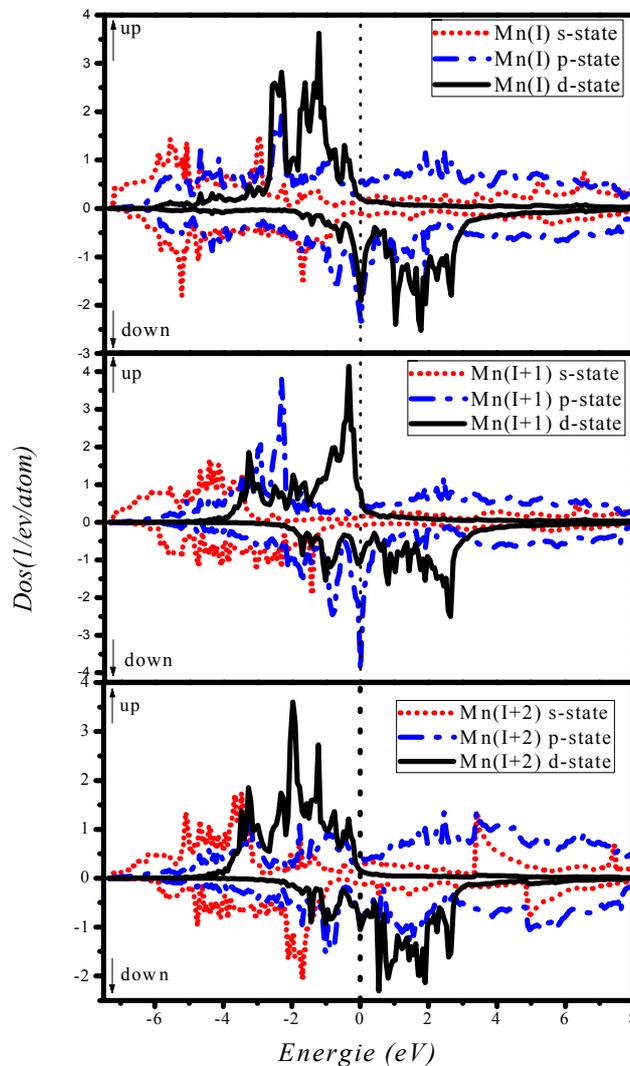


Figure. 3.14 : Les densités locales d'états des spins up et down pour trois plans de manganèse dans la phase alpha déterminées par la LMTO.

En outre, la grande différence d'énergie entre la densité d'états projetée pour le spin(\uparrow) et le spin (\downarrow) mène à un grand moment magnétique de $4,12 \mu_B$ pour une seule monocouche. Cependant, nous obtenons une bande plus large et le moment dû spin est réduit dans le cas de deux monocouches de Mn. Par conséquent, le moment magnétique est réduit à ($3,87 \mu_B$). Dans le cas de trois monocouches de Mn, le moment magnétique à la surface libre tend toujours à garder la plus grande valeur ($3,72 \mu_B$). Ce système montre une réduction du moment magnétique $\sim 3 \mu_B$. Cela, peut être expliqué par sa position entre deux plans de Mn. Le transfert de charge augmente entre les états p-d.

Les grands moments magnétiques sont obtenus, expressément pour des sites à la surface libre qui ont une réduction de nombre de coordination. Ceci est dû au grand nombre d'états inoccupés disponibles dans la couche « d » dans le régime de basse dimensionnalité [133]. Comme il représenté dans la figure. (3.14), le calcul de la densité d'états projetée (P-DOS) du film de Mn dans sa phase alpha montre un couplage ferromagnétique entre les plans de Mn, ceci est vérifié par le calcul des moments magnétiques de trois monocouches, voir (Tableau. 3.1). Fujii et al. [134] ont montré que le manganèse préfère l'état de faible densité de spin pour un paramètre de maille compris entre 2.68\AA et 2.95\AA . Schieffer et al [135] ont montré que le film de Mn se dépose parfaitement sur l'argent et ils révèlent que dans cette structure, la couche 3d de Mn présente un spin-flip similaire qui induit un moment magnétique local de $4\mu_B$ environ. Nos résultats sont en accord avec les travaux ultérieurs [118, 124, 127, 134-136].

Tableau.3.3: Moment magnétique (en unité de μ_B par atome) pour les systèmes $Mn_n/Ag(001)$ dans la phase bêta avec ($n=1, 2, 3$ layers) ainsi que l'anisotropie. Les calculs sont faits par la méthode FP-LAPW.

Moment Magnétique (μ_B)	Ag (I-1)	Mn (I)	Mn (I+1)	Mn (I+2)	$d_{Mn-Mn}(\text{\AA})$	L'axe de facile aimantation	Energie d'anisotropie (μeV)
1 couche de Mn	+ 0.036	+ 4.018	—	—	2.829	0. 1. 0	188.55
2 couches de Mn	+ 0.039	+ 3.106	- 3.435	—	2.792	0. 0. 1	823.42
3 couches de Mn	+ 0.052	+ 3.109	- 1.602	+ 3.096	2.732	0. 0. 1	975.18

Pour le film de Mn dans la structure bêta, les calculs sont effectués par la méthode FP-LP□W. Il est clair que les films de manganèse mènent à un couplage ferrimagnétique. Le tableau. (3.2) montre que le comportement magnétique est relié aux distances interatomiques des atomes de manganèse dans le plan. Un calcul de l'anisotropie magnétique est effectué pour un nombre de K points très important. Le critère de convergence est pris égal à 10^{-9} . Cependant, nous avons calculé l'anisotropie magnétique et l'axe de facile aimantation est trouvé selon la direction (0 1 0) pour le cas d'une monocouche de Mn. La distance

interatomique dans le plan est donnée par la valeur de $2,829\text{\AA}$ dans le cas d'une monocouche. Elle induit une valeur importante du moment magnétique de $4,018 \mu_B$.

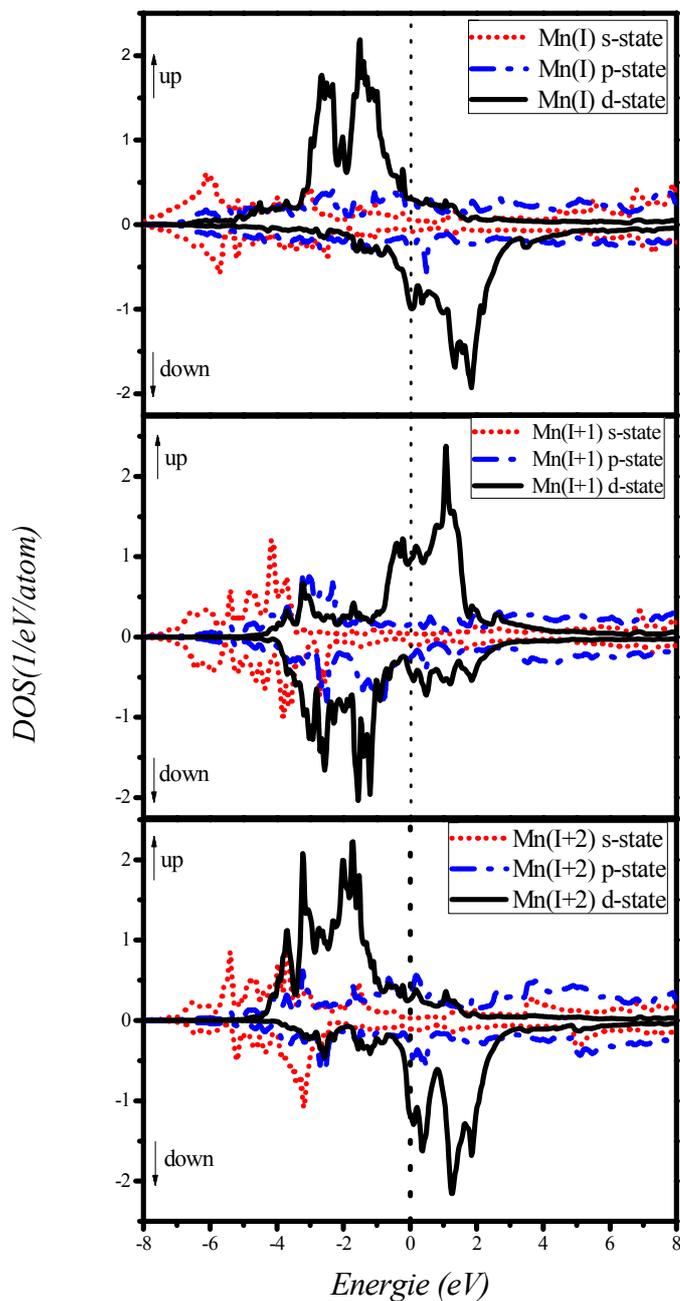


Figure. 3.15: Les densités locales des états des spins up et down pour trois plans de manganèse dans la phase bêta déterminées par la Wien2k.

□ deux monocouches de Mn, la structure commence à se compacter et la distance dans le plan s'est réduite à $2,792\text{\AA}$. Le couplage antiferromagnétique entre les plans de Mn est apparu. L'axe de facile aimantation change d'orientation de la direction $(0\ 1\ 0)$ vers la

direction (0 0 1). Les moments magnétiques sont alternés entre $+3,106\mu_B$ et $-3,435\mu_B$ qui représente une réduction de près de 10%.

Dans le cas de trois monocouches de Mn, le film de Mn présente un couplage ferrimagnétique. Le moment magnétique à la surface libre a donné une valeur de $3.096\mu_B$ qui présente une réduction de 22,9% comparés au cas d'une seule monocouche. Ces résultats sont récapitulés dans les calculs de P-DOS; voir (figure. 3.15).

Certainement, l'empilement des couches supplémentaires de manganèse contribue à la stabilité de la phase magnétique du film; elle est due à la compacité des plans induisant une transition de la réorientation des spins. Nos résultats prouvent que l'état le plus stable correspond au couplage ferrimagnétique. Ce résultat de réorientation des spins est prédit par S. López-Moreno et al. [137] où ils ont étudié le comportement magnétique des atomes de Mn sur la surface de Au (111) en fonction des distances interatomiques de ces derniers. Cependant, le SRT (Spin-Reorientation Transition) est en corrélation avec l'épaisseur du film, [138-140].

L'anisotropie magnétique requiert la prise en compte du couplage spin-orbite (SO) et un nombre de points K d'une grille de $16 \times 16 \times 1$. Une migration vers une grille de $32 \times 32 \times 1$ n'affecte pas les calculs. Les résultats sont montrés dans le tableau. (3.3) et il est indiqué que l'anisotropie de manganèse est de l'ordre de μeV . Cette dernière semble être importante pour la phase ferrimagnétique. Les calculs prédisent la stabilité de cette phase qui rend le système étudié susceptible d'être utilisé dans les applications de spintronique et la récente technique d'enregistrement magnétique par les lasers femto-seconde.

- ***Propriétés magnéto-optiques***

L'effet Kerr magnéto-optique est une technique puissante pour étudier le comportement magnétique des films ultraminces. Il a été généralement appliqué en technologie de stockage magnétique de données [141,142]. De plus, des investigations théoriques sont focalisées particulièrement sur l'effet Kerr polaire. Le phénomène du couplage spin-orbite est sensible au nombre atomique « z » des matériaux en contact.

Dans un réseau les électrons qui contribuent à l'aimantation obéissent à la symétrie de réseau. Celle-ci est brisée à l'interface entre le film ultra-mince avec le substrat, elle induit alors une anisotropie magnétique uni-axiale dans le plan du film. De même, la direction de l'axe facile aimantation est déterminée par le signe de l'anisotropie de surface [139]. Des travaux ultérieurs [142, 144, 145] ont effectué des expériences par effet Kerr polaire sur les systèmes Fe/Cu(100) et de Fe/Ag(001). Ils ont constaté que l'aimantation est perpendiculaire.

Dans ce travail, nous avons calculé les spectres d'effet Kerr magnéto-optiques dans la géométrie polaire. La gamme d'énergie des photons incidents est élargie jusqu'à 10eV pour les films ferromagnétiques (α -bct_Mn) et les films ferrimagnétiques (β -bct_Mn), (voir figure.3.16). Elle apparaît dans les spectres des rotations Kerr deux pics pour chaque couche de manganèse; nous nous intéressons uniquement aux pics dans le domaine du visible. Le changement de l'effet Kerr est provoqué par la variation du moment magnétique dans les systèmes étudiés. Tableau. (3.4) donne les résultats les plus intéressants pour les spectres de Kerr des trois monocouches de manganèse. Néanmoins, quelques perceptions de l'origine des pics des rotations Kerr peuvent être obtenues dans les P-DOS. Les éléments non-diagonaux montrent une mutuelle atténuation des contributions des spins up et des spins down [136]. Les structures produites dans des spectres non-diagonaux sont liées à la polarisation de spins des états responsables pour les transitions interbandes. Il est clair qu'il existe un effet Kerr magnéto-optique significatif dans les films de manganèse. En revanche, figure. (3.16) montre seulement les transitions interbandes les plus faisables dans le domaine du visible. Toutes les structures des rotations Kerr sont calculées à l'aide du tenseur de conductivité. L'analyse de ces structures sera expliquée en inspectant les transitions interbandes dominantes dans la zone de Brillouin. Les structures de bande électroniques sont très serrées et elles rendent difficile la distinction entre les différentes bandes correspondantes aux états partiels atomiques de chaque monocouche, (voir figure. 3.17). Par conséquent, le seuil des transitions interbandes dans le système Mn₁/Ag(001) est produit à l'énergie de 1,25 eV localisé aux points de haute symétrie Z et Γ dans la zone de Brillouin (direction Z Γ).

D'après la figure. (3.17), la transition entre les bandes est située aux énergies (- 2,73 eV et +1,25 eV) montrent que l'origine du pic des rotations Kerr s'est produite à 3,98 eV. D'après les courbes de P-DOS, ces transitions correspondent à quelques transitions électroniques entre les niveaux (s, p et d) comme Mn₁: $p^{\uparrow} \rightarrow s^{\uparrow}$, $d^{\uparrow} \rightarrow p^{\uparrow}$ et $s_{\downarrow} \rightarrow p_{\downarrow}$. Pour deux monocouches de Mn sur l'argent, le pic négatif dans le domaine visible est produit par la transition interbande à l'énergie 3.08 eV. Cette transition est indirecte et elle se produit dans la direction des points de haute symétrie M vers Γ dans la zone de Brillouin. Dans l'analyse totale, les diverses transitions interbandes dominantes contribuent ainsi avec leur localisation dans la zone de Brillouin pour produire les structures importantes des spectres Kerr. Le P-DOS a indiqué que le pic négatif est à l'origine des transitions électroniques dans Mn₂: $s^{\uparrow} \rightarrow p^{\uparrow}$, $d^{\uparrow} \rightarrow p^{\uparrow}$, $p_{\downarrow} \rightarrow d_{\downarrow}$ et $s_{\downarrow} \rightarrow p_{\downarrow}$. Pour le pic négatif dans le domaine du visible dans le système Mn₃/Ag(001), la structure de bande révèle l'existence de 134 bandes serrées. Cependant, la

figure (3.17.c) montre un niveau d'énergie à $-0,38\text{eV}$ au-dessous du niveau de Fermi. D'autre part, un deuxième niveau d'énergie localisé à $+2,66\text{ eV}$ au-dessus du niveau de Fermi. Nous constatons que c'est exactement l'énergie nécessaire requise pour faire une structure dans le spectre de Kerr (pic à $3,05\text{eV}$). Ce pic peut trouver son origine dans quelques transitions électroniques comme : $\text{Mn}_3 s^\uparrow \rightarrow p^\uparrow$, $d^\uparrow \rightarrow p^\uparrow$, $d_\downarrow \rightarrow p_\downarrow$ et $p_\downarrow \rightarrow d_\downarrow$.

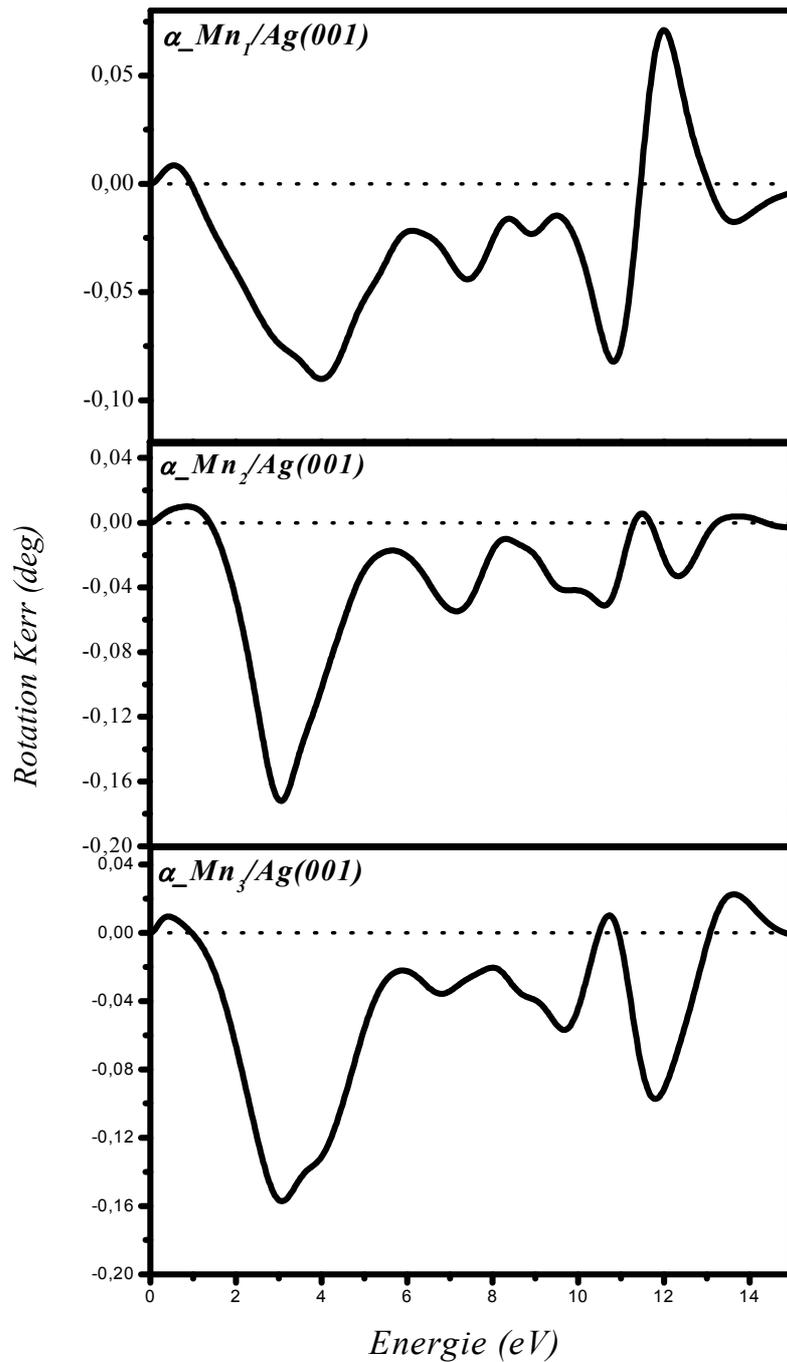


Figure. 3.16: les spectres de rotations Kerr calculées pour chaque surface libre dans le film ferromagnétique de Mn

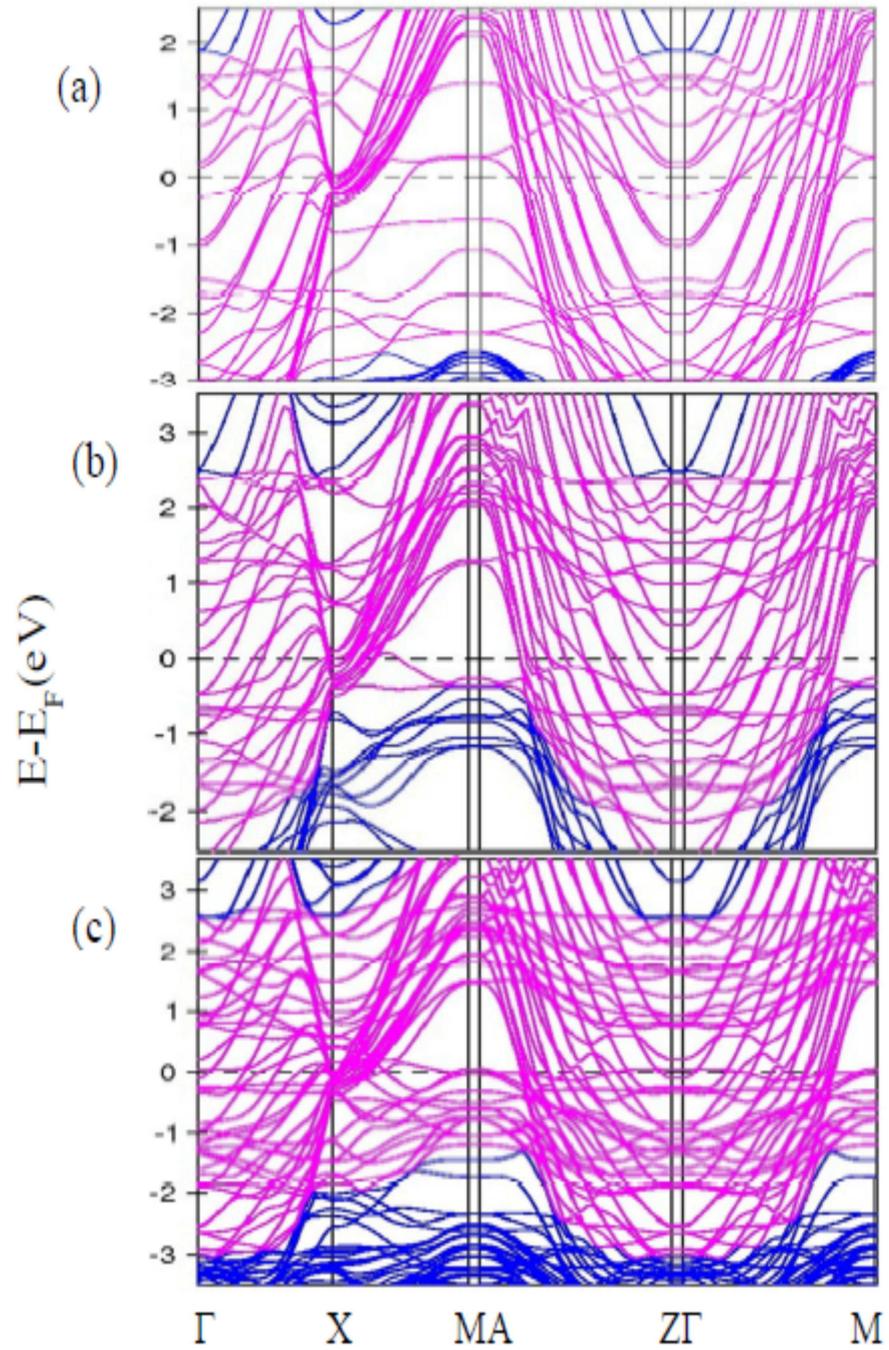


Figure. 3.17: Structures des bandes calculées par la méthode LMTO: (a) $Mn_1/Ag(001)$, (b) $Mn_2/Ag(001)$ and (c) $Mn_3/Ag(001)$ du film α -bct_Mn.

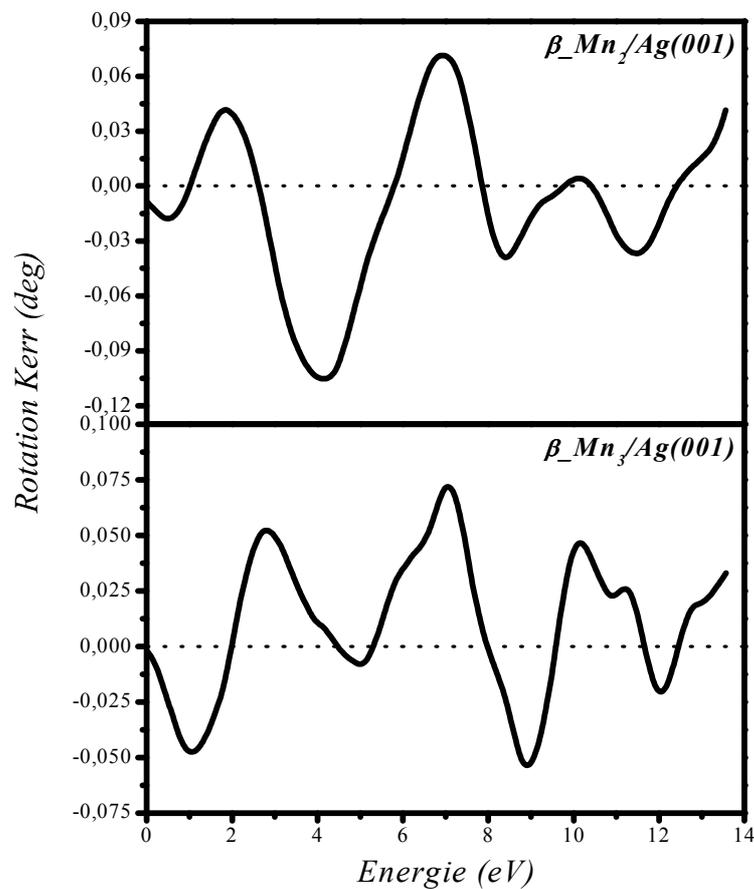


Figure. 3.18: les spectres de rotation Kerr calculées pour chaque surface libre dans le film ferrimagnétique de Mn.

Pour le film ferrimagnétique (β -bct_Mn), l'effet Kerr longitudinal est apparu pour la première couche. Le calcul d'anisotropie prouve que l'axe de facile aimantation est dans la direction (0 1 0), voir le tableau (3.3). Ce résultat a été confirmé par le calcul du tenseur de conductivité où les éléments non-diagonaux (σ_{xy}) sont égaux à zéro. Le spectre longitudinal de Kerr n'est pas montré dans cette partie et nous nous sommes intéressés uniquement au spin réorientation dans le film de Mn. La figure. (3.19) montre la structure de bande pour les spins majoritaires et les spins minoritaires. Les propriétés magnéto-optiques sont décrites correctement par la méthode FP-LAPW. Nous voudrions noter qu'il n'y a pas de résultats théoriques et expérimentaux de l'effet Kerr du système étudié. La figure. (3.18) montre les spectres des rotations Kerr significatives dans la géométrie polaire. Le split dans le spectre Kerr de $+0.07^\circ$ à -0.11° est dû au comportement ferrimagnétique du film β -bct_Mn par rapport au film de α -bct_Mn.

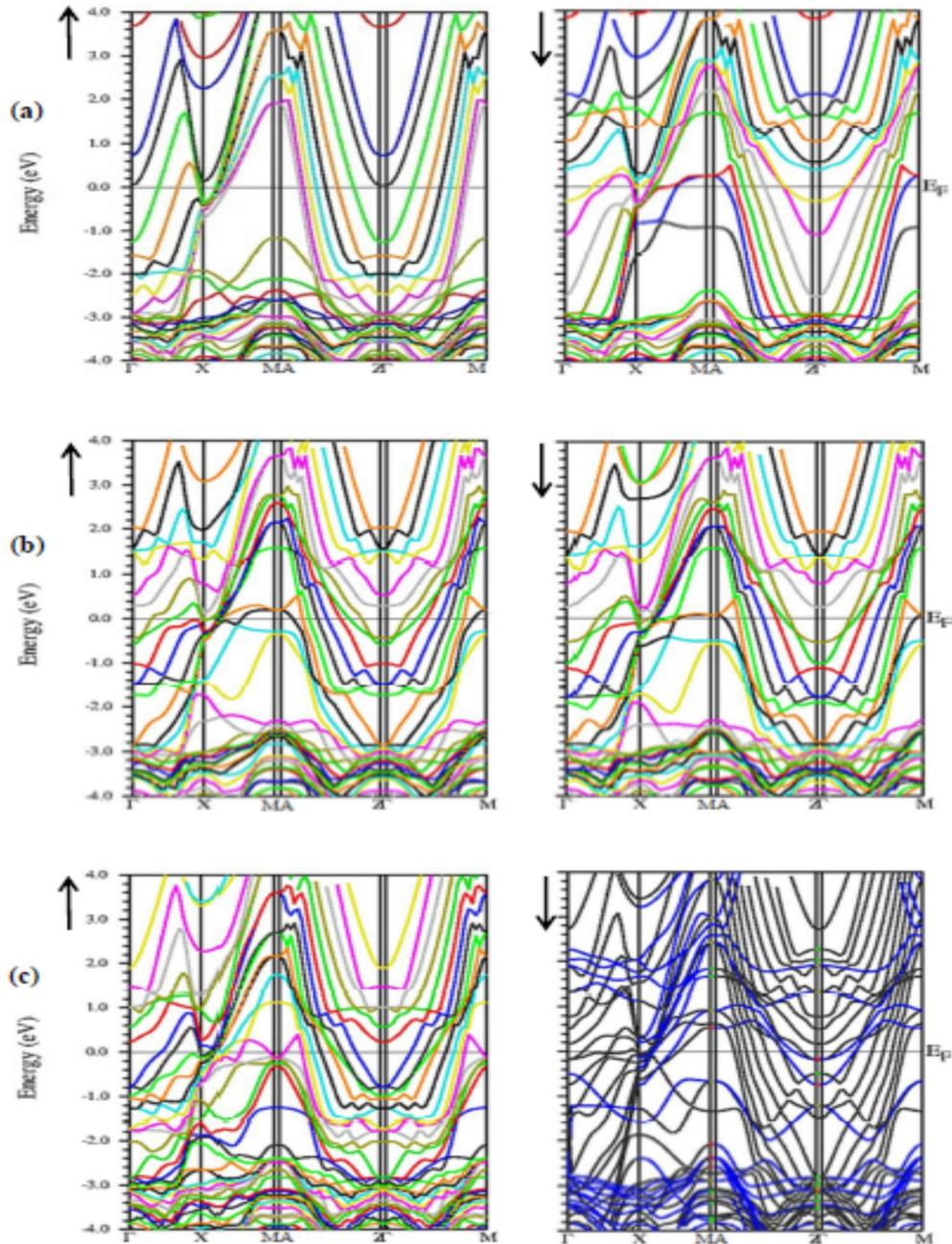


Figure. 3.19: Structures de bandes calculées par la méthode FP-LAPW pour les spins majoritaires et les spins minoritaires : (a) $Mn_1/Ag(001)$, (b) $Mn_2/Ag(001)$ and (c) $Mn_3/Ag(001)$ du film β -bct_Mn.

A la troisième couche de Mn, le système adopte un comportement ferrimagnétique. Les rotations Kerr apparaissent très faibles du fait que le moment global est réduit. Elles varient entre $+0.075^\circ$ et -0.065° qui présentent une diminution en valeurs négatives par rapport au système précédent. Les figures (3.19b et 3.19c) montrent la structure de bande des

systèmes de $Mn_2/Ag(001)$ et de $Mn_3/Ag(001)$. L'effet Kerr dans ce cas peut trouver ses origines dans les transitions interbandes. Ces dernières sont localisées dans la zone de Brillouin aux points de haute symétrie M, A, Z et Γ . D'après la figure (3.15), ces transitions sont produites entre $Mn_2(3d^\uparrow) \rightarrow Mn_1(3p^\uparrow)$, $Mn_1(3p_\downarrow) \rightarrow Mn_2(3d_\downarrow)$, $Mn_2(3p^\uparrow) \rightarrow Mn_3(3d^\uparrow)$ et $Mn_3(3p_\downarrow) \rightarrow Mn_2(3d_\downarrow)$. Ces transitions contribuent ensemble pour produire le comportement ferrimagnétique. Cette analyse est soutenue par les courbes de P-DOS pour localiser les diverses transitions interbandes qui participent aux différentes structures dans les spectres des rotations Kerr magnéto-optiques. Par conséquent, les règles de transition dipolaires peuvent trouver également les transitions interbandes permises et interdites.

Tableau. 3.4: Les rotations Kerr magnéto-optiques dans les deux phases du film de manganèse. Elles sont calculées pour une gamme d'énergie des photons incidents élargie jusqu'au 10 eV.

System	α -bct Mn ferromagnetic films		β -bct Mn ferrimagnetic films	
	$\theta_K(^{\circ})$	Energy (eV)	$\theta_K(^{\circ})$	Energy (eV)
Mn₁/Ag(001)		1. 25	--	--
	- 0. 09	3. 98		
	- 0. 08	10. 78(UV)		
Mn₂/Ag(001)	- 0. 17	3. 05	- 0. 02	0. 50
			- 0. 11	4. 12
Mn₃/Ag(001)		1. 31	- 0. 05	1. 05
	- 0. 16	3. 07	- 0. 01	5. 00
	- 0. 10	11. 79 (UV)	+ 0. 05	2. 80

3.4.3. Système Mn/Au(001)

Ce système a été étudié dans le but de vérifier l'effet du changement de substrat Ag par Au qui sont 2 métaux nobles paramagnétiques. Une amélioration des propriétés magnétiques est observée à cause de forte hybridation entre l'Au ($Z=79$) et le Mn ($Z=25$). Les résultats de relaxation de 1^{er}, 2^{ème} et 3^{ème} plan atomique de Mn par la LMTO sont schématisés dans la figure (3.20). La structure cristalline de manganèse prend la forme d'un bct (body centered tetragonal) avec « $a = b = 2.89 \text{ \AA}$ et $c/a = 1,24$ ».

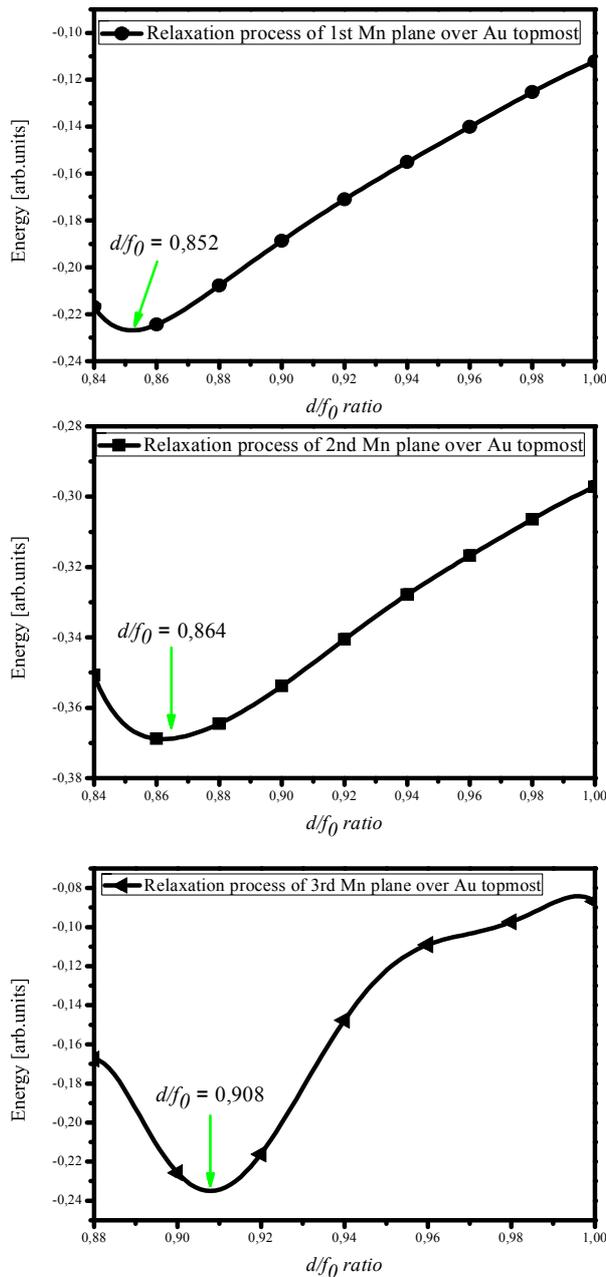


Figure. 3.20 : Le processus d'optimisation de l'énergie de (a) $Mn_1/\square u$ (001), (b) $Mn_2/\square u$ (001) et (c) $Mn_3/\square u$ (001). Les cercles, carrés et triangles noirs sont les valeurs calculées, la ligne continue représente le polynôme de fit.

D'autre part, l'équation d'état de Birch-Murnaghan est utilisée pour obtenir le volume d'équilibre du film de Mn. Le processus d'optimisation des paramètres de maille en fonction du volume atomique de la supercellule Mn/Au(001) donne de nouvelles valeurs pour ($a=b$, c et c/a). Le résultat montre que le film de Mn cristallise dans la structure bct avec les nouveaux paramètres $a=2,72\text{\AA}$ et $c/a=1,32$, (voir figure 3.21). Les contraintes appliquées sur le film de Mn induisent une stabilisation de la phase magnétique du système et tendent à faire ressortir le couplage ferrimagnétique entre les plans du film.

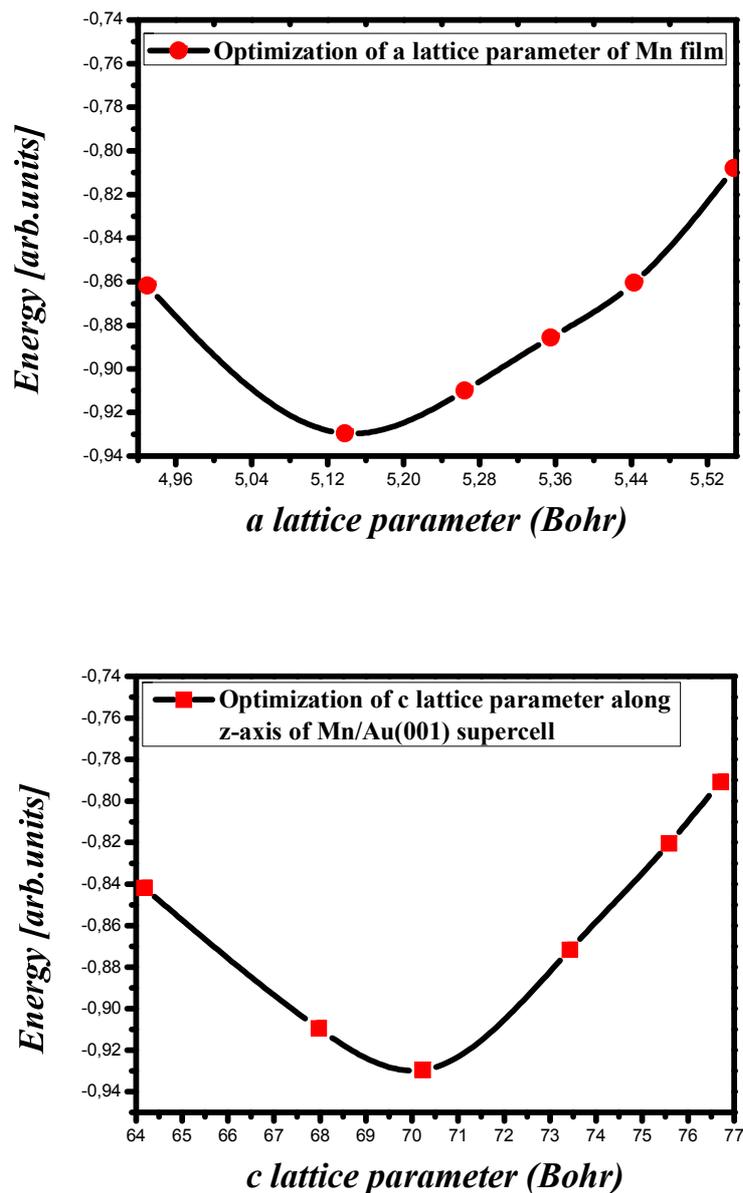


Figure. 3.21 : Le processus d'optimisation des paramètres de maille en fonction du volume atomique de la supercellule Mn/Au(001). Les cercles et les carrés rouges sont les valeurs calculées quant à la ligne continue présente le polynôme de fit.

Tableau. 3.5: Moments magnétiques en μ_B du film Mn sur Au en corrélation avec les distances interatomiques des atomes de Mn dans chaque plan, (calculs Wien2K).

Couches Mn	Au(I-1)	Mn(I)	Mn(I+1)	Mn(I+2)	$d_{\text{Mn-Mn}}$
Une couche	+ 0.08805	3.95381			2.87Å
Deux couches	+ 0.03770	3.19164	-3.431		2.76Å
Trois couches	+ 0.04516	3.45261	-1.963	3.848	2.72Å

Quant aux propriétés magnétiques du film de Mn sur l'or, les résultats de calcul sont récapitulés dans le tableau. (3.5). Le moment magnétique calculé sur la surface libre du système $\text{Mn}_n/\text{Au}(001)$ montre une augmentation de moment magnétique par rapport aux systèmes $\text{Mn}/\text{Ag}(001)$. Le moment magnétique de la monocouche de Mn sur Au est très important $\sim 3.95\mu_B$ (moment magnétique d'un atome libre $\sim 5\mu_B$). Cette augmentation du moment magnétique induit une polarisation magnétique inversée pour la couche d'Au à l'interface ($\sim 0.1\mu_B$) qui est due à l'hybridation des orbitales entre l'or et le Mn. Dans le système $\text{Mn}_2/\text{Au}(001)$, la deuxième monocouche de Mn induit respectivement une augmentation dans le moment magnétique contrairement au cas d'un substrat d'argent. Figure (3.15) montre les densités d'états (DOS) pour la couche 3d de une, deux et trois monocouches de Mn à la surface libre. En outre, le substrat de l'or tend à améliorer les propriétés magnétiques du manganèse relativement à Ag. Dans le système Mn_3/Au , le moment magnétique à la surface est important ($3.84\mu_B$). Le moment magnétique à la surface libre tend toujours à garder la plus grande valeur qui est due à la réduction du nombre de coordination. Ce système montre que le moment magnétique du plan central à une valeur la plus réduite de $\sim -1.96\mu_B$. Cela, peut être expliqué par l'effet de sa position car il subit des recouvrements d'orbitales de part et d'autre des atomes de Mn. Le transfert de charge augmente entre les couches p-d.

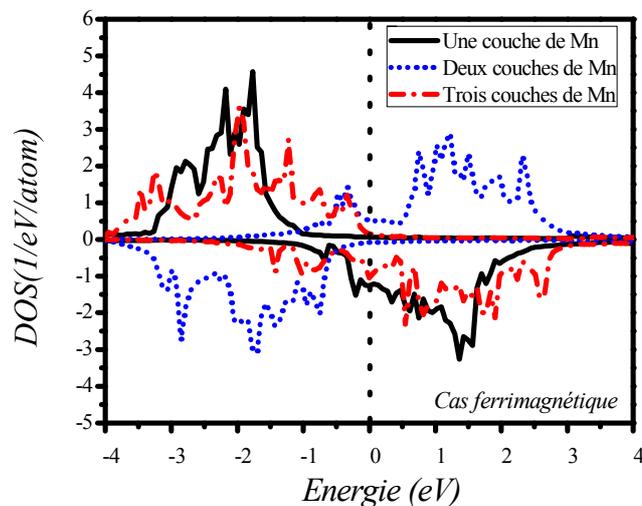


Figure. 3.22: Les densités d'états locales des spins up et down de la couche 3d pour trois plans de manganèse dans le cas ferrimagnétique.

Un calcul de l'anisotropie magnétique a montré un axe de facile aimantation selon la direction (0 0 1) dans tout le film de Mn. La distance interatomique dans le plan est donnée par la valeur de 2,87Å dans le cas d'une monocouche. A deux monocouches de Mn, la structure commence à se compacter et la distance dans le plan s'est réduite à 2,76Å. Dans le cas de trois monocouches de Mn, le comportement ferrimagnétique est adopté par le film de manganèse. Le moment magnétique à la surface libre est donné par une valeur de $3.85\mu_B$ provoqué par la constante de réseau du dernier plan de Mn (2.72 Å). L'anisotropie pour ce système est de l'ordre de 1200 μeV . Ce système présente des caractéristiques physiques importantes.

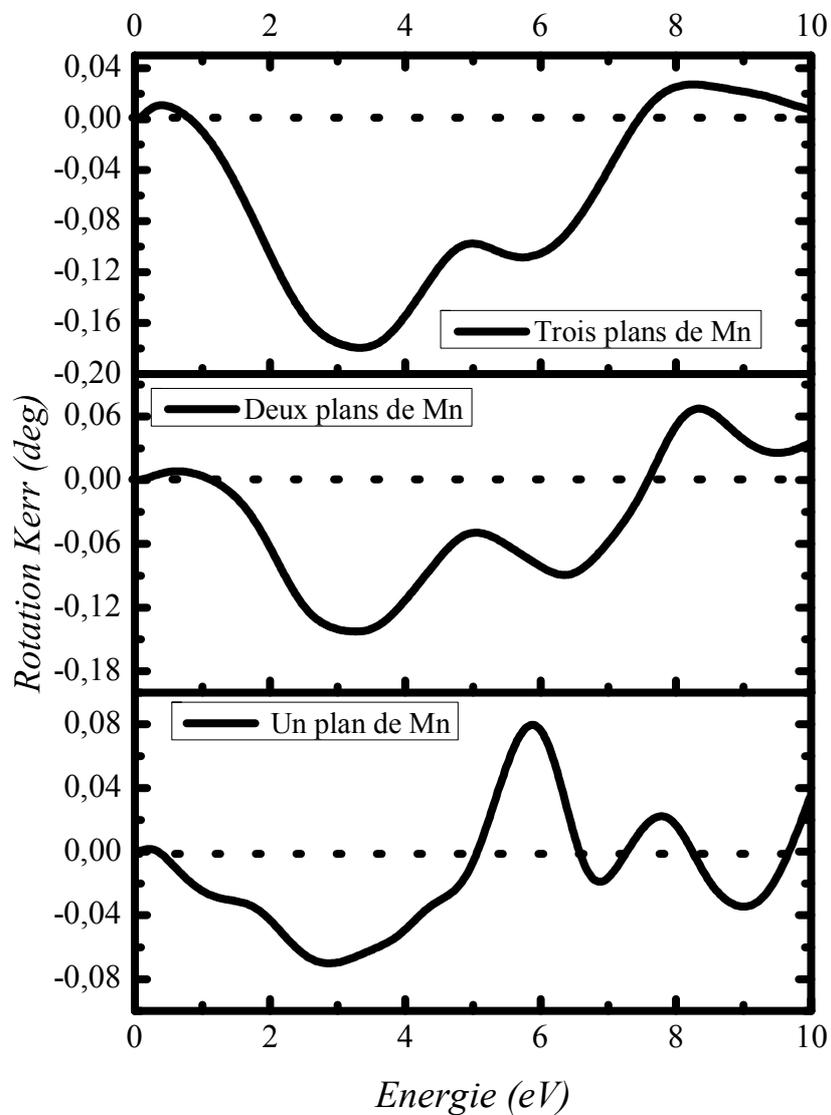


Figure. 3.23: les spectres de rotations Kerr calculées pour chaque surface libre dans le film de Mn/Au(001).

La figure. (3.23) montre les spectres des réponses linéaires du film de Mn/Au(001) par effet Kerr polaire qui augmente de plus en plus. La première couche montre une rotation de -0.07° dans le domaine du visible [$\sim 3,05 \pm 0.15$ eV]. Cette valeur sera amplifiée dans le cas de deux monocouches de Mn à une valeur de -0.13° . A la troisième couche de Mn, le système adopte un comportement ferrimagnétique. Les rotations Kerr apparaissent très importantes du fait que le moment magnétique à la surface du film prend la plus grande valeur de $3.85 \mu_B$. La réponse spectrale est toujours dans le domaine du visible qui donne une rotation Kerr -0.18° . Les pics positifs ont tendance à s'atténuer.

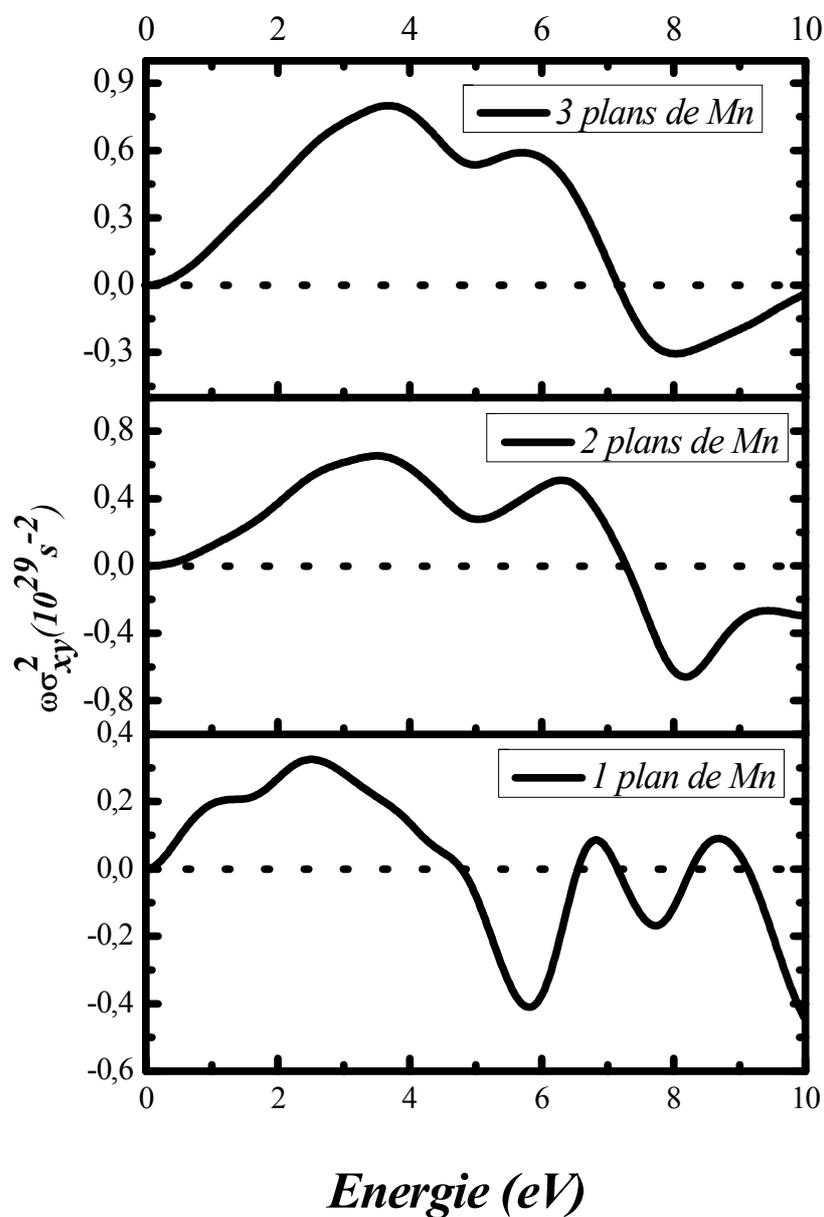


Figure. 3. 24 : L'absorption calculée des éléments non-diagonaux du tenseur de la conductivité optique du film de manganèse sur l'or. On constate que les extrémums de ces spectres correspondent en sens inverse avec les spectres de rotations Kerr.

Les éléments non diagonaux du tenseur de conductivité optique $\omega\sigma_{xy}^2$ sont directement liés aux transitions interbandes microscopiques, ils sont proportionnels à la différence dans le taux d'absorption de la lumière polarisée circulairement droite et gauche et son signe est directement lié à la polarisation de spin des états responsables des transitions interbandes qui produisent des structures dans le spectre de $\omega\sigma_{xy}^2$. La figure (3.24) montre clairement que le maximum de $\omega\sigma_{xy}^2$ correspond au pic négatif dans le spectre (3.23). Ceci montre la contribution de la conductivité non diagonale aux propriétés MO.

Conclusion générale

Dans ce travail nous avons étudié les propriétés structurales, magnétiques et magnéto-optiques des films ultraminces de chrome et de manganèse épitaxiés sur les substrats d'argent et d'or. Ces systèmes sont susceptibles d'être utilisés dans les applications technologiques notamment dans le domaine de stockage magnétique. Nous nous sommes intéressés à l'étude de l'effet Kerr magnéto-optique dans sa géométrie polaire par le calcul des spectres des rotations Kerr en fonction des énergies des photons incidents élargies jusqu'à 10 eV. Pour expliquer l'origine microscopique des pics apparaissant dans les spectres des rotations Kerr, nous avons fait une analyse quantitative combinée de la structure de bande, des éléments non diagonaux du tenseur de conductivité et des contributions interbandes aux σ'_{xx} et σ'_{zz} .

Le système Cr_n/Ag(001) après relaxation cristallise dans une structure tétragonale centrée avec $a = b = 2.89 \text{ \AA}$ et $c/a = 1.25$ et révèle un ordre ferrimagnétique. Cette structure favorise un axe de facile aimantation selon la direction (001). Les propriétés magnétiques de ce système sont expliquées dans le cadre de l'approche semi relativiste qui donne des résultats en accord avec les résultats expérimentaux. Nous trouvons un moment magnétique de chrome important avec une valeur de $4.16 \mu_B$. L'étude de spectre de la réponse magnéto-optique dans ce système a été caractérisée par deux pics positifs (domaine UV) et un pic négatif dans le domaine des radiations visibles au voisinage de $E = 3.51 \text{ eV}$, respectivement.

Les films de Mn_n/Ag(001) montrent des propriétés physiques intéressantes qui sont liées à la structure cristalline. Le processus d'optimisation d'énergie donne une structure que nous avons noté α -bct pour le film de manganèse. L'équation de Birch-Murnaghan est utilisée pour optimiser les paramètres de réseau en fonction du volume de la cellule a donné une structure de β -bct_Mn. La première structure favorise un couplage ferromagnétique du manganèse. Le moment magnétique calculé sur la surface libre du système a la plus grande valeur de $3,72\mu_B$. La deuxième structure favorise un comportement ferrimagnétique et l'axe de facile aimantation est selon la direction (001). L'interprétation de l'origine des rotations Kerr est effectuée par la recherche des transitions interbandes responsables des structures importantes dans les spectres Kerr. Les transitions dominantes des états au voisinage du niveau de Fermi ont été trouvées. Ces transitions contribuent ensemble à la formation des spectres MOKE du manganèse. Une étude du système Mn/Au (001) révèle un comportement structural et un ordre magnétique similaire sauf que les moments magnétiques sont en augmentation par rapport à Mn/Ag(001). La réponse spectrale est toujours dans le domaine du visible qui donne une rotation Kerr -0.18° . Les pics positifs ont tendance à s'atténuer.

Liste des figures

- Figure. 2.1 : Illustration de deux effets magnéto-optiques quand une lumière incidente est polarisée linéairement et elle sera polarisée elliptiquement par réflexion de la surface d'un film magnétique (effet Kerr), ou par transmission (effet Faraday)... ..37
- Figure. 3.1 : La tête d'écriture inscrit des domaines magnétiques sur le support de stockage. Dans le cas de l'enregistrement longitudinal, l'aimantation est dans le plan du disque, contrairement à l'enregistrement perpendiculaire. La tête de lecture dispose d'un Pod (Power storage Container) et le dispositif est doté d'une sous couche magnétiquement souple (Soft Under layer). Les champs de fuite sont localisés au niveau des transitions et sont détectés par l'élément magnéto-résistif (Read Element GMR) de la partie lecture de la tête.58
- Figure. 3.2 : Exemple d'une supercelle utilisé pour le film de $X_n/Y(001)$ et illustration du mode de croissance du film $X = (Cr, Mn)$ sur le substrat $Y = (Ag, Au)$61
- Figure. 3.3 : Exemple des configurations de la reconstruction de surface $p(2 \times 2)$ et $c(2 \times 2)$63
- Figure. 3.4 : Les configurations magnétiques possibles à la surface de Mn/Fe pour les premiers, deuxièmes et troisièmes plus proches voisins de l'atome de fer.....64
- Figure. 3.5 : Reconstruction à la surface du substrat de l'Au, les atomes de Mn se situent au milieu de quatre atomes de l'Au et la configuration magnétique favorable est celle de $p(1 \times 1)$ 64
- Figure. 3.6 : Le processus d'optimisation de l'énergie de (a) $Cr_1/Ag(001)$, (b) $Cr_2/Ag(001)$ et (c) $Cr_3/Ag(001)$. Les cercles, carrés et triangles noirs sont les valeurs calculées quant à la ligne continue présente le polynôme de fit.66
- Figure. 3.7 : Les densités locales des états des spins up et down pour le plan de chrome à la surface libre. La densité totale est la somme des contributions $s + p + d$68
- Figure. 3.8 : Les densités locales des états des spins pour deux plans de chrome. La phase antiferromagnétique apparaît par l'ajout du deuxième plan de chrome les courbes des DOS sont antisymétriques. 69
- Figure. 3.9: Les densités locales des états des spins up et down pour trois plans de chrome.70
- Figure. 3.10 : Les spectres de rotations Kerr calculés en énergie des systèmes $Cr_n/Ag(001)$71
- Figure. 3. 11 : L'absorption calculée des éléments non-diagonaux du tenseur de la conductivité optique du film de chrome. On constate que les extrémums de ces spectres correspondent en sens inverse avec les spectres des rotations Kerr.73

Figure. 3.12 : Le processus d'optimisation de l'énergie de (a) $Mn_1/Ag(001)$, (b) $Mn_2/Ag(001)$ et (c) $Mn_3/Ag(001)$. Les cercles, carrés et triangles noirs sont les valeurs calculées quant à la ligne continue présente le polynôme de fit.	76
Figure. 3.13 : Le processus d'optimisation des paramètres de maille en fonction du volume atomique de la supercellule $Mn/Ag(001)$. Les cercles et les carrés noirs sont les valeurs calculées quant à la ligne continue présente le polynôme de fit.	77
Figure. 3.14 : Les densités locales des états des spins up et down pour trois plans de manganèse dans la phase alpha déterminées par la LMTO.	78
Figure. 3.15: Les densités locales des états des spins up et down pour trois plans de manganèse dans la phase bêta déterminées par la Wien2k.	80
Figure. 3.16: les spectres de rotations Kerr calculées pour chaque surface libre dans le film ferromagnétique de Mn.	83
Figure.3.17: Structures des bandes calculées par la méthode LMTO: (a) $Mn_1/Ag(001)$, (b) $Mn_2/Ag(001)$ and (c) $Mn_3/Ag(001)$ du film α -bct_Mn.	84
Figure. 3.18: les spectres de rotations Kerr calculées pour chaque surface libre dans le film ferrimagnétique de Mn.	85
Figure. 3.19: Structures des bandes calculées par la méthode FP-LAPW pour les spins majoritaires et les spins minoritaires : (a) $Mn_1/Ag(001)$, (b) $Mn_2/Ag(001)$ and (c) $Mn_3/Ag(001)$ du film β -bct_Mn.	86
Figure. 3.20 : Le processus d'optimisation de l'énergie de (a) $Mn_1/Au(001)$, (b) $Mn_2/Au(001)$ et (c) $Mn_3/Au(001)$. Les cercles, carrés et triangles noirs sont les valeurs calculées quant à la ligne continue présente le polynôme de fit.	88
Figure. 3.21 : Le processus d'optimisation des paramètres de maille en fonction du volume atomique de la supercellule $Mn/Au(001)$. Les cercles et les carrés rouges sont les valeurs calculées quant à la ligne continue présente le polynôme de fit.	89
Figure. 3.22: Les densités locales des états des spins up et down de la couche 3d pour trois plans de manganèse dans les deux cas (ferromagnétique et ferrimagnétique).	90
Figure. 3.23: les spectres de rotations Kerr calculées pour chaque surface libre dans le film de $Mn/Au(001)$	91
Figure. 3.24 : L'absorption calculée des éléments non-diagonaux du tenseur de la conductivité optique du film de manganèse sur l'or. On constate que les extrémums de ces spectres correspondent en sens inverse avec les spectres des rotations Kerr.	92

Liste des tableaux

Tableau. 2.1 : Exemples de vecteurs de Jones normés.	44
Tableau. 2.2 : Ordre de grandeur des importantes des énergies d'interaction dans l'effet Kerr magnéto-optique.	52
Tableau. 3.1 : Les moments magnétiques calculés en unité de magnéton de Bohr (μ_B) pour chaque plan de chrome à la surface libre. Ici, nous avons désigné les indices (I-1) pour la couche d'argent à l'interface et (I + d) la dième couche de chrome.	67
Tableau. 3.2: Moments magnétiques calculés (couche par couche) par les deux codes LMTO et Wien2K (en unité de μ_B par atome) du système $Mn_n/Ag(001)$ avec (n=1, 2, 3 couches) du film α -bct_Mn. Nous avons adopté (I-1) et (I) pour indique le plans d'interface Ag et Mn, respectivement. L'indice (I + d) est la d ^{ième} couche de Mn.	77
Tableau. 3.3: Moment magnétique (en unité de μ_B par atome) pour les systèmes $Mn_n/Ag(001)$ dans la phase bêta avec (n=1, 2, 3 layers). Les calculs sont performés par la méthode FP-LAPW. Anisotropie magnétique and spin réorientation sont distingués en corrélation avec les distances interatomiques $d_{Mn_Mn}(\text{Å})$	79
Tableau. 3.4: Les rotations Kerr magnéto-optiques dans les deux phases du film de manganèse. Elles sont calculées pour une gamme d'énergie des photons incidents élargie jusqu'au 15 eV.	87
Tableau. 3.5: Moments magnétiques en μ_B du film Mn sur Au en corrélation avec les distances interatomiques des atomes de Mn dans chaque plan, (calculs Wien2K).	90

Bibliographie

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett* 61, 2472 (1988).
- [2] G. Binash, P. Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn, *Phys. Rev. B* 39, 4828 (1989).
- [3] N. F. Mott, *Proc. Roy. Soc. A* 153, 699 (1936).
- [4] A. Fert and I. A. Campbell, *Phys. Rev. Lett.* 21, 1190 (1968).
- [5] B. Loegel and F. Gautier, *J. Phys. Chem. Sol.* 32, 2723 (1971).
- [6] N. Ouarab, A. Haroun and N. Baadji, *J. Magn. Magn. Mater.* 419, 5–16 (2016).
- [7] M. Boukelkoul, N. Ouarab, M. Kharoubi and A. Haroun, *Sens. Lett.* 11 (9), 1658–1666 (2013).
- [8] S. S. P. Parkin, N. More and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* 64, 2304 (1990).
- [9] W. Kohn and L. J. Sham, *Phys. Rev.* 140, A1133 (1965).
- [10] M. Wuttig, B. Feldmann and T. Flores, *Surf. Sci.* 659, 331–333 (1995).
- [11] S. Blügel, *Appl. Phys. A :Solids. Surf.* 63, 595–604 (1996).
- [12] J. Kerr, *Philos. Mag.* 3, 321 (1877).
- [13] M. Kharoubi, A. Haroun and M. Alouani, *Comput. Mater. Sci.* 73, 24–32 (2013).
- [14] V. N. Antonov, A. YaPerlov, A. P. Shpak and A. N. Yaresko, *J. Magn. Magn. Mater.* 146, 205–207 (1995).
- [15] P. Blaha, K. Schwarz, G. Madsen, D. Kvasnicka and J. Luitz, *WIEN2k, an augmented plane wave + local orbitals program for calculating crystal properties*, (Karlheinz Schwarz, Techn. Universität Wien, Austria, 2014).
- [16] O. K. Anderson, *Phys. Rev. B* 12, 3060 (1975).
- [17] F. D. Murnaghan, The compressibility of media under extreme pressures, *Proc. Natl. Acad. Sci.* 30, 244 (1944).
- [18] M. Born, R. Oppenheimer, *Ann. Phys. (Leipzig)* 84, 457 (1927).
- [19] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin, *Solide State Physics* (Clarendon Press, Oxford, New York, 1976).
- [20] I. N. Levine, *Quantum Chemistry, Vol. I* (Allyn and Bacon, Boston, 1970).
- [21] D. R. Hartree, *Proc. Camb. Phil. Soc.* 24, 89, 11, 426 (1928).
- [22] V. Fock, *Z. Phys.* 61, 126 (1930) ; 62, 795 (1930).
- [23] J. C. Slater, *The Self Consistent Field for Molecules and Solids in Quantum Theory of Molecules and Solids*, Vol. 4 (McGraw-Hill, New York 1974).
- [24] R. Parr and W. Yang, *In Density Functional Theory of Atoms and Molecules*, (Oxford University Press, New York, 1989).
- [25] P. Hohenberg and W. Kohn, *Phys. Rev. B* 136, 864 (1964).
- [26] L. H. Thomas, *Proc. Cambridge. Soc.* 23, 542 (1927).
- [27] E. Fermi, *Z. Phys.* 48, 73 (1928).
- [28] N. Ouarab, *Effet Kerr dans les couches minces ferromagnétiques à base de Fer* (Thèse de Magistère, Sétif, 2010).
- [29] P. A. M. Dirac, *Proc. Cambridge. Philos. Soc.* 26, 376 (1930).
- [30] D. M. Ceperly and B. J. Alder, *Phys. Rev. Lett.* 45, 566 (1980).
- [31] J. P. Perdew and A. Zunger, *Phys. Rev. B* 23, 5048 (1981).

-
- [32] Gell-Mann and K. A. Brueckner, Phys. Rev. 106, 364–369 (1957).
- [33] E. Wigner, Phys. Rev. 46, 1002 (1934).
- [34] L. Hedin and B. I. Lundqvist, J. Phys. C 4, 2064 (1971).
- [35] U. Von Barth and L. Hedin, J. Phys. C 5, 1629 (1972).
- [36] S. H. Vosko, L. Wilk and M. Nusair, Can. J. Phys. 58, 1200 (1980).
- [37] S. H. Vosko and L. Wilk, Phys. Phys. B 22, 3812 (1980).
- [38] J. P. K. Burke, J. P. Perdew and M. Ernzerhof. Journal of Chemical Physics, 109, 3760 (1998).
- [39] J. P. Perdew, K. Burke and Y. Wang, Phys. Rev. B 54, 16533 (1996).
- [40] J. P. Perdew, J. A. Chevary, S. H. Vosko, K. A. Jackson, M. R. Pederson, D. J. Singh, and C. Fiolhais, Phys. Rev. B 46, 6671 (1992).
- [41] J. P. Perdew, S. Burke and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. 77, 3865 (1996).
- [42] J. P. Perdew, S. Kurth, J. Zupan and P. Blaha, Phys. Rev. Lett. 82, 2544 (1999).
- [43] J. P. Perdew, et al, Phys. Rev. Lett. 100, 136406 (2008).
- [44] H. Ebert, Relativistic Band structure of Magnetic Solids in Electronic Structure and Physical properties of Solids (Ed H. Dreysse. Springer 1998).
- [45] M. Faraday, Phil. Trans. R. Soc. 136, 1 (1846).
- [46] J. Kerr, Philos. Mag. 3, 321 (1877).
- [47] S. Goudsmit and G. E. Uhlenbeck, Physica 6, 273 (1926); G. E. Uhlenbeck and S. Goudsmit, Naturwissenschaften 47, 953 (1925).
- [48] C. Aslangul, *Mécanique Quantique*, tome II (MIPI-16, Paris 6, 2004), pp.153-158.
- [49] C. C. Tannoudji, J. Dupont-Roc and G. Grynberg, *Photons and Atoms; Introduction to Quantum Electrodynamics* (Wiley Interscience Publication, Cannada, 1997).
- [50] Karlheinz Schwarz, Journal of Solid State Chemistry 176, 319-328 (2003).
- [51] M. Plischke and B. Bergersen, Equilibrium Statistical Physics, 3rd ed (World Scientific Publishing, British, 2006).
- [52] D. Singh, Phys. Rev. B 43, 6388 (1991).
- [53] E. Sjöstedt, L. Nordström and D. J. Singh, Solid. State. Commun. 114, 15 (2000).
- [54] G. K. H. Madsen, P. Blaha, K. Schwarz, E. Sjöstedt and L. Nordström, Phys. Rev. B 64, 195134 (2001).
- [55] O. K. Andersen, Phys. Rev. B 12, 3060 (1975).
- [56] E. P. Wigner and F. Seitz, Phys. Rev. 43, 804 (1933).
- [57] D. A. Varshalovich, A. N. Moskalev and V. K. Khersonskii, *Quantum Theory of Angular Momentum* (Nauka, Leningrad, 1975), [in Russian].
- [58] V. V. Nemoshkalenko, A. E. Krasovskii, V. N. Antonov, U. Fleck, H. Wonn and P. Ziesche, Phys. Status. Solidi (b) 120, 283 (1983).
- [59] V. Antonov, B. Harmon and A. Yaresko, *Electronic Structure and Magneto-Optical Properties of Solids*, (Kluwer Academic Publishers. New York, Boston, Dordrecht, London, Moscow, 2004).
- [60] A. H. MacDonald and S. H. Vosko, J. Phys. C 12, 2977 (1979).
- [61] H. Ebert, Phys. Rev. B 38, 9390 (1988).
- [62] I. V. Solov'yev, A. I. Lichtenstein, V. A. Gubanov, V. P. Antropov and O. K. Andersen, Phys. Rev. B 43, 14414 (1991).

-
- [63] A. E. Krasovskii, Phys. Rev. B 60, 12788 (1999).
- [64] R. Feder, F. Rosicky and B. Ackermann, Z. Phys. B 52, 31 (1983).
- [65] P. Strange, J. Staunton and B. L. Gyor_y, J. Phys. C 17, 3355 (1984).
- [66] P. Cortona, S. Donianch and C. Sommers, Phys. Rev. A 31, 2842 (1985).
- [67] S. Visovsky, Czech. J. Phys. B 34, 969 (1984).
- [68] M. J. Freiser, IEEE Trans. Magn. 4, 152 (1968).
- [69] R. P. Hunt, J. Appl. Phys. 38, 1652 (1967).
- [70] K. H. J. Buschow, *In Ferromagnetic Materials*, edited by E. P. Wohlfarth and K. H. J. Buschow (North-Holland, Amsterdam, 1988), Vol.4, p.588.
- [71] V. Antonov, B. Harmon and A. Yaresko, *Electronic Structure and Magneto-Optical Properties of Solids*, (Kluwer Academic Publishers. New York, Boston, Dordrecht, London, Moscow, 2004).
- [72] Joong-mok Park, *Optical and magneto-optic Kerr effects of MnBi, Ni₂MnGa, and Gd₅Si₂Ge₂*, (A dissertation thesis for Doctor of Philosophy, Iowa State University, 2004).
- [73] H. Ebert, Rep. Prog. Phys. 59, 1665-1735 (1996).
- [74] A. P. Cracknell, J. Phys. C : Solide State Phys. 2, 1425 (1965).
- [75] J. C. Maxwell, *A Treatise on Electricity and Magnetism*, vol II (Clarrendon Press Serises, Oxford, 1878).
- [76] E. J. Rothwell and M. J. Cloud, *Electromagnetics* (CRC Press, 2001).
- [77] R. Fitzpatrick, *Classical Electromagnetism* (PHY 352K, 1997).
- [78] Z. Popović and B. D. Popović, *Introductory Electromagnetics* (Prentice Hall, Upper SaddleRiver, New Jersey 07458, 2000).
- [79] A. O. Barut, *Electrodynamics and Classical Theory of Fields and Particles* (Dover Edition, New York, 1980).
- [80] L. Landau and E. Lifchitz, *Physique Théorique*, tome IV (Mir Edition, Moscow, 1972).
- [81] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, 6th ed (Pergamon, Great Britain , 1986).
- [82] K. Sakoda, *Optical Properties of Photonic Crystals*, 2nd ed (Springer, Japan, 2004).
- [83] J. N. Hodgson, *Optical Absorption and Dispersion in Solids* (Chapman and Hall, London, 1970).
- [84] P. N. Argyres, Phys. Rev. **97**, 334 (1955).
- [85] H. S. Bennett and E. Stern, Phys. Rev. **137**, A448 (1965).
- [86] P. S. Pershan, J. Appl. Phys. 38, 1482 (1967).
- [87] G. R. Fowles, *Introduction to Modern Optics* 2nd edition (Holt, New York, 1975).
- [88] R. C. Jones, "New calculus for the treatment of optical systems", J. Opt. Soc. Am. **31**, 488–493, (1941).
- [89] W. Reim and J. Schoenes, *Magneto-Optical Spectroscopy of f-electron systems*, *Ferromagnetic Materials* Vol. 5 Chapter 2 (1990), edited by E. P. Wohlfarth and K. H. J. Buschow.
- [90] H. Feil and C. H ass, Phys. Rev. Lett. **58**, 65 (1987).
- [91] M. Dressel and G. Griner, *Electrodynamics of Solids* (Cambridge University Press, Cambridge, 1991).
- [92] P. Drude, Phys. Z. 1, 161 (1900).
- [93] F. Wooten, *Optical Properties of Solids* (Academic Press, New York, 1972), Ch. 3.
- [94] P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors* (Springer-Verlag, Berlin, 1996), page 296.
- [95] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics* (Wiley and Sons, New York, 1996), Ch.10.
- [96] L. I. Schiff, *Quantum Mechanics* 3rd edition (McGraw-Hill, New York, 1968).
- [97] D. C. Mattis, *The Theory of Magnetism* (Harper and Row, New York, 1965) p210.

-
- [98] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders College Publishing, 1976) p648.
- [99] C. S. Wang and J. Callaway, *Phys. Rev. B* 9, 4897 (1974).
- [100] M. Singh, C. S. Wang, and J. Callaway, *Phys. Rev. B* 11, 287 (1975).
- [101] R. Kubo, *J. Phys. Soc. Japan* 12, 570 (1957).
- [102] E. Dzyaloshinskii, *Sov. Phys. JETP* 5, 1259 (1957).
- [103] I. M. Miron, T. Moore, H. Szabolcs, L. D. Buda-Prejbeanu, S. Auffret, B. Rodmacq, S. Pizzini, J. Vogel, M. Bonfim, A. Schuhl, and G. Gaudin, *Nat. Mater.* 10, 419-423 (2011).
- [104] O. Eriksson, R. C. Albers and A. M. Boring, *Phys. Rev. Lett.* 66, 1350 (1991).
- [105] O. Jepsen and O. K. Andersen, *Solid. State. Commun.* 9, 1763 (1971).
- [106] H. Hellmann, *Einführung in die Quantenchemie* (Deuicke, Leipzig, 1937), p. 285.
- [107] R. P. Feynman, *Phys. Rev.* 56, 340 (1939).
- [108] F. D. Murnaghan, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 30, 244 (1944).
- [109] C. Krembel, M.C. Hanf, J.C. Perruchetti, D. Bolmont et G. Gewinner, *Phys. Rev.* 44, 8407 (1991) et *Phys. Rev.* 44, 11472 (1991).
- [110] Jayanta Das, Sananda Biswas, Asish K. Kundu, Shobhana Narasimhan, and Krishnakumar S. R. Menon, *Phys. Rev. B* 91, 125435 (2015).
- [111] David Santos-Carballal, Alberto Roldan, Ricardo Grau-Crespo, and Nora H. de Leeuw, *Phys. Rev. B* 91, 134413 (2015).
- [112] Ch. Roth, Th. Kleeman, F. U. Hillebrecht et E. Kisker. *Phys. Rev. B* 52, R15691 (1995).
- [113] Puneet Mishra, Takashi Uchihashi, and Tomonobu Nakayama, *Applied Physics Letters* 98, 123106 (2011).
- [114] S. Andrieu, M. Finazzi, F. Yubero, H. Fischer, P. Arcade, F. Chevrier, K. Hricovini, G. Krill, M. Picuch, *J. Magn. Magn. Mater.* 165, 191-194 (1997).
- [115] P. Steadman, C. Norris, C. L. Nicklin, N. Jones, J. S. G. Taylor, S. A. de Vries and S. L. Bennett, *Phys. Rev. B* 64, 245412 (2001).
- [116] Koichiro Yaji et al, *Phys. Rev. B* 76, 214403 (2007).
- [117] V. Popescu, H. Ebert, B. Nonas and P. H. Dederichs, *Phys. Rev. B* 64, 184407 (2001).
- [118] Jian-Tao Wang, Zhi-Qiang Li, Lei Zhou, and Yoshiyuki Kawazoe, *Phys. Rev. B* 59, 6974 (1999).
- [119] Jayanta Das, Asish K. Kundu, Krishnakumar S.R. Menon, *Vacuum* 112, 5-11 (2015)
- [120] P. M. Oppeneer, T. Maurer, J. Sticht and J. Kübler, *Phys. Rev. B* 45, 10924 (1992).
- [121] P. Schieffer, C. Krembel, M. C. Hanf, G. Gewinner, *Surf. Sci.* 398, 332-341 (1998).
- [122] M. Zelený, D. Legut, M. Šob, *Phys. Rev. B* 78, 224105 (2008).
- [123] P. Steadman, C. Norris, C. L. Nicklin, N. Jones, J. S. G. Taylor, *Phys. Rev. B* 64, 245412 (2001).
- [124] Jian-Tao Wang, Zhi-Qiang Li, Yoshiyuki Kawazoe, *J. Phys. Condens. Matter* 10, 9655 (1998) .
- [125] B. T. Jonker, J. J. Krebs, G. A. Prinz, *Phys. Rev. B* 39, 1399 (1989).
- [126] T. Shimada, Y. Ishii, T. Kitamura, *Phys. Rev. B* 84, 174405 (2011).
- [127] B. A. Hamad, J. M. Khalifeh, C. Demangeat, *Surf. Sci.* 601, 346-351 (2007).
- [128] S. Andrieu, H. Fischer, E. Foy, P. Lefevre, M. Alnot, M. Picuch, *J. Magn. Magn. Mater.* 198-199, 285- 287 (1999).
- [129] Z. Tian, D. Sander, J. Kirschner, *Phys. Rev. B* 79, 024432 (2009).

-
- [130] M. Bode, S. Heinze, A. Kubetzka, O. Pietzsch, M. Hennefarth, M. Getzlaff, R. Wiesendanger, X. Nie, G. Bihlmayer and S. Blügel, *Phys. Rev. B* 66, 014425 (2002).
- [131] M. Zelený, F. D. Natterer, A. Biedermann, J. Hafner, *Phys. Rev. B* 82, 165422 (2010).
- [132] E. Martínez, A. Vega, R. Robles, A. L. Vázquez de Parga, *Phys. Lett. A* 337, 469–472 (2005).
- [133] P. Krüger, *Physica. B* 318, 310–315 (2002); P. Krüger and A. Kotani, *Phys. Rev. B* 68, 035407 (2003).
- [134] S. Fujii, S. Ishida and S. Asano, *J. Phys. Soc. Jpn.* 60, 1193–1196 (1991).
- [135] P. Schieffer, C. Krembel, M. C. Hanf and G. Gewinner, *Surf. Sci.* 400, 95–108 (1998).
- [136] Soon C. Hong, M. Kim, A. J. Freeman, *J. Appl. Phys.* 83 (11), 7016–7018 (1998).
- [137] S. López-Moreno, J. Mejía-López, Francisco Munoz, A. Calles, J. L. Morán-López, *J. Magn. Magn. Mater.* 403, 172–180 (2016).
- [138] T.-Y. Khim, M. Shin, B. G. Park, H. Lee, J. H. Park, *J. Appl. Phys.* 115 (23), 233904–233908 (2014).
- [139] Yin-Chih Lin, Chii-Bin Wu, Wei-Shu Li, Ying-Chin Chen, Zheng-Yuan Huang, Wen-Chin Lin, Minn-Tsong Lin, *Appl. Phys. Express* 7, 023005 (2014).
- [140] Edna C. Corredor, José I. Arnaudas, Miguel Ciria, Fabian Lofink, Stefan Rößler, Robert Frömter, Hans Peter Oepen, *Phys. Rev. B* 90, 184410 (2014).
- [141] X. Chen, X. Qian, K. Meng, J. Zhao, Y. Ji, *J. Meas.* 46, 52–56 (2013).
- [142] Z. Q. Qiu, S. D. Bader, *Rev. Sci. Instrum.* 71 (3), 1243–1255 (2000).
- [143] N.D. Mermin, H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* 17, 1133 (1966).
- [144] D. P. Pappas, K.-P. Kämper, H. Hopster, *Phys. Rev. Lett.* 64, 3179 (1990).
- [145] D. P. Pappas, C. R. Brundle, H. Hopster, *Phys. Rev. Lett.* 45, 8169 (1992).

Liste des Publications

- [1] M. Boukelkoul, **N. Ouarab**, M. Kharoubi, A. Haroun, *Theoretical Study of the Kerr Effect in Ultrathin Films $Fe_n/Ag(001)$* , *Sensor. Letters* **2989**, Vol 11, Number 9, (2013) 1658-1666, <http://dx.doi.org/10.1166/sl.2013.2989>.
- [2] **N. Ouarab**, M. Boumaour, A. Haroun, and A. Bahfir, *Comparative Study of ZnS and FeS_2 Buffer Materials in CZTS Heterostructure Based Solar Cells. I- Case FP-LAPW calculations*, (ICNCRE 2013) 413 – 419, [ISBN : 978-81-925233-8-5,
http://edlib.asdf.res.in/2013/icncre/icncre2013084.html](http://dx.doi.org/10.1166/icncre.2013.3084).
- [3] M. Boumaour; A. Bahfir; S. Sali; S. Kermadi; L. Zougar; **N. Ouarab**, *Innovative emitter design for low-cost silicon based heterostructure solar cells*, IEEE (2014), [ISBN: 978-1-4799-6502-1,
http://dx.doi.org/10.1109/NAWDMPV.2014.6997604](http://dx.doi.org/10.1109/NAWDMPV.2014.6997604).
- [4] **N. Ouarab**, M. Boumaour, A. Bahfir, A. Larabi, *Electronic and Optical Properties of Nickel Alloyed Iron Disulphide Pyrite for Photovoltaic Application*, EU-PVSEC Proceedings N° 31 (2015) 131 – 135, ISBN : 3-936338-39-6, <http://dx.doi.org/10.4229/EUPVSEC20152015-1BV.6.12>
- [5] M. Boumaour, S. Sali, A. Bahfir, S. Kermadi, L. Zougar, **N. Ouarab**, A. Larabi, *Numerical Study of TCO/Silicon Solar Cells with Novel Back Surface Field*, Journal of Electronic Materials 45 (2016) 422, <http://dx.doi.org/10.1007/s11664-016-4419-3>.
- [6] **N. Ouarab**, A. Haroun and N. Baadji, *Structural changes induced spin-reorientation of ultrathin Mn films grown on Ag (001)*, J. Magn. Mater. 419, (2016) 5–16, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmmm.2016.06.001>.
- [7] N. Ouarab and A. Haroun, Spin-reorientation mechanism in Mn/Au(001) ultrathin films, Paper to be submitted.

Participations aux écoles de formation

1. La 2^{ème} école internationale de physique, le magnétisme et ses applications, Azeffoun (Tizi-ouzou) de 02 au 05 octobre 2010.
2. Stage de formation sur les semi-conducteurs et ses applications dans le domaine de photovoltaïque CRTSE-ex. UDTS, 02 BVD, Frantz Fanon, Alger de 08 janvier au 30 décembre 2012.
3. Summer School on Nanostructures and Applications SSNA'2015. 07–13th September, 2015, Algiers, Algeria. <http://ssna.crtse.dz>.
4. Ecole de printemps sur le Calcul Intensif, CERIST, 17 – 20 Avril 2016.
5. VASP (Vienna Ab-initio Simulation Package) Training School, Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Rennes, France de 31 août au 07 septembre 2016.

Participations aux communications internationales

1. Participation au séminaire international intitulé printemps de la physique et de la chimie de la faculté des sciences, Université Ferhat ABBAS de Sétif de 03 au 06 avril 2011 par une Communication orale ;
N. Ouarab and A. Haroun,
2. Workshop sur les matériaux magnétiques et Nanomatériaux- **MMN-2012**, Université M'Hamed Bougara, Boumerdès 04-06 septembre 2012.
3. The second International Conference on Energy and Sustainable Development- ICESD'11-ADRAR 19-20 February 2013.
4. Eight International conference on Magnetic and Superconducting Materials-MSM'13-September 01-05, 2013 Hammamet-Tunisia.
5. 1st International Conference on Nano electronics, Communications and Renewable Energy-ICNCRE'13- Jijel 22-23 September 2013.
6. Participation à la neuvième LEEM /PEEM-9 Low Energy Electronic Microscopy Conference, 14–18 Septembre 2014, Berlin, Allemagne.
7. N. Ouarab, M. Boumaour, A. Bahfir and A. Larabi, Electronic and Optical Behaviors of Nickel alloyed Iron Disulphide Pyrite for PV Application 31st European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition, 14-18 Septembre 2015, Hambourg, Allemagne, Pp.: 626 – 628 ISBN: 3-936338-39-6, DOI: 10.4229/EUPVSEC20152015-2AV.1.41 <https://www.eupvsec-proceedings.com>.
8. N. Ouarab and M. Boumaour, New theoretical method of electron affinity calculation for semiconductor solid state, 4thConférence ICAMM International Conference on Advanced Materials Modelling, Rennes, France, septembre 2016.

Abstract

By means of DFT, we investigate the structural, magnetic and magneto-optical properties of Cr ultrathin film on semi-infinite Ag substrate. The results show that Cr ultrathin film crystallizes in bct structure with lattice parameters ($a=b=2.88 \text{ \AA}$, $c/a=1.25$) and it favors ferrimagnetic coupling between Cr planes. The anisotropy is shown to be perpendicular to the surface by polar-magneto-optical Kerr effect. The magnetic moment at free surface of Cr film reaches the value of $3.78 \mu_B$. In Mn ultrathin film on Ag or Au in the direction of (001), the result shows that the applied strain of bct Mn film from lattice parameter $a=2.89 \text{ \AA}$ to lattice value of 2.73 \AA induces ferrimagnetic behavior between Mn layers. The magnetic easy axis of Mn film was demonstrated theoretically to switch from the in-plane to out-of-plane by magneto-optical Kerr effect investigation. By including spin-orbit coupling in full potential linearized augmented plane waves and linearized muffin-tin orbitals methods, manganese ultrathin film displays different magnetic behaviors and the spin-reorientation transition is shown to be correlated to these structural changes. The calculated magnetic moment of manganese planes are enhanced and reach a value of $\sim 4.02 \mu_B$ in the case of Ag substrate and reach a value of $4.30 \mu_B$ in the case of Au substrate. The polar magneto-optical Kerr effect is calculated for a photon energy range extended to 10 eV. It shows a pronounced peak in visible light.

Keywords: DFT, ferrimagnetism, Kerr effect, spin-reorientation transition, ultrathin films

عن طريق استعمال نظرية (DFT) مع قريب LSDA، م دراسة الخصائص الفيزيائية (الهيكلية، المغناطيسية والضوئية-المغناطيسية) للأفلام الجذبة المكونة من الكروم الموضوعة على كيزة الفضة في شبه لانهاية. أهدت النتائج أن فيلم الكروم يتبلور في هيكل مكعب القاعدة والمركز مع عائلات الشبكة البلورية ($a=b=2.88 \text{ \AA}$ ، $c/a=1.25$)، وأنه يفضل اقتران الفيري-مغناطيسية بين الطبقات الذرية للكروم. أهدت غنطة الكروم أنها تعاد على السطح استعمال ظاهرة Kerr المغناطيسية الضوئية العمودية. عزز المغناطيس لفيلم الكروم يصل إلى قيمة $3.78 \mu_B$. في أفلام المنغنيز الجذبة الموضوعة على كيزة الفضة أو الذهب في الاتجاه (001)، النتيجة تظهر أن عند غير ثبات الشبكة من $a=2.89 \text{ \AA}$ إلى $a=2.73 \text{ \AA}$ فيدفع السلوك المغناطيسي إلى هيكل اقتران الفيري-مغناطيسية بين طبقات المنغنيز. قد جرى حول السهل المغناطيسي لفيلم المنغنيز نظرياً أنه يغير الاتجاه من دالة الطبقة إلى دالة وطبقته التحقيق من ذلك استعمال ظاهرة Kerr المغناطيسية الضوئية. عزز المغناطيس للسطح الحر للمنغنيز أهدت قيمته قد دادت إلى وصل إلى قيمة $\sim 4.02 \mu_B$ دالة كيزة الفضة، و إلى قيمة $4.30 \mu_B$ دالة كيزة الذهب مع ساطع أطيف Kerr المغناطيسية الضوئية العمودية لمجال طاقة الفوتونات تمتد إلى 10 إلكترون فولت.