MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU

FACULTE DES SCIENCES DEPARTEMENT DE PHYSIQUE



THESE DE DOCTORAT

SPECIALITE : PHYSIQUE **OPTION** : PHYSIQUE DES MATERIAUX

Présentée par :

Monsieur Farid CHELLI

Sujet :

Dynamique des monoxydes antiferromagnétiques à structure rock-salt

Devant la commission d'examen composée de :

| Mr Slimane Hellal | Professeur | U.M.M. Tizi-Ouzou | Président |
|--|---------------------------|---------------------------------------|-----------------------------|
| Mr Boualem Bourahla | Professeur | U.M.M. Tizi-Ouzou | Rapporteur |
| Mr Rachid Tigrine M ^{me} Razika Tala-Ighil | Professeur Professeure | U. A. D. Adrar U.M. B. Boumerdes | Examinateur Examinatrice |
| Mr Rabah Chadli Mr Abdeslem Beldiilali | Professeur MC/A | U.M.M. Tizi-Ouzou U.S.T.H.B. Alger | Examinateur Examinateur |
| | | | |

Soutenue, le ...14/...07.../2021

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein du Laboratoire de Physique et Chimie Quantique (LPCQ) de l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (UMMTO), sous la direction scientifique de Monsieur le professeur Boualem Bourahla qui a suivi pas à pas son développement. J'exprime ma reconnaissance à l'égard de mon directeur de thèse pour l'efficacité et la bienveillance avec laquelle il m'a constamment guidé et encouragé tout le long de la période de ma formation que j'ai passé au sein du groupe de recherche numéro 4 du LPCQ, qui s'intitule : « Excitations magnétiques et vibrationnelles des systèmes de basse dimensionnalité ». Il a toujours su m'orienter et me proposer les choix scientifiques les plus adaptés à la résolution des problèmes que j'ai rencontrés. J'ai été très marqué par ses qualités professionnelles et humaines. Qu'il trouve ici, l'expression de ma profonde gratitude.

Je tiens à remercier vivement les membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à ma thèse. Ce sont :

- Monsieur Slimane Hellal, Professeur à l'UMMTO pour m'avoir fait l'honneur d'accepter la présidence du jury de thèse.

- Les examinateurs suivants : le Professeur Rachid Tigrine (de l'Université d'Adrar), la Professeure Razika Tala-Ighil (de l'Université de Boumerdes), le Professeur Rabah Chadli (de l'UMMTO) et le Docteur Abdeslem Beldjilali (de l'USTHB) pour avoir accepté de prendre part au jury de ma thèse.

Mes remerciements vont aux chercheurs du LPCQ (directeur et membres), et les thésards, en général, et certains membres de notre équipe de recherche, en particulier, pour différentes raisons, citons : les discussions enrichissantes, encouragements, suggestions, conseils et surtout pour l'ambiance amicale. Je n'oublierai pas les moments que j'ai passés avec eux.

Enfin, merci à toute ma petite famille pour leurs encouragements et leur soutien indéfectible.

F. Chelli

TABLE DES MATIERES

| Introduction générale | |
|---|----|
| Chapitre I | |
| Excitations de spins dans les structures monoxydes parfaites de première série | 9 |
| Introduction | 10 |
| I. Monoxydes de la première série (de type MO) | 10 |
| I.1. Propriétés des monoxydes de métaux de transition | |
| I.2. Structure électronique des oxydes de métaux de transition | 13 |
| II. Première zone de Brillouin et direction de symétrie | 14 |
| II.1. Symétrie cristalline | 15 |
| II.2. Maille élémentaire du réseau direct | 16 |
| II.3. Réseau réciproque | 16 |
| II.4. Zone de Brillouin | 16 |
| II.5. Réseau réciproque du système cubique à faces centrées | 17 |
| III. Formalisme théorique général traitant des ondes de spins dans les monoxydes parfaits | |
| III.1. Approche théorique du traitement d'ondes de spins | |
| III.2 Approche semi-classique | 19 |
| III.3 Approche quantique | |
| III.3.1 Transformation de Holstein-Primakoff | 22 |
| III.3.2. Transformation de Bogoliubov | |
| IV. Dynamique des spins dans les monoxydes antiferromagnétiques parfaits | |
| IV.1. Système modèle | |
| IV.2. Courbe de dispersion | |
| V. Conclusion du chapitre | |
| Références du chapitre I | 32 |
| | |

Chapitre II

| Etude théorique de la dynamique de surfaces des monoxydes semi-infinis | |
|---|----|
| I. Introduction | |
| II. Surfaces des monoxydes semi-infinis | 35 |
| 1. Surface cristalline | |
| 2. Surface vicinale | 35 |
| 3. Description microscopique d'une surface | |
| 4. Les effets de surface | |
| 5. Stabilité des surfaces | 39 |
| 5.1. Relaxation et reconstruction | 39 |
| 6. Classification des surfaces | 40 |
| 7. Energie de surface | |
| 8. Anisotropie de surface | |
| 9. Anisotropie d'échange | |
| 10. Magnétisme de surface | |
| 11. Techniques d'analyse des surfaces solides | |
| 11.1 Les techniques d'observation | 44 |
| 11.1.1. La microscopie électronique à balayage (MBE) | 44 |
| 11.1.2. Microscopie électronique en transmission MET ou TEM | 44 |
| 11.1.3. Microscopie à effet tunnel et microscopie à force atomique | 44 |
| 11.2 Les techniques d'analyse | |
| 11.2.1. Analyses par spectroscopie des photoélectrons X (XPS) | |
| 11.2.2. La spectroscopie d'électrons Auger S.E.A | |
| 11.2.3. Diffraction d'électrons de basse et haute énergie LEED et RHEED | |
| 11.2.4. Analyses SIMS | |
| 12. Les méthodes analytiques pour l'étude des ondes de spins dans des structures rocksalt | |
| | |

| 12.1. Méthode de diagonalisation directe | 47 |
|---|----|
| 12.2. Méthode des fonctions de Green | 47 |
| 12.3. Méthode de raccordement | 49 |
| 12.3.1. Principe de la méthode | 49 |
| 12.4. Le formalisme théorique | 50 |
| 12.5. Matrice dynamique du monoxyde semi-infini | 50 |
| 12.6. Ecriture de la matrice de raccordement | 51 |
| 12.7. Etats localisés de spins | 52 |
| 12.8. Densités d'états magnoniques | 52 |
| Références du chapitre II. | 54 |

Chapitre III Dynamique des surfaces des monoxydes semi-infinis suivant la direction [001]58

| I. Introduction | 59 |
|--|----|
| II. Chemins de haute symétrie dans la direction [001] | 60 |
| III. Excitations magnétiques dans les monoxydes semi-infinis | 61 |
| III.1. Interaction magnétique | |
| III.2. Dynamique de spins à la surface du réseau monoxyde de type MO | |
| III.2.1. Matrice dynamique du système de surface de monoxyde semi-infini | |
| III.2.2. Matrice de raccordement | |
| IV. Résultats des états localisés des monoxydes semi-infini suivant la direction [001] | 67 |
| IV.1. Les états localisés de spins engendrés par la surface plane d'un monoxyde MO | |
| IV.2. Les états localisés de spins engendrés par la surface vicinale d'un monoxyde MO | |
| V. Résultats des densités magnoniques locales (LMDOS) suivant la direction [001] | 70 |
| V.1. LMDOS des sites irréductibles de la surface plane | 70 |
| V.2. LMDOS des sites irréductibles de la surface vicinale | |
| VI. Discussion et interprétation des résultats | 73 |
| VII. Conclusion du chapitre | 77 |
| Références du chapitre III | |
| | |

Chapitre IV

| Dynamique des surfaces des monoxydes semi-infinis suivant la direction [011] | | |
|---|----|--|
| I. Introduction | 81 | |
| II. Chemins de haute symétrie dans la direction [011] | 82 | |
| III. Matrice dynamique et matrice de raccordement | 84 | |
| III.1. Matrice dynamique du système de surface de monoxyde semi-infini | 84 | |
| III.2. Matrice de raccordement | 84 | |
| III. Résultats des états localisés des monoxydes semi-infinis, suivant la direction [011] | 86 | |
| IV.1. Les états localisés de spin engendrés par la surface plane d'un monoxyde MO | 86 | |
| IV.2. Les états localisés de spins engendrés par la surface vicinale d'un monoxyde MO | 88 | |
| V. Résultats des densités magnoniques locales (LMDOS) suivant la direction [011] | 89 | |
| V.1. LMDOS des sites irréductibles de la surface plane | 89 | |
| V.2. LMDOS des sites irréductibles de la surface vicinale | 91 | |
| VI. Discussion et interprétation des résultats | 92 | |
| VII. Conclusion du chapitre | 95 | |
| Références du chapitre IV | 96 | |
| Conclusion générale | 97 | |

Introduction générale

L'aptitude des métaux de transition à adopter des valences mixtes et des coordinations restreintes dépend de plusieurs facteurs et constitue une source de grande diversité structurale pour comprendre certaines liaisons chimiques dans les matériaux à base d'éléments de transition.

Il a été rapporté que le contrôle des conditions de synthèse et/ou la maitrise des possibilités de substitution ionique dans les composés métalliques sont à l'origine de l'obtention de nouveaux dispositifs atomiques fonctionnels. Ces composés présentent des propriétés physiques modifiées, avec une gamme d'application très large et variable. Ainsi, les oxydes à matrice d'éléments de transition comptent parmi les matériaux technologiquement des plus importants et font l'objet de recherches scientifiques intenses.

Ces quinze dernières années, l'élaboration d'oxydes sous forme de couches minces a connu un essor important. Ces oxydes présentent des propriétés spécifiques et multiples et à ce titre, ils ont des applications dans des domaines variés. Sans être exhaustif, nous pouvons citer par exemple le cas des oxydes ferroélectriques, piézoélectriques, pyroélectriques, les oxydes supraconducteurs à haute température critique, les oxydes magnétiques, les oxydes à magnétorésistance colossale, etc. L'intérêt pour tous ces composés s'inscrit dans la même tendance générale : comprendre les propriétés électroniques et magnétiques des systèmes dans lesquels la charge, le moment de spin et le moment orbital sont couplés. On parle d'un domaine récent : l'électronique de spins. Les applications associées à de tels systèmes sont nombreuses ; on peut citer les avancées liées à la découverte de la magnétorésistance tunnel, puis de la magnétorésistance géante pour le stockage de l'information, avec notamment les mémoires magnétiques à accès aléatoire.

La plupart des structures fonctionnelles en électronique de spins, capteurs et mémoires reposent sur des hétéro-structures basées sur des couches de métaux ferromagnétiques. Pour améliorer leurs performances et ouvrir de nouvelles possibilités d'applications, les chercheurs ont développé de nouveaux systèmes fondés sur des semi-conducteurs à base de monoxydes antiferromagnétiques. Leurs résultats constituent une contribution appréciable pour la compréhension du magnétisme et de son association au transport électronique. Afin de tenir compte de tous les phénomènes observés dans ce type de monoxydes magnétiques, tel que l'effet des inhomogénéités localisées, des travaux théoriques ont été entrepris. Les avancées enregistrées ont nécessité plusieurs décennies. Les travaux portant sur l'investigation et l'analyse du comportement des monoxydes de métaux de transition ont reporté des propriétés

magnétiques et électroniques extraordinaires. L'origine de ces propriétés s'explique par les excitations des spins qui peuvent être alignés dans un ordre ferromagnétique, ferrimagnétique ou antiferromagnétique. Ceci a donné lieu à une grande variété de classes de monoxydes (isolant, semi-conducteur, métallique ou même supraconducteur).

Aujourd'hui, une application classique des monoxydes antiferromagnétiques se retrouve au sein des têtes de lectures magnétiques, dans lesquelles ils sont utilisés pour bloquer l'aimantation d'une couche ferromagnétique adjacente via les effets de polarisation d'échange. Les nouveaux concepts proposés utilisent les oxydes antiferromagnétiques comme éléments actifs en spintronique (pour générer par exemple une magnétorésistance) ou en magnonique pour le guidage, le transport et le traitement de l'information par les ondes de spins. Pour contrôler l'antiferromagnétisme dans les couches et les plans d'oxydes, l'ingénierie des contraintes émerge également comme un outil puissant pour en moduler les fonctionnalités remarquables.

Les excitations collectives et la propagation des ondes de spins, dans les structures tridimensionnelles (3D) ordonnées, sont des phénomènes fascinants [1-2]. Depuis longtemps, ces thématiques ont reçu une attention particulière sur le double plan expérimental et théorique par plusieurs auteurs [3-5]; et ce du fait de leurs importances dans différents domaines. On rappelle que l'investigation des spectres de magnons permet d'accéder aux propriétés de base de la matière condensée [6]. La théorie donne la possibilité d'explorer la matière jusqu'à une échelle nanométrique. Nous signalons que les limites de miniaturisation en microélectronique occupent, avec les récents développements de la spintronique et de l'électronique moléculaire, une place importante dans la problématique liée à la croissance d'oxydes en couches minces et super-réseaux [7-10]. Dans ces gammes d'épaisseurs nanométriques en particulier, la maitrise du procédé de croissance impacte de façon directe la qualité des couches d'oxydes formées et conditionne leur efficacité au sein des dispositifs électroniques et magnétiques [11-12]. Les structures des monoxydes de fin de série sont de bons candidats pour remplacer les semiconducteurs classiques dans le domaine de la nanoélectronique. Les effets de corrélation électronique, engendrés par les électrons des orbitales d, sont à l'origine des propriétés exceptionnelles des monoxydes de fin de série.

Les ondes de spins dans les structures oxydes antiferromagnétique indiquent qu'il n'y pas d'isotropie à longue portée dans 2D ou 3D. Par conséquent, la connaissance de la dynamique des spins dans ces monoxydes est primordiale pour comprendre leurs propriétés

fondamentales et de proposer des combinaisons idéales permettant de contrôler l'environnement magnétique pour des utilisations optimales dans différents domaines.

On note que la transition vers un état supraconducteur, rencontrée dans quelques composés d'oxydes de métaux de transition, ouvre un grand champ de réflexions et de nouvelles applications. La diversité des propriétés rencontrées est attribuée aux effets de corrélation électronique dus à la répulsion de Coulomb des électrons des orbitales *d*. Ainsi les oxydes de métaux de transition de fin de série MnO, FeO, CoO et NiO, qui possèdent une structure cristalline relativement simple, sont considérés comme des prototypes pour étudier les effets de corrélation cités.

L'étude des surfaces des monoxydes de métaux de transition constitue également un domaine d'intense activité. L'intérêt a été encouragé par les récents développements des techniques expérimentales d'élaboration ainsi que les méthodes de caractérisation. Ainsi, il est désormais possible de contrôler de manière précise, la croissance des films sur un substrat et de produire des échantillons de dimensionnalité réduite telles que les surfaces ou les couches minces, possédant des propriétés très diverses différentes de celles du cristal. La présence d'états de surface influence de manière importante l'adsorption d'atomes à la surface et peut orienter les processus catalytiques à la surface qui joue ainsi un rôle important. La présence de cette dernière fait apparaitre de nouveaux effets dits de surface. Par conséquent, les applications pratiques des monoxydes dépendent fortement des propriétés de leurs surfaces. Leur étude dynamique peut par ailleurs conduire à une meilleure connaissance de leurs caractéristiques et constituer ainsi un moyen de contrôle de fabrication fiable de composants électronique, mécaniques ou optiques, mais l'étude des phénomènes de surface des oxydes nécessite une description à l'échelle atomique qui fait toute la difficulté de leur modélisation. Les modèles théoriques doivent prendre en compte le caractère atomique de la matière avec une précision suffisante.

L'étude des excitations magnétiques de surface a fait l'objet d'un grand intérêt dans la perspective de corréler les propriétés magnétiques présentes dans le volume avec celles induites par la présence d'une réduction de symétrie (surfaces, interfaces). Par ailleurs, la mise en application du théorème de Bloch pour l'étude théorique des excitations magnétiques en surface s'avère impossible par le fait qu'il y a brisure de symétrie de translation. Ceci rend difficile la résolution des systèmes d'équations du mouvement de spins d'un solide semi infini ; d'où la nécessité d'élaborer des méthodes analytiques appropriées pour résoudre ce type de problème.

Dans ce travail de thèse, nous avons réalisé une étude théorique qui porte sur le mouvement de précession des spins dans les monoxydes de métaux de la première série qui adoptent une structure de type rock-salt (type NaCl). Ces monoxydes sont presque toujours non-stœchiométriques, c'est-à-dire qu'ils présentent un excès en métal ou en oxygène. Cette non-stœchiométrie est considérée comme une inhomogénéité qui est capable de modifier les propriétés magnétiques. En outre, ces monoxydes sont presque tous semi-conducteurs, et quelques-uns sont conducteurs, contrairement aux monoxydes des métaux classiques.

Les excitations et la dynamique des spins dans les structures de monoxydes de types semiconducteurs antiferromagnétiques sont examinées en utilisant la méthode de raccordement. Les spectres magnétiques sont déterminés et discutés en fonction des différents paramètres caractérisant ces monoxydes. En particulier, nous avons déterminé numériquement les états énergétiques localisés, les densités d'états magnoniques locales (LMDOS) en présence de deux types de surface ; à savoir une surface plane et une surface vicinale (présentant une marche et deux terrasses). Les interactions entre les états localisés d'énergie et les modes du continuum font apparaître dans les spectres magnétiques plusieurs oscillations. Certaines d'entre elles sont de type Fano.

La thèse s'articule en quatre chapitres que nous développerons comme suit. Le premier chapitre est réservé au formalisme théorique traitant des excitations de spins dans les structures monoxydes parfaites de première série. Les monoxydes de type MO ont été définis. Les points de haute symétrie sont également rappelés. Les courbes de dispersion des ondes de spins sont tracées et commentées.

Dans le deuxième chapitre, une étude théorique sur la dynamique de surfaces des monoxydes semi-infinis est présentée. Deux formes de surface sont considérées (il s'agit des surfaces plane et vicinale). Un aperçu sur les différentes méthodes disponibles pour étudier les systèmes antiferromagnétiques avec brisure de symétrie est donné. Un accent particulier a été mis sur la méthode de raccordement, du fait qu'elle sera appliquée pour déterminer les états localisés de spins et les LMDOS magnoniques.

Le troisième chapitre est consacré à l'étude théorique de la dynamique des surfaces des monoxydes semi-infinis suivant la direction [001]. L'étude est menée par l'application de la méthode de raccordement. Nous commençons par rappeler les directions de symétrie de la surface associée à la direction [001]. Ensuite, les résultats numériques de la simulation sont présentés pour les spectres magnétiques qui décrivent les états localisés de spins et les densités locales d'états magnoniques (LMDOS) et ce dans deux cas de surface, à savoir la

surface plane et la surface vicinale (contenant une marche et les deux terrasses atomiques). Nous terminons le travail par des discussions et interprétations.

Dans le quatrième chapitre, nous nous sommes intéressés à l'influence de la direction cristallographique sur le mouvement de précession des spins dans les réseaux de monoxydes. Nous avons étudié la dynamique des surfaces des monoxydes semi-infinis, aussi, suivant la direction [011]. Le travail est entamé par la détermination de la matrice dynamique correspondant à la nouvelle direction. Enfin de compte, les grandeurs magnoniques et les spectres magnétiques des monoxydes dans la direction [011] sont calculées en suivant les mêmes étapes que celles indiquées pour le chapitre précédent.

Nous avons terminé notre travail par la présentation d'une conclusion générale et les perspectives offertes dans le domaine étudié.

Références bibliographiques

- [1] B. H. Moeckly and K. Char, Appl. Phys. Lett. 71, 2526 (1997).
- [2] C. Shen. A. Kahn and J. Schwartz, J. Appl. Phys. 89, 449 (2001).
- [3] M. Abou Ghantous and A. Khater, Eur. Phys. J. B 12 (1999).
- [4] M.G. Pini, P. Pliti and R. L. Stamps, Phys. Rev. B 72, 014454 (2005).
- [5] B. Bourahla and O. Nafa, Spin 6, 1650007 (2016).
- [6] A. F. Albuquerque, A. S. Pires and M. E. Gouvea, Phys. Rev. B 72, 174423 (2005).
- [7] R. Jansen, Nat. Mater. 11, 400 (2012).
- [8] D. Buchanan, IBM J. Res. Dev. 43, 245 (1999).
- [9] J. Robertson, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 28, 265 (2004).
- [10] R. M. Wallace and G. D. Wilk, Crit. Rev. Solid State 28, 231 (2003).
- [11] H. L. Meyerheim, R. Popescu, N. Jedrecy, M. Vedpathak, M. Sauvage-Simkin, R. Pinchaux, B. Heinrich and J. Kirschner, Phys. Rev. B 65, 144433 (2002).
- [12] X. G. Zhang, W. H. Butler and A. Bandyopadhyay, Phys. Rev. B 68, 092402 (2003).

Chapitre I

Excitations des spins dans les structures monoxydes parfaites de première série

Introduction I. Monoxydes de la première série de type MO I.1. Propriétés des monoxydes de métaux de transition I.2. Structure électronique des oxydes de métaux de transition II. Première zone de Brillouin et direction de symétrie II.1. Symétrie cristalline II.2. Maille élémentaire du réseau direct II.3. Réseau réciproque II.4. Zone de Brillouin II.5. Réseau réciproque du système cubique à faces centrées III. Formalise théorique général traitant des ondes de spins dans les monoxydes parfaits III.1. Approche théorique du traitement d'ondes de spins III.2 Approche semi-classique III.3 Approche quantique III.3.1 Transformation de Holstein-Primakoff III.3.2. Transformation de Bogolioubov IV. Dynamique de spins dans les monoxydes antiferromagnétiques parfaits IV.1. Système model IV.2. Courbe de dispersion V. Conclusion du chapitre I Références du chapitre I

Sommaire

Introduction

La structure des matériaux à l'échelle atomique, suscite de nombreux travaux depuis plusieurs années. Outre les progrès réalisés dans le domaine de l'électronique classique liés au développement de technologies, permettant l'intégration de composants de plus en plus petits, ces travaux ont permis de mettre en évidence des propriétés originales résultant de l'association ou de la structuration périodique de certains matériaux à des échelles allant du micrométrique au nanométrique. Des composants ou dispositifs nouveaux (jonctions magnétiques tunnel, vannes de spins, cristaux photoniques, magnéto-photoniques ou magnoniques, ...) [1-5] ont ainsi été développés. Ces composants ou multi-matériaux sont réalisés par des technologies appropriées. Ces dernières font le plus souvent intervenir des procédés de dépôt spécifiques, tels que la pulvérisation cathodique, l'épitaxie par jet moléculaire ou l'ablation laser, pour réaliser de manière contrôlée des empilements de matériaux qui peuvent aussi être structurés par des méthodes de lithographie (photolithographie conventionnelle ou par faisceaux d'ions).

Dans le même temps, afin d'élargir la gamme de fonctionnalités des dispositifs, les matériaux élaborés se sont énormément diversifiés. Parmi eux figurent en très bonne place les oxydes métalliques, grâce à la grande variété de leurs propriétés physico-chimiques. Ces composés sont largement utilisés dans de nombreuses applications telles que les cellules thermoélectriques, les cellules solaires, les capteurs, les transistors et les dispositifs optoélectroniques en raison de leurs propriétés mécaniques, chimiques, électriques optiques et magnétique exceptionnelles. Le présent chapitre est consacré aux formalismes théoriques traitant les excitations de spins dans les structures monoxydes parfaites de la première série. Cette théorie permet la modélisation du mouvement de précession des vecteurs de spins dans les oxydes antiferromagnétiques, à basse température, que nous retiendrons pour le reste de l'étude. Les monoxydes de type MO ont été définis. Les points de haute symétrie sont rappelés aussi. Les courbes de dispersion des ondes de spins sont tracées et commentées.

I. Monoxydes de la première série (de type MO)

Au dessus de la température de Néel, les oxydes de métaux de transition MnO, FeO, CoO et NiO sont paramagnétiques et cristallisent dans la structure de type chlorure de sodium NaCl. Dans cette configuration, nous avons deux sous-réseaux à faces centrées (cfc) imbriqués et décalés de la moitié du paramètre du réseau, suivant la direction des plus proches voisins. L'un de ces sous-réseaux est associé aux anions d'oxygène et l'autre aux cations métalliques.

En dessous de la température de Néel, ces oxydes deviennent magnétiques et caractérisés par un ordre antiferromagnétique des ions métalliques. En effet, les ions métalliques possèdent un moment magnétique non nul dû à la différence de population des orbitales atomiques *d* pour les deux directions de spins majoritaire et minoritaire. Toutefois dans le solide, l'antiferromagnétisme généré par les atomes métalliques peut être réalisé de deux façons différentes. Une situation antiferromagnétique pour laquelle les moments magnétiques des ions métalliques d'un même plan (001) sont parallèles entre eux tandis que les atomes métalliques des plans (001) suivant, sont antiparallèles aux premiers.

Un second ordre antiferromagnétique, pour lequel deux ions métalliques seconds voisins, avec un atome d'oxygène entre les deux, possèdent des moments magnétiques de directions contraires comme indiqué sur la figure (I.1).



Fig.I.1. Les deux possibilités d'ordre antiferromagnétique pour les monoxydes de métaux de transition de fin de série.

Dans cette dernière situation, les ions métalliques d'un même plan (111) ont leur direction de spins parallèle entre eux et antiparallèle aux ions métalliques du plan (111) suivant. Toutefois, les stabilités de ces deux configurations ne sont pas équivalentes, et seule la deuxième phase antiferromagnétique par plans (111) a pu être révélée. Pour préciser les mécanismes favorisant cet ordre antiferromagnétique de type 2, les oxydes de la première série, pour laquelle l'occupation des états 3d l'atome du métal de transition est supérieur à 5, c'est-à-dire plus que la moitié. L'orbitale 2p de l'oxygène suivant une direction quelconque (par exemple Oz pour fixer les idées) est occupée par deux électrons de spins contraires. L'interaction entre les deux sous-réseaux associés à l'oxygène et l'autre aux atomes de l'oxyde, favorise un ordre antiferromagnétique pour cations seconds voisins des faces opposées de la cellule conventionnelle, puisque dans cette configuration, chaque électron 2p de l'oxygène peut "sauter" sur l'orbitale 3d de spins minoritaires du cation. En revanche, dans la configuration antiferromagnétique par plan suivant la direction (001) (AF1), l'interaction entre premiers

voisins, entre l'oxygène et le cation nécessite un renversement de spins. La stabilisation de l'antiferromagnétisme de type 2 (AF2), et donc due à la conservation du spin dans l'interaction premiers voisins, mécanisme désigné de super échange. L'un de ces électrons peut sauter sur l'orbitale 3d de l'atome métallique de l'une des faces du cube. Or, si l'occupation de la couche 3d de l'atome de métal de transition est supérieure à la moitié, le saut de l'électron de l'orbitale 2p de l'oxygène sur la couche 3d de l'oxyde est favorisé si le spin de cet électron est différent. La direction suivant laquelle les moments de spins sont orientés n'est pas encore clarifiée. L'orientation des spins fut initialement prédite dans la direction [110] par Roth [6-8]. Puis Grimsditch [9] a prédit une orientation des spins suivant [100].

I.1. Propriétés des monoxydes de métaux de transition

Les principales propriétés des monoxydes de métaux de transition sont regroupées dans le tableau suivant :

| Composé | Nature | Magnétisme |
|------------------|----------------------------|-----------------------------------|
| TiO _x | Métal | Pauli |
| VO _x | Métal | Pauli |
| MnO | Semi-conducteur, type n, p | Antiferro, T _N = 118 K |
| FeO _x | Semi-conducteur, type n | Antiferro, T _N = 198 K |
| CoO | Semi-conducteur, type p | Antiferro, $T_N = 293 \text{ K}$ |
| NiO | Semi-conducteur, type p | Antiferro, $T_N = 520 \text{ K}$ |
| CuO | Isolant | Antiferro, $T_N = 230 \text{ K}$ |

La différence de comportement entre CuO provient d'une différence de structure : CuO est monoclinique alors que MnO, CoO et NiO sont cubiques au dessus de la température de Néel. Lorsque l'on se déplace de la gauche vers la droite dans une ligne de la classification périodique (appelée période), les orbitales sont de plus en plus contractées. Ainsi, pour les oxydes des métaux de transition du début de la série (Ti, V) les bandes « métalliques » sont larges alors que pour les oxydes de la fin de la série, les bandes sont étroites. L'état le plus stable pour les oxydes du début de la série correspond aux électrons appariés : les bandes sont partiellement remplies, ce qui justifie le caractère métallique de ces oxydes. Dans le cas des oxydes de la fin de la série, puisque les bandes sont étroites, on pourra observer un état avec des spins non appariés, ce qui explique les propriétés magnétiques et l'absence de propriétés métalliques. Le caractère antiferromagnétique de ces composés provient du super-échange à travers les atomes d'oxygène car l'angle M-O - M qui vaut 180°.

Au final, on notera que plus la différence d'électronégativité est faible, plus le paramètre de maille diminue et plus la température de Néel T_N augmente.

I.2. Structure électronique des oxydes de métaux de transition

Considérons une structure NaCl à laquelle appartiennent aussi bien les monoxydes de métaux de transition. Chaque cation est entouré de six anions et réciproquement. Les orbitales sont répertoriées selon les axes cartésiens dirigés suivant les arêtes de la maille élémentaire.

Les niveaux d'énergies 3*d* d'un atome de métal de transition isolé sont cinq fois dégénérés. Lorsque celui-ci est placé au centre d'un octaèdre d'oxygène, sa dégénérescence est levée par le champ cristallin anisotrope lié à la présence des atomes adjacents. La figure I-2 schématise l'influence du champ cristallin octaédrique sur les niveaux d'énergies 3*d*, qui sont séparé en deux bandes :

- Une bande triplement dégénérée t_{2g} correspond aux orbitales d_{xy} , d_{yz} et d_{xz} et dont les lobes pointent entre les ligands, ceci fait en sorte qu'un électron occupant une de ces orbitales subit une faible répulsion, l'énergie de ces orbitales est donc diminuée.
- La bande doublement dégénérée eg correspondant aux orbitales d_{x2-y2} et d_{3z2-r2} et dont les lobes pointent vers les ligands telle que la répulsion électronique est très forte et l'énergie de ces orbitales est donc augmentée.

Il faut noter que toute distorsion de la symétrie octaédrique entraîne la levée de la dégénérescence des bandes e_g et t_{2g} . Généralement, la structure électronique des bandes dépend fortement de la symétrie autour de l'ion du métal de transition et du nombre d'électrons de l'ion, i.e. du numéro atomique Z de l'élément et de son état d'oxydation. En effet, pour les métaux de transition dits légers, tels que Ti, V et Cr, le niveau de Fermi croise la bande t_{2g} . Par contre, pour les métaux de transitions lourds tels que Cu et Ni, les états de la bande t_{2g} sont entièrement occupés et le niveau de Fermi traverse la bande e_g .



Fig.I.2. Effet du champ cristallin sur les orbitales 3d en symétrie octaédrique. Il y a une levée de la dégénérescence et l'apparition des niveaux \mathbf{e}_{g} et \mathbf{t}_{g} .

En conséquence, les niveaux d'énergie des orbitales O_{2p} changent selon l'élément de métal de transition. Dans les oxydes, les niveaux d'énergie des orbitales 3d et les orbitales O_{2p} se rapprochent au fur et à mesure que la masse atomique du métal de transition augmente. En effet, le potentiel chimique des électrons *d* diminue et se rapproche de celui des orbitales O_{2p} , ce qui donne lieu à une forte hybridation entre les électrons *d* et 2p du ligand pour les éléments lourds. En revanche, pour les oxydes de métaux de transition légers, les états 2p de l'oxygène sont éloignés des états 3d du métal. Les électrons de ces états ne sont donc pas fortement hybridés.

II. Première zone de Brillouin et direction de symétrie des monoxydes parfaits

La cristallographie est la science qui se consacre à l'étude de l'organisation de la matière (sa structure) à l'échelle atomique. Elle s'intéresse essentiellement à la distribution spatiale des atomes ou groupes d'atomes non seulement dans les solides mais aussi dans d'autres formes de la matière telles que liquides, gaz ou autres. Ainsi, les relations entre la

structure de la matière et les propriétés physiques font aussi partie du champ d'intérêt de la cristallographie.

II.1. Symétrie cristalline

Un cristal est un empilement périodique de mailles contenant un motif chimique.

- Une maille est alors l'entité de base dont la reproduction périodique engendre le système cristallin.
- Le motif est l'entité chimique (ion, molécule, atome) située aux nœuds du réseau cristallin.
- Le réseau est l'ensemble des positions des nœuds.

À partir d'un nœud de référence du réseau, noté par O, et de trois vecteurs de base $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$, on peut engendrer le réseau. Tout point M (c'est-à-dire tout nœud) est défini par :

$$O\vec{M} = x\vec{a} + y\vec{b} + z\vec{k} \qquad \text{avec} \quad (x, y, z) \in \mathbb{R}^3$$
(1.1)

Les trois vecteurs $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ sont appelés vecteurs fondamentaux, et le parallélépipède construit par ces trois vecteurs est appelé maille fondamentale (ou maille élémentaire). Les longueurs *a,b* et *c* des côtés de ce parallélépipède sont les paramètres de maille. Signalons que très souvent, pour des raisons de commodité, le système cristallin n'est pas décrit par une maille fondamentale mais par une maille multiple contenant plusieurs nœuds, celle-ci faisant mieux apparaître les éléments de symétrie du réseau. On appelle multiplicité de la maille le nombre de nœuds qu'elle contient. Le volume de la maille est donné par le produit mixte :

$$V = \vec{a}.(\vec{b} \wedge \vec{c}) \tag{1.2}$$

Les opérations de symétrie laissent la structure cristalline invariante, elles comprennent les opérations de translations du réseau et/ou les transformations ponctuelles telles que les rotations. La périodicité et la symétrie cristalline permettent de simplifier le problème du calcul des structures de bandes. La forme et la solution de l'équation globale du cristal se simplifient aussi en se basant sur cette symétrie. Dans un cristal infini, le potentiel est invariant par une translation du réseau, ce qui permet d'appliquer le théorème de Bloch et d'écrire la fonction d'onde globale du système comme une somme de fonctions propres. Donc le problème de la structure électronique se réduit par exemple à trouver les solutions propres à l'intérieur d'une cellule unité.

II.2. Maille élémentaire du réseau direct

On définit la maille élémentaire du réseau direct (appelée aussi maille primitive) comme étant le parallélépipède défini par les trois vecteurs de bases. Une maille élémentaire ou primitive permet de remplir tout l'espace réel, si on lui applique les opérations de symétrie. Une maille primitive est une maille de volume minimal, qui ne contient qu'un seul nœud.

On peut obtenir la maille élémentaire, du réseau direct, en traçant les plans médians qui coupent des lignes joignant un nœud à tous ces voisins. Le volume enclos obtenu est le plus petit, il désigne la maille élémentaire ou primitive. On appelle aussi la maille de Wigner- Seitz du réseau directe.

II.3. Réseau réciproque

A toute structure cristalline est associée deux réseaux, le réseau direct et le réseau réciproque appelé aussi réseau de Fourier. Cette appellation dérive du fait que toutes les propriétés du cristal obéissent à sa périodicité, ce qui permet de développer ses propriétés en série de Fourier. Comme pour le réseau direct, le réseau réciproque est défini par trois vecteurs de bases $(\vec{A}, \vec{B}, \vec{C})$:

$$\vec{A} = \frac{2\pi}{a}\vec{u}, \quad \vec{B} = \frac{2\pi}{b}\vec{v}, \quad \vec{C} = \frac{2\pi}{c}\vec{w}$$
(1.3)

Avec $(\vec{u}, \vec{v}, \vec{w})$ comme vecteurs du réseau direct.

Tout point de ce réseau reste inchangé par une translation définie par son vecteur

$$\vec{G} = h\vec{A} + k\vec{B} + l\vec{C} \tag{1.4}$$

où h, k et l sont les indices de Miller.

Le théorème de Bloch garantit l'invariance des propriétés par symétrie et ceci s'applique également au potentiel cristallin.

II.4. Zone de Brillouin

De la même manière qu'on a défini la maille de Wigner-Seitz du réseau direct, on définit la zone de Brillouin dans le réseau réciproque. La première zone de Brillouin est le plus petit volume entièrement compris entre les plans médiateurs des vecteurs du réseau réciproque tracés à partir de l'origine. Le réseau direct et le réseau réciproque sont liés entre eux.

II.5. Réseau réciproque du système cubique à faces centrées

De la même façon, on définit les vecteurs fondamentaux \vec{A} , \vec{B} et \vec{C}

$$\vec{A} = \frac{2\pi}{a}(\vec{x} + \vec{y} - \vec{z}), \quad \vec{B} = \frac{2\pi}{b}(-\vec{x} + \vec{y} + \vec{z}), \quad \vec{C} = \frac{2\pi}{c}(\vec{x} - \vec{y} + \vec{z})$$
(1.5)

Pour la première zone de Brillouin relative à la structure cubique à faces centrées, on obtient dodécaèdre. Les limites de la première zone de Brillouin sont les plans perpendiculaires aux huit vecteurs du réseau réciproque et situés en leurs milieux.

La première zone de Brillouin constitue l'une des bases essentielles de l'analyse des structures de bandes, elle permet aussi de représenter les points de haute symétrie. L'intégration sur *k* dans la zone de Brillouin a été effectuée, en utilisant le schéma de Monkhorst et Pack [10]. Le maillage de la zone de Brillouin par les vecteurs d'ondes « *k*-mesh » est suffisant pour représenter tout le cristal.

La figure I.3 montre ces points de haute symétrie pour un système cubique à faces centrées et qui s'appliquent aussi bien aux monoxydes de type rocksalt.



Fig.I.3. Dans la structure parfait, représentation de la première zone de Brillouin avec les points de haute symétrie.

III. Formalisme théorique général traitant des ondes de spins dans les monoxydes parfaits

La notion des excitations de spins et la propagation des ondes de spins ont été introduites pour la première fois par Bloch [11]. Il a montré que, à basses énergies, l'Hamiltonien d'Heinsberg décrit un état dans lequel le renversement d'un spin donné est délocalisé sur tout le réseau.

Par la suite, la théorie d'ondes de spins a été reprise aux années 50 et devenue actuellement l'une des bases essentielles du magnétisme [12-18]. Elle a pour objet l'étude des phénomènes collectifs qui apparaissent lorsque des entités portent un moment magnétique qui interagissent entre elles ou avec un champ magnétique extérieur.

III.1. Approche théorique de traitement d'ondes de spins

Dans les systèmes isolants et semi-conducteurs, les électrons étant localisés sur les sites atomiques, on peut considérer les spins atomiques comme des quantités ordonnées formant ainsi un système de type ferromagnétique, antiferromagnétique ou ferrimagnétique suivant l'ordre d'arrangement des spins.

Les interactions magnétiques proviennent des recouvrements orbitaux provoquant des échanges directs ou indirects exprimés sous la forme d'intégrales d'échanges J(l,l'), dans la plus part des cas, il est alors suffisant de tenir compte uniquement des interactions d'échange entres premiers voisins. L'hamiltonien utilisé pour cela est le modèle de Heisenberg [19].

$$H = -2\sum_{\langle l,l'\rangle} J(l,l').\vec{S}_l \vec{S}_{l'}$$
(1.6)

Ici *J* est la constante d'échange (J < 0) pour le cas antiferromagnétique, contrairement au cas ferromagnétique, les *l* sont des sites atomiques contenant les vecteurs de spins (les nœuds d'un réseau de Bravais), le *S*_l désignent le spin occupant le site *l* et *S*_{l'} est l'un de ses voisins.

Le symbole $\langle l, l' \rangle$ indique qu'une sommation sur tous les sites de spins voisins et sur tous les plans atomiques.

Les deux hypothèses fondamentales du modèle sont les suivantes :

-Tout d'abord, on suppose que le champ moléculaire induit une transition vers une phase magnétique ordonnée.

- La seconde hypothèse consiste à ne considérer que de petites déviations autour de cet état de champ moyen.

Comme nous le verrons par la suite, la théorie des ondes de spins est une théorie du champ, dont les quasi-particules associées sont appelées magnons. Ces excitations correspondent physiquement à des modes de précession des spins autour de la direction locale du moment ordonné. Elles sont caractérisées par un déphasage de site en site.

III.2 Approche semi-classique

Dans cette approche, les spins sont assimilés à des vecteurs classiques à composantes de longueur unité [20]. Si on considère un arrangement régulier de spins, couplés par des interactions d'échange antiferromagnétique, alors l'énergie d'échange de l'un des spins de la couche *l*, avec l'ensemble des sites voisins est gouvernée par l'équation (1.6), qu'on peut réécrire comme suit [21]

$$H = -\vec{M_l} \cdot \vec{B} \tag{1.7}$$

$$\vec{M}_{l} = g\mu_{B}\vec{S}_{l} \tag{1.8}$$

$$\vec{B} = \frac{2J}{g\mu_B} \sum_{l'} \vec{S}_{l'}$$
(1.9)

Où g est le facteur de Landé, J est la constante d'échange (J < 0) pour le cas antiferromagnétique, μ_B est le magnéton de Bohr, $\vec{M_l}$ est le moment magnétique de spin $\vec{S_l}$, et \vec{B} est le champ magnétique créé par les spins voisins au site l.

D'après la mécanique, la vitesse de variation du moment cinétique $\hbar \vec{S}_l$ du spin \vec{S}_l est donnée par

$$\hbar \frac{d \vec{S}_{l}}{dt} = -\left[\vec{M} \wedge \vec{B}\right] = -2J\left[\vec{S}_{l} \wedge \sum_{l'} \vec{S}_{l'}\right]$$
(1.10)

Dans un état stationnaire (pas d'onde de spins excités), on aura

$$\hbar \frac{d\vec{S_l}}{dt} = 0 \tag{1.11}$$

Mais dans l'état excité, on a la rotation des spins suivant l'axe (Oz), alors on décompose \vec{S}_l comme suit

$$\vec{S}_l = \vec{S}_0 + \delta \vec{S}_l \tag{1.12}$$

Avec $\vec{\delta S_l}$ représente la déviation et $\vec{S_0}$ est la composante de $\vec{S_l}$ suivant l'axe (*Oz*) qu'on suppose indépendant du temps *t*, ainsi l'équation (1.5) prendra la forme

$$\hbar \frac{d(\delta \vec{S_l})}{dt} = -2J\sum_{l'} \left[(\vec{S_0} + \delta \vec{S_l}) \wedge (\vec{S_0} + \delta \vec{S_{l'}}) \right] \approx -2J\sum_{l'} \left[(\delta \vec{S_l} - \delta \vec{S_{l'}}) \wedge \vec{S_0} \right]$$
(1.13)

A basse température, $\vec{\delta S_l}$ et $\vec{\delta S_l}$ sont très petits. $\vec{S_0} \approx S.\vec{k}$, \vec{k} est le vecteur unitaire suivant l'axe (*Oz*), comme indiqué sur la Fig.I.4.



Fig.I.4. Représentation des composantes d'un spin.

Soient $(\vec{S}_l)_x$, $(\vec{S}_l)_y$ les composantes de \vec{S}_l suivant les plans (Ox) et (Oy), $(\vec{\delta S}_l)_x = (\vec{S}_l)_x$ et $(\vec{\delta S}_l)_y = (\vec{S}_l)_y$.

L'équation (1.13) peut se réécrire comme suit :

$$\hbar \frac{d(S_l)_x}{dt} = 2J \sum (S_l)_y - (S_{l'})_y \tag{1.14}$$

$$\hbar \frac{d(S_l)_y}{dt} = 2J \sum (S_l)_x - (S_{l'})_x \tag{1.15}$$

$$\hbar \frac{d(S_l)_z}{dt} = 0 \tag{1.16}$$

On cherche des solutions de la forme d'ondes progressives. Alors on pose :

$$(S_l)_x = Ue^{i(\vec{k}\cdot\vec{r}-\omega t)} \text{ et } (S_l)_y = Ve^{i(\vec{k}\cdot\vec{r}-\omega t)}$$
(2.17)

Avec U et V des constantes, ω la pulsation de l'onde, \vec{k} et \vec{r} sont, respectivement, le vecteur d'onde et le vecteur position de \vec{S}_l .

En injectant les solutions choisies dans les équations (1.14) et (1.15), on obtient alors

$$-i\hbar\omega U = 2JS_{l}\eta_{l}\left[1 - \frac{1}{Z_{l}}e^{i\vec{(k \cdot r)}}\right]V$$
(1.18)

$$-i\hbar\omega V = 2JS_{l}\eta_{l}\left[1 - \frac{1}{Z_{l}}e^{i(\vec{k}\cdot\vec{r})}\right]U$$
(1.19)

Les constantes Z_l et η_l sont les nombres de proches voisins (nombre de coordination). Les solutions non-triviales de U et de V correspondent à

$$\hbar\omega = 2JS_l\eta_l [1 - \frac{1}{Z_l}\sum_{\vec{r}} e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r})}]$$
(1.20)

Cette dernière équation est appelée relation de dispersion des ondes de spins. Elle permet de tracer les courbes de dispersion des magnons dans le système parfait.

III.3 Approche quantique

Dans le cas d'un composé antiferromagnétique, on peut montrer [22] que l'état ordonné fondamental n'est pas un état propre de l'Hamiltonien d'Heisenberg. On construit alors la théorie des ondes de spins à partir d'un état fondamental approximé, (ayant une énergie classique la plus faible - correspondant à l'état de Néel), dans lequel les spins d'un sous-réseau sont opposés à ceux de l'autre sous-réseau. Si on se fixe comme objectif d'étudier les excitations magnétiques et non l'état fondamental, une telle approximation est raisonnable. Cette affirmation se montre justifiée au niveau expérimental pour la plupart des composés.

L'étude des excitations collectives s'inscrit naturellement dans la théorie de la seconde quantification en usant des transformations de Holstein et Primakoff. Ces derniers ont été les pionniers de la théorie des ondes de spins [23]. En incluant les interactions de types dipolaires et pseudo-dipolaires, cela a donné naissance à un nouveau et puissant formalisme qui est

devenu la base de plusieurs études théoriques sur les ondes de spins dans les matériaux ferromagnétiques [24-28]. Dans le cas antiferromagnétique, la situation est assez semblable au cas ferromagnétique à T finie.

III.3.1 Transformation de Holstein-Primakoff

Comme les spins ont des orientations différentes sur les deux sous-réseaux, on peut distinguer deux cas possibles :

Sous-réseau A :

En se basant sur les opérateurs de création a^+ et d'annihilation a^- , on peut écrire :

$$S_{i}^{z} = S - a_{i}^{+} a_{i}$$

$$S_{i}^{+} = \sqrt{2S} \sqrt{1 - \frac{a_{i}^{+} a_{i}}{2S}} a_{i} \cong \sqrt{2S} a_{i}^{-},$$

$$S_{i}^{-} = \sqrt{2S} a_{i}^{+} \sqrt{1 - \frac{a_{i}^{+} a_{i}}{2S}} \cong \sqrt{2S} a_{i}^{+}$$

Sous-réseau B : $j \in B$

$$\begin{split} S_j^z &= -S + a_j^+ a_j \\ S_j^+ &= \sqrt{2S} a_j^+ \sqrt{1 - \frac{a_j^+ a_j}{2S}} \cong \sqrt{2S} a_j^+ \\ S_i^- &= \sqrt{2S} \sqrt{1 - \frac{a_j^+ a_j}{2S}} a_j \cong \sqrt{2S} a_j \end{split}$$

Nous calculons préalablement le produit $\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$ tel que $i \in A$ et $j \in B$

$$\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j = S_i^z S_j^z + \frac{1}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+)$$

Notre Hamiltonien devient alors

$$H = J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[-S^2 + S(a_j^+ a_j + a_i^+ a_i + a_i a_j + a_i^+ a_j^+) \right]$$
(1.21)

Le réseau étudié est bipartite, ie un site *i* du sous réseau *A* a tous ses plus proches voisins (notés symboliquement $i + \vec{\tau}$) sur le sous réseau *B*. Nous pouvons donc réécrire l'Hamiltonien comme :

$$H = \frac{-JS^2 Nz}{2} + SJ \sum_{i} \sum_{\bar{\tau}} (a_i^+ a_i + a_{i+\tau}^+ a_{i+\tau} + a_i a_{i+\tau} + a_i^+ a_{i+\tau}^+)$$
(1.22)

Les transformée de Fourier des opérateurs a et a^+ et leurs transformées inverses sont

$$a_{\vec{k}}^{+} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{i} a_{i}^{+} e^{i\vec{k}\vec{r}_{i}} \implies a_{i}^{+} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k} a_{\vec{k}}^{+} e^{i\vec{k}\vec{r}_{i}} ,$$

$$a_{\vec{k}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{i} a_{i} e^{-i\vec{k}\vec{r}_{i}} \implies a_{i} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k} a_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{r}_{i}} ,$$

$$(1.23)$$

Ainsi, l'hamiltonien se réécrit sous la forme

$$H = \frac{-2JS^2 N_Z}{2} + \frac{SJ}{2} \sum_{\vec{k}} \sum_{\vec{r}} [2a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + a_{\vec{k}}a_{-\vec{k}}e^{-i\vec{k}\vec{r}} + a_{\vec{k}}^+ a_{-\vec{k}}e^{-i\vec{k}\vec{r}}]$$
(1.24)

Les sommes sur les exponentielles complexes se traduisent par des cosinus comme calculés ci-dessous

$$\vec{\tau} \in \left\{ \begin{pmatrix} +1\\0\\0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -1\\0\\0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0\\+1\\0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0\\-1\\0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0\\0\\+1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0\\0\\-1 \end{pmatrix} \right\}$$
$$\sum_{\tau} e^{\pm i\vec{k}.\vec{r}} = e^{ikx} + e^{-ikx} + e^{iKy} + e^{-iky} + e^{ikz} + e^{-ikz} = 2[\cos(kx) + \cos(ky) + \cos(kz)] = \gamma(\vec{k})$$

Et l'hamiltonien s'écrit sous la forme suivante

$$H = \frac{-2JS^2 Nz}{2} + JSz \sum_{\vec{k}} (a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + \gamma(\vec{k})(a_{\vec{k}} a_{-\vec{k}} + a_{\vec{k}}^+ a_{-\vec{k}}^+))$$
(1.25)

III.3.2. Transformation de Bogolioubov

C'est une méthode de seconde quantification approchée. L'hamiltonien n'est pas encore diagonal puisqu'il contient des termes du type $a_{\vec{k}}a_{-\vec{k}}$ et $a_{\vec{k}}^+a_{-\vec{k}}^+$, ce qui induit à une précession elliptique des spins. Et comme nous sommes dans la limite des ondes de spins, le système doit posséder une polarisation circulaire. Par conséquent, nous effectuons une transformation de Bogolioubov en imposant que le nouvel hamiltonien, soit de la forme suivante

$$H = \sum_{\vec{k}} \omega_{\vec{k}} \alpha_{\vec{k}}^+ \alpha_{\vec{k}} + cst$$
(1.26)

où les opérateurs ($\alpha_{\vec{k}}^+$ et $\alpha_{\vec{k}}$) sont des combinaisons linéaires des opérateurs a et a⁺

$$\alpha_{\vec{k}} = u_{\vec{k}}a_{\vec{k}} + v_{\vec{k}}a_{-\vec{k}}^{+}$$

$$\alpha_{\vec{k}}^{+} = u_{\vec{k}}a_{\vec{k}}^{+} + v_{\vec{k}}a_{-\vec{k}}^{-}$$
(1.27)

Nous imposons aussi les relations de commutation suivantes

$$\begin{cases} \left[\alpha_{\vec{k}}, \alpha_{\vec{k}'}\right] = \left[\alpha_{\vec{k}}^{+}, \alpha_{\vec{k}'}^{+}\right] = 0\\ \left[\alpha_{\vec{k}}, \alpha_{\vec{k}'}\right] = \delta_{\vec{k}\vec{k}'} \end{cases}$$

Nous devons donc avoir

$$\left[H,\alpha_{\vec{k}}\right] = -\omega_{\vec{k}}\alpha_{\vec{k}} \tag{1.28}$$

Si, nous exprimons cette relation par l'introduction des opérateurs de création et d'annihilation (a et a^+), nous obtenons

$$a_{\vec{k}} \left[-JSzu_{\vec{k}} + JSz\gamma(\vec{k})v_{\vec{k}} \right] + \left[-JSz\gamma(\vec{k})u_{\vec{k}} + JSzv_{\vec{k}} \right] a_{\vec{k}}^{+} = -\omega_{\vec{k}}u_{\vec{k}}a_{\vec{k}} - \omega_{\vec{k}}v_{\vec{k}}a_{\vec{k}}^{+}$$
(1.29)

Nous pouvons déduire les relations suivantes

$$\begin{cases} -JSzu_{\vec{k}} + -JSz\gamma(\vec{k})v_{\vec{k}} = -\omega_{\vec{k}}u_{\vec{k}} \\ -JSz\gamma(\vec{k})u_{\vec{k}} + JSzv_{\vec{k}} = -\omega_{\vec{k}}v_{\vec{k}} \end{cases}$$

La solution existe seulement si : $\det(f(\omega_{\vec{k}})) = 0$.

Nous obtenons

$$\omega_{\vec{k}} = JSz\sqrt{1-\gamma_{\vec{k}}^2} \tag{1.30}$$

Les équations aux valeurs propres impliquent

$$\frac{v_{\bar{k}}}{u_{\bar{k}}} = sign(z\gamma_{\bar{k}}) \sqrt{\frac{JSz - \omega_{\bar{k}}}{JSz + \omega_{\bar{k}}}}$$
(1.31)

Par ailleurs, les opérateurs $\alpha_{\vec{k}}^+$ et $\alpha_{\vec{k}}$ doivent être bosoniques et assurent la condition de normalisation.

$$u_{\bar{k}}^2 - v_{\bar{k}}^2 = 1, \tag{1.32a}$$

$$u_{\vec{k}} = \sqrt{\frac{JSz + \omega_{\vec{k}}}{2\omega_{\vec{k}}}},$$
(1.32b)

$$v_{\vec{k}} = sign(z\gamma_{\vec{k}}) \sqrt{\frac{JSz - \omega_{\vec{k}}}{2\omega_{\vec{k}}}} .$$
(1.32c)

Ainsi, l'expression finale de l'hamiltonien est

$$H = \sum_{\bar{k}} \omega_{\bar{k}} \alpha_{\bar{k}}^+ \alpha_{\bar{k}} + cst$$
(1.33)

Pour déterminer la constante, il faut exprimer les opérateurs $a_{\vec{k}}^+$ et $a_{\vec{k}}$ en fonction de $\alpha_{\vec{k}}^+$ et $\alpha_{\vec{k}}$. Puis, les reporter dans l'hamiltonien sans oublier de tenir compte de la condition de normalisation des opérateurs $u_{\vec{k}}$ et $v_{\vec{k}}$. Nous évaluons ensuite les expressions les différents produits $a_{\vec{k}}a_{-\vec{k}}$ et $a_{\vec{k}}^+a_{-\vec{k}}^+$ présents dans l'hamiltonien. En les regroupant, nous aboutissons à l'expression finale de l'hamiltonien d'un système antiferromagnétique.

$$H = -JS(S+1)\frac{zN}{2} + \sum_{\vec{k}} (\alpha_{\vec{k}}^+ \alpha_{\vec{k}} + \frac{1}{2})\omega_{\vec{k}}$$
(1.34)

Par déduction, le terme constant de l'hamiltonien est :

$$cst = -JS(S+1)\frac{zN}{2} + \frac{1}{2}\sum_{\bar{k}}\omega_{\bar{k}}$$

Ainsi, la subtilité de la transformation de Bogolioubov a consisté en la séparation de l'hamiltonien de l'état fondamental sous la forme de deux contributions. La première est constituée d'un terme correspondant à l'énergie du fondamental classique et le second décrit les excitations magnétiques harmoniques de type magnons.

IV. Dynamique des spins dans les monoxydes antiferromagnétiques parfaits

Pour décrire la dynamique des spins dans du monoxyde antiferromagnétique, on utilise l'hamiltonien du système. La forme générale de ce dernier, pour chaque site de spin, est donné par

$$H = -\sum_{ll'} J_{ll'} S_l S_{l'} - \sum_{l} D_l (S_l^z)^2 - Bg \mu_{\rm B} \sum_{l} S_l^z$$
(1.35)

Le premier terme correspond à l'énergie d'échange, le deuxième est le terme d'anisotropie avec D_l le champ d'anisotropie et le dernier terme correspond à l'effet Zeeman ou μ_B est le magnéton de Bohr et g est le facteur de Landé. Ce dernier est négligé dans ce travail, car nous avons considéré les systèmes loin de tout champ magnétique extérieur.

Le $J_{ll'}$ défini le couplage entre les différents sites de spins, il est dit exchange pour les interactions de types ferromagnétique et superéchange pour les couplages antiferromagnétiques.

Grâce à la périodicité spatiale du réseau de spins, deux spins l et l' qui occupent deux sites équivalents du réseau effectuent à une phase près les mêmes mouvements de précession magnétique. Par conséquent, leurs amplitudes vérifient à chaque instant t, la relation suivante

$$\vec{u}(l',\omega) = \vec{u}(l,\omega)\exp[i\vec{k}.\vec{r}(l,l')]$$
(1.36)

Où \vec{k} est un vecteur d'onde du réseau réciproque et $\vec{r}(l,l')$ le vecteur joignant la position d'équilibre du site noté l au site de spin noté l'.

Les équations du mouvement de précession des spins qui composent la cellule unitaire dans le cas du monoxyde antiferromagnétique de première série peuvent être regroupées sous forme d'une matrice, dite matrice dynamique, noté D_V . On peut les écrire sous la forme

$$\left[\Omega I - D_{\nu}(J_{ll'}, \vec{k})\right] \left| \vec{u} \right\rangle = \left| 0 \right\rangle \tag{1.37}$$

Où $D_V(\vec{k}, J_w)$ est la matrice dynamique du monoxyde parfait à configuration 3D pour chaque donnée de \vec{k} dont les éléments dépendent généralement des intégrales d'échange et superéchange. Le *I* est une matrice identité de même taille que la matrice dynamique de la structure sous étude, et le vecteur $|\vec{u}\rangle$ contient les composantes du vecteur propre du monoxyde. L'anisotropie est négligée aussi dans ce travail.

Pour que le système admette des solutions non triviales, il est impératif de satisfaire la condition suivante

$$\det(\Omega I - D_{\nu}(J_{\mu\nu}, \vec{k})) = 0 \tag{1.38}$$

C'est cette équation qui permet de tracer les courbes de dispersion.

Les vitesses de transport de l'énergie ou de l'information dans le milieu sont appelées vitesses de groupe. Pour les déterminer, deux méthodes différentes peuvent être utilisées : la méthode des différences finies ou la méthode perturbative [29-30].

Les deux méthodes exigent la résolution du problème du guide d'ondes parfait

$$D(\vec{k})\vec{u}_{v} = -\Omega(\vec{k}).\vec{u}_{v} \tag{1.39}$$

Dans cette thèse, nous avons choisi la méthode perturbative qui consiste à utiliser la similitude formelle entre l'équation (1.39) et l'équation de Schrödinger stationnaire $H\psi = E\psi$ portant sur les perturbations indépendante du temps en mécanique quantique. Elles sont définies pour des valeurs d'ondes \vec{k} réelles par l'équation

$$\overrightarrow{grad}\left[\Omega(\vec{k})\right] = \frac{\partial\Omega}{\partial\vec{k}} = V_g \tag{1.40}$$

Dans le cas où k est différent d'un réel, on pose $V_g = 0$.

IV.1. Système modèle

La structure parfaite d'un monoxyde antiferromagnétique de forme MO (où M désigne un métal de transition et O un atome d'oxygène), ayant une cristallisation de type NaCl, est considérée comme un empilement de *n* plans parallèles, orientés dans une direction cristallographique quelconque sans défauts. Sachant que dans des composés ioniques similaires chaque cation métallique de transition M^2 ⁺ est noyé dans un réseau d'anions oxygène (O^{2-}) et vice-versa.

Parmi les monoxydes antiferromagnétiques à structure NaCl, on cite NiO, MgO, MnO, FeO, etc. Leurs températures de Néel sont inférieures à la température ambiante. Ce sont des semiconducteurs ou isolants à transfert de charge, bien connus pour les forts effets de corrélation associés aux électrons 3d des cations de métaux de transition M^{2+} . Provenant du superexchange de type Anderson, leurs structures magnétiques d'équilibre sont de l'ordre antiferromagnétique, caractérisées par des plans d'aimantation opposés qui sont empilés dans la direction (111).

Les monoxydes peuvent ne pas être exactement stœchiométriques, mais les petits écarts ont peu d'influence sur les propriétés électroniques, du fait que les électrons (ou les trous) créent une distorsion du réseau, formant des polarons immobiles qui ont une grande masse efficace.

On peut dire que la structure d'un monoxyde est un système formé de deux sous-réseaux d'ions (M^{2+} et O^{2-}) séparées par un paramètre de la moitié du réseau. Le sous-réseau des cations est illustré schématiquement sur la figure I.5a. Dans cette géométrie, l'axe y'y est parallèle aux couches de surface, tandis que l'axe z'z est pris normal aux plans de la surface. Sur le même plan atomique, on distingue deux types de sites M^{2+} (avec des spins up et down) et les sites O^{2-} sont ignorées dans la représentation de la structure MO.



Fig.I.5a. Une illustration de l'arrangement magnétique dans la structure rocksalt (sel de roche), qui couvre les matériaux MO de type monoxyde les plus courants.
 L'antiferromagnétisme du réseau est défini par les orientations de spins (up / down) des cations métalliques M²⁺, qui sont présentées en deux couleurs différentes.
 Les anions O²⁻ ne sont pas représentés.



Fig. I.5b. Représentation de la coupe transversale 2D de la structure monoxyde parfaite type MO, et de l'alignement de spins et du couplage magnétique entre différents sites métalliques.

IV.2. Courbe de dispersion

a) Equations de mouvement de précession des spins

- Pour un spin up, situé sur le site A(l, m, n)

$$\begin{split} \omega\sigma(l,m,n) &= -J_{1AA} \left[\sigma(\frac{l}{2},\frac{m}{2},n) + \sigma(-\frac{l}{2},-\frac{m}{2},n) + \sigma(l,-\frac{m}{2},\frac{n}{2}) + \\ \sigma(l,\frac{m}{2},-\frac{n}{2}) + \sigma(\frac{l}{2},m,\frac{n}{2}) + \sigma(-\frac{l}{2},m,-\frac{n}{2}) - 6\sigma(l,m,n) \right] \\ &- J_{1AB} \left[\sigma(\frac{l}{2},-\frac{m}{2},n) + \sigma(-\frac{l}{2},\frac{m}{2},n) + \sigma(l,\frac{m}{2},\frac{n}{2}) + \\ \sigma(l,-\frac{m}{2},-\frac{n}{2}) + \sigma(-\frac{l}{2},m,\frac{n}{2}) + \sigma(\frac{l}{2},m,-\frac{n}{2}) - 6\sigma(l,m,n) \right] \\ &- J_{2AB} \left[\sigma(l+1,m,n) + \sigma(l-1,m,n) + \sigma(l,m+1,n) + \\ \sigma(l,m-1,n) + \sigma(l,m,n+1) + \sigma(l,m,n-1) - 6\sigma(l,m,n) \right] \end{split}$$
(1.41)

- Pour un spin down, situé sur le site $B(\frac{l}{2}, \frac{-m}{2}, n)$ $\omega\sigma(\frac{l}{2}, -\frac{m}{2}, n) = -J_{1BB} [\sigma(l+1, m, n) + \sigma(l, m-1, n) + \sigma(l+1, -\frac{m}{2}, \frac{n}{2}) + \sigma(l, -\frac{m}{2}, -\frac{n}{2}) + \sigma(l, m-1, n) + \sigma(\frac{l}{2}, m, -\frac{n}{2}) - 6\sigma(\frac{l}{2}, -\frac{m}{2}, n)]$ $-J_{1AB} [\sigma(l+1, m-1, n) + \sigma(l, m, n) + \sigma(l, -\frac{m}{2}, \frac{n}{2}) + \sigma(l+1, -\frac{m}{2}, -\frac{n}{2}) + \sigma(\frac{l}{2}, m, \frac{n}{2}) + \sigma(\frac{l}{2}, m-1, -\frac{n}{2}) - 6\sigma(\frac{l}{2}, -\frac{m}{2}, n)]$ $-J_{2AB} [\sigma(\frac{3l}{2}, -\frac{m}{2}, n) + \sigma(-\frac{l}{2}, -\frac{m}{2}, n) + \sigma(\frac{l}{2}, \frac{m}{2}, n-1) - 6\sigma(\frac{l}{2}, -\frac{m}{2}, n)]$ $\sigma(\frac{l}{2}, -\frac{3m}{2}, n) + \sigma(\frac{l}{2}, -\frac{m}{2}, n+1) + \sigma(\frac{l}{2}, -\frac{m}{2}, n-1) - 6\sigma(\frac{l}{2}, -\frac{m}{2}, n)]$ Les excitations de spins dans la structure antiferromagnétique du monoxyde parfait MO peuvent être connues en déterminant les valeurs propres de la matrice dynamique $D_p(\vec{k}, J_{1ij}, J_{2ij})$ donnée par l'équation (1.38).

En d'autres termes, les modes de spins de magnon du réseau MO sont calculés en diagonalisant la matrice dynamique du système MO (appelés modes de dispersion des magnons caractérisant le monoxyde). Les branches de spins satisfassent toujours à la condition de Bloch donnée par le facteur de phase $|\eta| = 1$.



Fig.I.6. Les courbes de dispersion des magnons dans les structures monoxydes de types MO, couplées antiferromagnétiquement, le long des directions de hautes symétrie.

Sur la figure (I.6), nous avons présenté la courbe de dispersion du guide d'ondes de monoxyde parfait en fonction du vecteur d'onde normalisé (k/a), ou le vecteur d'onde k s'étend sur la première zone de Brillouin illustrée sur la Fig. 2a, suivant les chemins de haute symétrie.

Dans la première direction X- Γ , la courbe de dispersion comporte deux types de mode : l'un acoustique (noté mode 1) et l'autre optique (noté mode 2). Un comportement similaire est observé dans la direction Γ -MM'. Selon les directions MM'- Γ et Γ -M'', nous remarquons une continuité de propagation des deux modes acoustique et optique.

Le premier mode est caractérisé par le comportement limite $\Omega \rightarrow 0$ lorsque $k \rightarrow 0$. Le second est caractérisé par le comportement limite $\Omega \neq 0$ lorsque le vecteur d'onde $k \rightarrow 0$.

De plus, les deux modes magnons se propagent dans les limites de fréquence d'intervalle normalisé [$\Omega_{min} = 0$, $\Omega_{max} = 133$].

Pour déterminer les vitesses de groupe correspondant aux deux modes magnons du monoxyde, il suffit de calculer les pentes des courbes de dispersion.

V. Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons rappelé les différentes méthodes théoriques, qui permettent d'analyser le comportement des magnons dans les monoxydes antiferromagnétiques parfaits à basse température. Nous avons appliqué ces méthodes pour déterminer la dynamique d'une structure monoxyde de type MO (structure roksalt). Le modèle prévoit l'existence de deux branches d'excitations l'une dite acoustique et l'autre optique. Ces excitations sont en outre associées à des mouvements de précession des spins autour de leur direction moyenne et qui se propagent dans le monoxyde parfait.

Références du chapitre I

- M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. 61, 2472 (1988).
- [2] G. A. Prinz, Science 282, 1660 (1998).
- [3] F. J. Himpsel, J. E. Ortega, G. J. Mankey and R. F. Willis, Adv. Phys., 47, 511 (1998).
- [4] S. A. Nikitov and P. Tailhades, Opt. Com. 199, 389 (2001).
- [5] Y. V.Gulyaev, S. A. Nikitov, L. V. Zhivotovskii, A. A. Klimov, P. Tailhades, L. Presmanes, C. Bonningue, C. S. Tsai, S. L. Vysotskii and Y. A. Filimonov, JETP Lett. 77, 567 (2003).
- [6] W. L. Roth, Phys. Rev. 110, 1333 (1958).
- [7] W. L. Roth, Phys. Rev. 7r1,772 (1958).
- [8] W. L. Roth, J. Appl. Phys. 3L, 2000 (1960).
- [9] M. Grimsditch, L. B.McNeil and D. J. Lockwood, Phys. Rev. B 58, 74462 (1998).
- [10] H.J. Monkhorst and J.D. Pack, Phys. Rev. B13, 5188 (1976).
- [11] P. W. Anderson, Phys. Rev. 83, 1260 (1951).; F. Bloch, Z. Phys 61, 206 (1930).
- [12] R. Kubo, Phys. Rev. 87, 568 (1952).
- [13] T. Oguchi, Phys. Rev 117, 117 (1960).
- [14] C. Tsallis, J. Math. Phys, 19, 277 (1978).
- [15] D. C. Mattis, Theory of Magnetism I, Springer Verlag, (1988).
- [16] R. M. White, Quantum Theory of Magnetism, Springer Verlag, (1987).
- [17] A. Auerbach, Interacting electrons and Quantum Magnetism, Springer Verlag, (1994).
- [18] D. C. Wallace, PR 128, 1614 (1962).
- [19] S. Petit, Collection SFN 10, 449, Published by EDP Sciences (2010).
- [20] C. Kittel. *Physique de l'état solide*. Dunod (2007).
- [21] H. T. Diep, *Physique de la matière condensée*, Dunod (2003).
- [22] A. Herpin, Théorie du Magnétisme, Biblio. Sc. Tech. Nucl. 547 (1968)
- [23] T. Holstein and H. P. Primakoff, Phys. Rev. 58, 1098 (1940).
- [24] J. G. Hirsch, O. Castanos, R. Lopez-Pena and E. Nahmad-Achar, Phys. Scr. 87, 038106 (2013).
- [25] A. Klein, C. T. Li and M. Vallieres, Lect. Not. Phys. 142, 76 (1981).
- [26] Z. Chang, Phys. A. 204, 405 (1995).
- [27] A. V. Makhankov, V. G. Makhankov, Physica Status Solidi (b), 145, 669 (1988).
- [28] A. Kreisel, F. Sauli, L. Bartosch and P. Kopietz, Eur. Phys. J. B71, 59 (2009).
- [29] S. Nicaise, Analyse numérique et équations aux dérivées partielles, Dunod, (2000).
- [30] J. Rappaz, M. Picasso, *Introduction à l'analyse numérique*, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes (1998).

Chapitre II

Etude théorique de la dynamique de surfaces des monoxydes semi-infinis

| | I. Introduction | | |
|---|---|--|--|
| | II. Surfaces des monoxydes semi-infinis | | |
| | 1. Surface cristalline | | |
| | 2. Surface vicinale | | |
| | 3. Description microscopique d'une surface | | |
| | 4. Les effets de surface | | |
| | 5. Stabilité des surfaces | | |
| | 5.1. Relaxation et reconstruction | | |
| | 6. Classification des surfaces | | |
| | 7. Energie de surface | | |
| | 8. Anisotropie de surface | | |
| | 9. Anisotropie d'échange | | |
| | 10. Magnétisme de surface | | |
| | 11. Techniques d'analyse des surfaces solides | | |
| | 11.1 Les techniques d'observation | | |
| | 11.1.1. La microscopie électronique à balayage (MBE) | | |
| 2 11.1.2. Microscopie électronique en transmission MET ou TEM | | | |
| nai | 11.1.3. Microscopie à effet tunnel et microscopie à force atomique | | |
| m | 11.2 Les techniques d'analyse | | |
| S. | 11.2.1. Analyses par spectroscopie des photoélectrons X (XPS) | | |
| | 11.2.2. La spectroscopie d'électrons Auger S.E.A | | |
| | 11.2.3. Diffraction d'électrons de basse et haute énergie LEED et RHEED | | |
| | 11.2.4. Analyses SIMS | | |
| | 12. Les méthodes analytiques pour l'étude des ondes de spins dans des structures rocksalt | | |
| | 12.1. Méthode de diagonalisation directe | | |
| | 12.2. Méthode des Fonctions de Green | | |
| | 12.3. Méthode de raccordement : le principe de la méthode | | |
| | 12.4. Le formalisme théorique | | |
| | 12.5. Matrice dynamique du monoxyde semi-infini | | |
| | 12.6. Ecriture de la matrice de raccordement | | |
| | 12.7. Etats localisés de spins | | |
| | 12.8. Coefficients de transmission et de réflexion | | |
| | 12.9. Conductance magnonique | | |
| | 12.10. Calcul des densités d'états magnoniques | | |
| | Références du Chapitre II | | |
| | | | |

I. Introduction

L'étude des surfaces des oxydes de métaux de transition constitue un domaine d'intense activité. L'intérêt a été encouragé par les récents développements des techniques d'élaboration ainsi que les méthodes de caractérisation. Ainsi, il est désormais possible de contrôler de manière précise, la croissance de films sur un substrat et de produire des échantillons de dimensionnalité réduite telles que les surfaces ou les couches minces possédant des propriétés très diverses et différentes du cristal massif. La présence d'états de surface influence de manière importante l'adsorption d'atomes à la surface et peut déterminer les processus catalytiques, qui jouent un rôle important notamment en pétrochimie pour la décomposition des hydrocarbures. Les surfaces des oxydes magnétiques ont révélé des propriétés particulières et des applications intéressantes. En outre, les surfaces polaires d'oxydes de métaux de transition, présentent des effets de reconstruction notables, à cause de la divergence du potentiel électrostatique avec le nombre et les interactions entre les couches anions-cations.

Les surfaces polaires présentent également un intérêt d'un point de vue fondamental, puisqu'elles permettent d'appréhender les mécanismes qui stabilisent ces surfaces. Cette dernière joue un rôle capital, puisqu'elle permet l'élaboration de nanostructures à géométrie parfaitement contrôlée [1]. Toutefois, même lorsqu'elles sont bien préparées, les surfaces cristallines présentent plusieurs types d'inhomogénéités [2]. Nous citons entre autres, défauts ponctuels, défauts structuraux, etc. L'état morphologique de la surface se présente généralement sous la forme d'une distribution de marches et de terrasses atomiques, de hauteurs variées, ainsi que de différents types de défauts localisés, tels que des adatomes, adlacunes et des puits atomiques, etc.

Pour étudier la structure et la symétrie de la surface, différentes techniques expérimentales ont été utilisées. Nous pouvons citer la diffraction d'électrons (LEED : Low Energy Electron diffraction et RHEED : Réflexion High Energy Electron Diffraction). Sachant que cette dernière repose sur la nature ondulatoire des électrons et sur la forte interaction de ceux-ci avec la matière. De plus, d'autres techniques expérimentales ont été développées pour étudier les effets de dispersion des ondes de spins de surface dans des films minces telles que la diffusion inélastique de la lumière et la résonance des ondes de spins.

Ce chapitre a pour objectif de présenter un bref aperçu sur les définitions des surfaces plane et vicinale, et dans la deuxième partie, nous présentons les différentes méthodes théoriques qui sont développées aujourd'hui pour l'étude de la dynamique des surfaces des monoxydes semiinfinis. Parmi celles-ci, on note le formalisme des fonctions de Green, la méthode de
diagonalisation directe et la méthode de raccordement. Toutes ces méthodes sont élaborées en tenant compte de l'absence de la symétrie de la configuration magnétique considérée.

II. Surfaces des monoxydes semi-infinis

1. Surface cristalline

La surface d'un cristal peut être définie comme étant l'interface marquant la discontinuité entre le cristal et le vide. Pour un métal donné, l'épaisseur de cette interface est limitée aux couches atomiques externes. En effet, les électrons libres et ceux appartenant aux atomes des couches superficielles se redistribuent et écrantent les champs extérieurs, ce qui limite la portée de la perturbation générée par l'existence de la surface [3]. De nombreuses propriétés peuvent être donc déterminées par le comportement des électrons au voisinage de la surface.

L'interaction des états superficiels avec un élément gazeux peut être de type physique, telle que la physisorption, ou de type physico-chimique, telle que la chimisorption, ou bien sous forme d'oxydation ou de corrosion. La structure cristalline d'une surface ne peut être rigoureusement la même que celle observée en volume. La complexité des structures d'oxyde soulève une difficulté particulière, car pour une orientation fixée de la surface, le motif atomique peut généralement se terminer de plusieurs façons. La surface (001) de l'oxyde de type MO peut être théoriquement terminée, selon les conditions de préparation, soit par un plan d'oxygène, soit par un plan de métal de transition par exemple.

2. Surface vicinale

A l'échelle atomique, les défauts géométriques sont présents sur toutes les surfaces cristallines, les marches atomiques étant l'exemple le plus important. Selon l'orientation cristallographique de la surface, celle-ci présente un réseau régulier de marches atomiques ou non. Le moyen le plus simple d'étudier les propriétés liées aux marches atomiques est donc de s'intéresser à un réseau régulier de marches (surface vicinale).

Les physiciens du solide s'intéressent de plus en plus à des objets de dimensions réduites, que cela soit pour découvrir des propriétés fondamentales nouvelles ou pour des applications technologiques. L'étude des surfaces à l'échelle nanométrique révèle, dans certains cas, l'existence d'une structuration périodique spontanée et ordonnée de la surface avec des périodes allant de 1 à 100 nm [4]. Ces surfaces auto-organisées peuvent servir de gabarit pour la croissance des nanostructures périodiques et auto-assemblées de grande densité [5-7]. Différents types de nano-structuration de surface (phénomène de reconstructions, réseau de

dislocations, ...) ont été explorés et des surfaces à marches dites surfaces vicinales sont de plus en plus employées comme gabarits pour faire croître ces nanostructures ordonnées [8-9].

Ces surfaces sont utilisées, par exemple, pour faire croître des nanostructures à une dimension telles que les fils quantiques « quantum wires » [10] ou pour faire apparaître un alignement d'îlots le long des marches du substrat [8-9, 11-13]. Les surfaces vicinales peuvent également être utilisées pour éliminer des défauts au sein d'une couche épitaxiée comme des dislocations d'interface et des fautes d'empilement [14-15], des parois d'antiphase [16-17], ou encore pour sélectionner une orientation préférentielle dans le plan [18].

Les surfaces vicinales d'oxyde sont essentielles dans certaines applications [19- 21]. Pourtant, la plupart des propriétés de ce type de surface reste non connue. Les physiciens de surface, qui ont longuement développé des concepts et accumulé des résultats sur les propriétés des surfaces de métaux ou de semi-conducteurs, cherchent encore à répondre à des questions élémentaires sur les propriétés superficielles des oxydes (polarité, énergie de surface, ...) [22].

Nous signalons que les surfaces d'oxyde ont été peu étudiées en comparaison des surfaces des métaux et des semi-conducteurs classiques. En effet, il y a très peu d'études dans la littérature relatives aux surfaces vicinales d'oxyde, notamment concernant leur évolution morphologique [23-25]. Cet état de fait n'est pas lié à un manque d'intérêt mais bien plus aux difficultés expérimentales que soulèvent leur étude. D'autre part, la modélisation d'une surface d'oxyde reste difficile car les données expérimentales manquent afin de valider l'approche théorique utilisée.

Les surfaces vicinales sont obtenues par clivage d'un cristal le long d'un plan légèrement incliné par rapport à un plan dense [26]. La structure qui en résulte est composée d'une succession de terrasses séparées par des marches monoatomiques. Une telle surface présente un réel intérêt pour la croissance par jet moléculaire. Les marches, étant des sites de nucléation et de réaction catalytique préférentiels, jouent un rôle important dans l'équilibre. Lorsque les conditions de croissance sont favorables, on serait en principe capable de faire croître le matériau solide couche par couche, donc de contrôler la croissance à l'échelle de l'atome.

3. Description microscopique d'une surface

A l'échelle atomique, une surface présente un environnement très asymétrique où les atomes ont une coordination et une structure électronique modifiées par rapport aux atomes du volume. Il en résulte que la structure de la surface peut être radicalement différente d'une simple terminaison du cristal. Ce dernier peut être vu, en première approximation, comme un empilement compact et régulier d'atomes. Il existe au sein du cristal des plans de haute symétrie (ils sont définis en cristallographie par des faibles indices de Miller comme par exemple les surfaces (001), (110) et (111)) où la densité des atomes est plus élevée qu'ailleurs. Ces plans atomiques denses apparaissent naturellement lorsque le cristal est taillé; ce sont aussi des plans naturels de croissance des cristaux et ils forment des facettes caractéristiques observables à l'échelle macroscopique. En général, la surface d'un cristal n'est pas parfaite, elle contient des zones de plans atomiques appelées terrasses bordées par des marches. Les marches ne sont pas droites à grande échelle de longueur, elles sont formées de parties droites, séparées par des crans (kinks en anglais). Voir la Fig.II.1. Les discontinuités des bords de marches et leur nombre augmente avec l'élévation de la température.

Dans la réalité, une surface de haute symétrie n'existe plus dès qu'elle dépasse quelques μm^2 . On entend alors par surface de haute symétrie ou surface nominale, une surface dont les marches sont éloignées les unes des autres par rapport à l'échelle de longueur des phénomènes qui se produisent en surface.



Fig.II.1. Représentation schématique d'une surface vicinale parfaite. En précisant les marches et les terrasses.

Une surface obtenue par coupe dans une direction légèrement différente de celle d'un plan de grande densité atomique s'appelle surface vicinale. Cette dernière présente un vrai intérêt pour la croissance, car les bords des marches qui constituent des sites d'attachement favorables pour les adatomes (atomes adsorbés, liés uniquement aux atomes de la surface en dessous d'eux) [27]. Les marches sont des défauts de surface, frontières entre deux milieux : d'un côté il y a les atomes du cristal et de l'autre, le milieu environnant. Cette interface est donc porteuse de moments électriques qui génèrent des interactions électrostatiques entre les marches, variant en fonction de la distance qui les séparent en $\frac{1}{t^2}$. De plus, la relaxation du réseau cristallin induit des arrangements (ou reconstructions) particuliers des atomes en bord de marche qui sont à l'origine d'un champ de déformation. L'interférence entre les champs de déformation des marches voisines, est à l'origine d'interactions élastiques entre marches. Il a été montré qu'elles

sont proportionnelles à $\frac{1}{l^2}$. Par conséquent, deux marches qui se rencontrent ne peuvent pas se croiser (se dépasser), ceci engendre des interactions entropiques, nécessairement répulsives et de la forme $\frac{1}{l^2}$.

4. Les effets de la surface

Les phénomènes physiques et chimiques dus à la présence d'une surface sont nombreux. Ils sont impactés essentiellement de deux sortes :

a) Les effets qui font intervenir uniquement la discontinuité du matériau à la surface. Cette discontinuité entraîne une perturbation des interactions entre atomes qui impliquent une modification de la fonction d'onde des niveaux énergétiques électroniques permis. Il apparait des niveaux d'énergie qui n'existent pas en volume et qui sont localisés au voisinage de la surface. Les effets de ce type peuvent être également liés à des défauts géométriques qui apparaissant lors de la préparation du matériau ou de sa surface (par exemple : des dislocations entraînant la rupture de liaisons entre atomes du solide, dans le volume). Ces défauts produisent le plus souvent des pièges à porteur de charge. Les marches atomiques dans les surfaces vicinales peuvent, aussi, induire des propriétés électriques qui leur sont spécifiques.

b) Les effets dus à l'interaction du solide et de son milieu environnant, générant le phénomène d'adsorption. En effet, toute surface est constituée d'atomes n'ayant pas toutes leurs liaisons chimiques satisfaites. Cette surface a donc tendance à combler ce manque en captant les particules passant à proximité. Quand une particule gazeuse s'approche de la surface, elle est soumise à des forces d'interactions attractives et/ou répulsives qui, selon leur nature, vont conduire à l'adsorption ou non de cette particule sur la surface. On parle d'adsorption lorsque la durée de l'interaction entre la particule et la surface devient non négligeable ($t > 10^{-7}$ s). Dans ce cas, la particule aura perdu toute mémoire de son état initial (énergie cinétique, angle d'incidence) lorsqu'elle quittera la surface (désorption). Parmi les phénomènes d'adsorption, il convient de distinguer l'adsorption physique (physisorption) et l'adsorption chimique (chimisorption) :

i) Dans la physisorption (ou adsorption physique), l'attraction est assurée par les forces d'interaction entre les nuages électroniques de la particule et des atomes de la surface. Ces forces à longue distance, de type Van der Walls, sont très peu énergétiques (< 0,3 eV) et vont conduire à une faible liaison de la particule. Le processus est aisément réversible et la désorption est facilitée par l'agitation thermique liée à une température de gaz élevée. La

barrière de diffusion étant faible, la particule peut également migrer sur la surface du solide en passant d'un puits de potentiel de physisorption à un puits de potentiel adjacent.

ii) Dans la chimisorption (ou adsorption chimique), les particules sont liées à la surface par une liaison chimique (généralement covalente, dans laquelle les orbitales électroniques de la particule et des atomes de la surface sont partagées par certains électrons), il y a formation d'une liaison chimique [28]. L'énergie mise en jeu est beaucoup plus grande (typiquement 10 fois supérieure à l'énergie de physisorption), conférant à la chimisorption un caractère irréversible. La chimisorption est généralement liée à des défauts locaux de la structure atomique du solide, le nombre de sites de chimisorption est beaucoup plus faible que le nombre de sites de physisorption.

5. Stabilité des surfaces

Pour une orientation donnée, la plupart des cristaux peuvent présenter plusieurs terminaisons, mais toutes n'ont pas la même stabilité. Les surfaces les plus stables sont celles sur lesquelles le nombre de liaisons anion-cation coupées est le plus faible. Le critère du nombre de liaisons coupées est bien connu en physique des surfaces métalliques, par contre, très peu de calcul théoriques ont pu, jusqu'à présent, prédire systématiquement les stabilités relatives des diverses faces des oxydes. Des approches atomistiques ont été utilisées pour calculer les énergies de surface des composés de structures NaCl [29,30]. Théoriquement, la stabilité de la surface peut être assurée par la modification des positions relatives des atomes de la surface par rapport à celles qu'ils occuperaient si la surface était idéale : les atomes vont donc se déplacer pour atteindre une nouvelle position d'équilibre. Il y a alors une évolution de la surface.

5.1. Relaxation et reconstruction

L'arrangement géométrique des atomes à la surface d'un solide cristallin est différent de ce qu'il est en volume. Cela peut être expliqué, qualitativement, par la nécessité de minimiser l'excès d'énergie superficielle produite par la coupure de liaisons, lors de la création de la surface. Il en résulte que la structure géométrique de la surface peut être radicalement différente d'une simple terminaison du cristal. Ce réarrangement peut être moins important et se manifeste par un léger déplacement des atomes perpendiculairement à la surface. Cette relaxation de surface est soit positive, augmentation de la distance, soit négative, diminution de la distance, selon le matériau et le type de la face du cristal (orientation).

On rencontre aussi de nombreux cas où le réarrangement est très important. Il produit non seulement un déplacement des atomes perpendiculairement à la surface, mais aussi dans la direction parallèle à celle-ci : on dit alors que la surface est reconstruite. Cette reconstruction produit une structure totalement différente de celle d'un plan du volume [31]. Il faut alors spécifier de combien la maille de surface est multipliée dans chacune des deux directions et éventuellement de quel angle elle est tournée par rapport à la maille de volume, dans la notation de Wood [32], voir la Fig. II. 2.



Fig. II.2. Phénomène de relaxation et de reconstruction.

6. Classification des surfaces

Une surface apparaît comme une rupture de périodicité dans une direction donnée de l'empilement de plans cristallographiques. A partir d'un système cristallin, il existe par conséquent, plusieurs directions possibles pour tronquer la surface et donc couper le cristal. Cependant pour un matériau donné, les surfaces correspondant à différentes orientations ne sont pas toutes équivalentes et, en particulier, ne présentent pas la même stabilité. Les forces électrostatiques prépondérantes qui interviennent en physique du solide, sont responsables de la cohésion des différents édifices cristallins et structures observées. Les oxydes isolants sont constitués d'au moins deux types d'ions portant des charges de signes opposés. Les effets électrostatiques seront importants pour ces systèmes tels que les oxydes de métaux de transition. Aussi, il est intéressant de classifier les différentes surfaces correspondant à l'orientation de la surface et la coupe du cristal qui a été réalisée, d'après les caractéristiques électrostatiques de la surface. Tasker [33] a proposé de classifier les surfaces en trois catégories, comme illustrées sur la Fig. II. 3, permettant d'apprécier la stabilité relative des surfaces.



Fig. II.3. Classification des surfaces d'isolants selon Tasker [33].

Q représente la charge globale du motif et μ est le moment dipolaire du motif.

i) *Surface de type* 1: pour laquelle chaque plan parallèle à la surface est globalement neutre. En outre, l'arrangement des plans de ces surfaces est tel que le moment dipolaire total du motif soit identiquement nul.

ii) *Surface de type* 2 : se rencontre dans le cas où les anions et cations ne sont pas coplanaires chargeant ainsi les plans. Toutefois, la séquence des plans est telle que le moment dipolaire total du motif est nul.

iii) *Surface de type* 3 : appelée surface polaire. Dans cette surface, le motif exhibe un moment dipolaire non nul du à l'alternance de plans chargés d'anions et de cations.

7. Energie de surface

Pour une orientation donnée, la plupart des cristaux peuvent donc présenter plusieurs terminaisons, mais toutes n'ont pas la même stabilité. En effet, les surfaces les plus stables sont celles sur lesquelles le nombre de liaisons anion-cation coupées est le plus faible, puisque chaque liaison coupée coûte de l'énergie électrostatique.

La stabilité d'une surface est déterminée par l'énergie dite de surface, cette dernière est définie comme l'énergie nécessaire pour séparer le cristal en deux surfaces libres. Dans le cas d'une surface avec un seul type d'atomes, l'énergie de surface s'écrit [33,34]

Es =

(Energie de cohésion de la surface) – (Nombre d' atomes) × (Energie de cohésion par atomes du systeme cristallin infini) (2.1) Cette énergie de surface ainsi définie représente l'excès d'énergie par rapport au volume, associé à la création de la surface. En d'autres termes, cette énergie de surface correspond à la perte de stabilité par rapport au volume, due à la rupture de liaisons atomiques à la surface. Ainsi, une faible énergie de surface correspondra à une surface dont la stabilité est proche du volume et donc d'autant plus stable. En revanche, une énergie de surface importante traduira l'instabilité d'une surface, susceptible de se réorganiser par des mécanismes de reconstruction et relaxation, afin de se stabiliser. Bertaut et al. [35] ont montré que lorsqu'il existe un moment dipolaire dans la cellule primitive, perpendiculaire à la surface, l'énergie de surface diverge et devient infinie. Par conséquent, de telles surfaces ne peuvent exister en l'état. L'existence de ces surfaces dipolaires est associée à l'adsorption d'atomes en surface, la création de facettes ou bien encore la présence de défauts.

8. Anisotropie de surface

L'origine de l'anisotropie de surface est liée au comportement des atomes en surface. Cette anisotropie n'est importante que dans les couches ultraminces où le nombre d'atomes en surface constitue une partie importante du nombre total d'atomes. L'énergie d'anisotropie de surface peut s'écrire comme suit [36-39]

$$E_s = \frac{K_s}{t} (\sin(\theta))^2 \tag{2.2}$$

Où K_s est la constante d'anisotropie de surface, t est l'épaisseur de la couche mince et θ l'angle entre l'aimantation et l'axe d'anisotropie.

9. Anisotropie d'échange

Lorsqu'on dépose une couche antiferromagnétique sur une couche ferromagnétique AF/F, une anisotropie d'échange prend naissance à l'interface. Cette anisotropie a été observée pour la première fois par Meiklejohn et Bean [40] sur des particules de cobalt (couplage ferromagnétique) oxydées en surface en CoO (couplage antiferromagnétique). Les systèmes F/AF sont caractérisés par une courbe d'hystérésis décalée suivant le champ appliqué. Le décalage du cycle d'hystérésis d'un côté ou de l'autre de l'axe de l'aimantation (à l'interface d'une couche ferromagnétique et une couche antiferromagnétique) a été interprété comme un effet de surface. Par la suite, Mauri et al. [41] ont interprété l'anisotropie d'échange par la nucléation d'une paroi dans l'antiferromagnétique. Ainsi, l'anisotropie d'échange peut être due à la compétition entre une énergie d'interface et une énergie de paroi.

10. Magnétisme de surface

Les propriétés magnétiques des atomes près de la surface présentent un comportement magnétique différent de celui des matériaux macroscopiques [42- 47]. En effet, la brisure de symétrie et la présence des liaisons pendantes, la bande de valence se rétrécit et entraîne une importante modification de la densité d'états au niveau de Fermi, ce qui permet aux films minces de présenter une aimantation plus importante en surface et d'induire l'apparition de nouvelles propriétés magnétiques.

La brisure de symétrie qui est à l'origine de la différence de l'arrangement géométrique des atomes de la surface à ceux du volume. Ceci s'explique qualitativement par la nécessité de minimiser l'excès d'énergie à la surface, conséquence de la coupure de liaisons lors de la création de la surface. Ce nouvel ordre à la surface engendre de nouvelles propriétés physiques qui intéressent de plus en plus les physiciens, notamment pour leurs applications technologiques. Afin de révéler et d'exploiter ces propriétés, de nombreuses méthodes expérimentales et analytiques sont envisageables. L'on cite parmi les techniques expérimentales; la diffusion inélastique de la lumière, la diffusion Raman, la diffusion de neutrons polarisés et plus récemment l'ISTS qui est construite à partir du STM, en utilisant la diffusion inélastique d'électrons. Quant aux méthodes analytiques, elles sont, à l'origine, basées sur les conditions de Born Von Karman, similaires à celles utilisées pour le calcul des phonons dans la dynamique du réseau. Cependant, comme il a été exposé ci-dessus, la brisure de la symétrie de translation, rend impossible l'application des conditions BVK. Il est donc nécessaire de définir de nouvelles méthodes permettant de raccorder les équations de mouvement de spins d'une couche atomique à une couche adjacente. Ces calculs analytiques sont donc développés soit par la méthode de la fonction de Green soit par la méthode Slab ou par la méthode de raccordement. Ces méthodes ont en commun l'objectif de quantifier les états d'énergie de l'onde de spins qui se constitue suite à l'excitation magnétique.

11. Techniques d'analyse des surfaces Solides

L'étude des surfaces s'est fortement développée depuis les années 60 [48]. Des nouvelles techniques sont continuellement développées dans le but d'étudier des aspects plus complexes des propriétés des surfaces propres ou avec adsorbat. Parmi ces techniques on peut citer les techniques d'observation et les techniques d'analyse.

11.1 Les techniques d'observation

11.1.1. La microscopie électronique à balayage.

La microscopie électronique à balayage (MEB) [49-54] (en anglais : *Scanning Electron Microscopy* (SEM)) est un outil puissant permettant l'observation de la morphologie, l'état de surface, la composition chimique ainsi que l'épaisseur de l'échantillon. Elle permet d'avoir la cartographie de la surface avec une résolution de quelques nanomètres.

11.1.2. Microscopie électronique en transmission MET ou TEM (en anglais)

La microscopie électronique en transmission (TEM) permet une analyse morphologique, structurale et chimique d'échantillons solides à l'échelle atomique [55-57]. Cette technique repose sur l'interaction des électrons avec la matière et la détection des électrons ayant traversé l'échantillon. Les échantillons étudiés doivent donc être préalablement amincis afin d'être transparents aux électrons. Une multitude d'informations peuvent être obtenues par TEM comme l'épaisseur des couches dans des empilements complexes, la morphologie des matériaux en coupe, leur structure (amorphe ou organisée), la nature des défauts cristallins, l'orientation cristalline, la taille des grains pour les échantillons polycristallins. La TEM couplée à une analyse chimique permet d'accéder à la nature des couches et interfaces ou à la distribution d'un élément dans une couche [58,59].

11.1.3. Microscopie à effet tunnel et microscopie à force atomique

Ces deux techniques, aussi connues sous les sigles de STM (Scanning Tunneling Microscopy) [60, 61] et AFM (Atomic Force Microscopy) [62].

Dans le cas de la microscopie à effet tunnel, une tension est appliquée entre une boite métallique très fine et la surface à analyser qu'elle balaye. Les électrons qui s'échappent par effet tunnel du matériau à analyser produisent un courant dont l'intensité dépend de la distance entre la pointe et la surface.

L'enregistrement des déplacements verticaux de la pointe nécessaires au maintien constant de ce courant donne une carte topographique de la surface analysée, dont la résolution peut atteindre 0.01 nm en vertical et 0.2 nm en horizontal.

Cette méthode offre l'avantage de ne pas nécessiter d'enceinte à vide et de pouvoir même effectuer des mesures en présence d'une solution. En toute rigueur, l'information obtenue est en fait une indication sur la densité d'électrons au voisinage de la pointe. Pour que l'information soit purement topographique, il est nécessaire que tous les atomes de la surface aient les mêmes propriétés électroniques et donc ne se différencient pas chimiquement.

Le microscope à force atomique fonctionne sur un principe identique, mais on mesure dans ce cas la force d'attraction ou de répulsion entre la pointe et les atomes de la surface au lieu d'un courant électrique. En fonction de la force mesurée, un mécanisme maintient une distance constante entre la pointe et la surface.

Ces deux dispositifs de caractérisation de surface sont, en général, équipés d'un puissant système d'analyse d'image permettant une représentation 3D des surfaces observées.

11.2 Les techniques d'analyse

11.2.1. Analyse par spectroscopie des photoélectrons X (XPS)

La technique d'analyse XPS permet de déterminer la nature chimique des éléments constitutifs à la surface du matériau, ainsi que les concentrations relatives des différents éléments. Explicitement, la technique permet de relever le rôle de la surface et des interfaces dans les processus réactionnels [63, 64].

Dans le cas d'adsorption de l'oxygène, cette technique permet de déterminer la concentration d'O₂ adsorbé, les énergies de liaisons, le type des liaisons et la nature d'adsorption.

11.2.2. La spectroscopie d'électrons Auger (SEA)

Elle est basée sur la mesure de l'énergie cinétique des électrons Auger, émis par un échantillon soumis à un bombardement d'électrons primaires d'énergie de quelques KeV.

La spectroscopie d'électrons Auger permet l'identification des éléments présents en surface et nous renseigne sur la composition élémentaire de la surface de l'échantillon. Elle peut apporter aussi une information partielle sur les liaisons chimiques.

La spectroscopie d'électrons Auger (AES) est une technique non destructive d'analyse élémentaire de la surface d'un échantillon (profondeur allant jusqu'à ~ 3 nm) [65, 66].

Par rapport à la spectroscopie de photoélectrons X, l'AES se caractérise par une résolution latérale bien meilleure (≈ 10 nm).

11.2.3. Diffraction d'électrons de basse et haute énergie LEED et RHEED

La diffraction d'électrons lents (LEED : Low Energy Electron Diffraction) est une technique qui permet d'étudier la structure et la symétrie des surfaces [67, 68].

La technique repose sur la nature ondulatoire des électrons et sur la forte interaction de ceux-ci avec la matière. L'analyse de surface peut être obtenue en utilisant des électrons de faible énergie cinétique (50 eV < E < 100 eV) [69] qui ont un libre parcours moyen ou distance moyenne parcourue entre deux diffusions inélastiques, inférieur à 1 nm.

On peut également utiliser des électrons très énergétiques (E > 1 keV), c'est le cas de la méthode RHEED (Reflexion High Energy Electron Diffraction). Compte tenu de la valeur plus élevée du libre parcours moyen, il est alors nécessaire de travailler en incidence rasante pour avoir uniquement accès à la structure des premiers plans atomiques de surface. Notons que la diffraction RHEED est devenue un outil indispensable pour suivre l'évolution de la croissance de films minces aussi bien dans le domaine de recherche que dans l'industrie [70-73].

11.2.4. Analyses SIMS

La méthode SIMS (Secondary-Ions Mass Spectroscopy) est basée sur l'analyse, par un spectromètre de masse, des ions secondaires émis par le matériau à analyser lorsqu'il est luimême irradié par un faisceau d'ions d'une énergie allant de 0.5 keV à 10 keV.

La détection par spectrométrie de masse offre l'avantage de séparer les ions selon le rapport de leur masse M à leur charge électrique q. la technique permet de distinguer non seulement différents éléments ionisés, mais aussi les différents isotopes d'un même élément.

12. Les méthodes analytiques pour l'étude des ondes de spins dans des structures roksalts

Il est bien connu qu'un réseau de spins à ordre ferromagnétique est caractérisé par la répétition périodique de la maile élémentaire et la configuration réelle de ses sites. Or dans le cas réel, les spins ne sont pas fixes, mais sont en mouvement de précession autour de leurs positions d'équilibre. Ces spins présentent des propriétés de symétrie intéressantes dans l'espace. Les propriétés de symétrie permettent une bonne compréhension des phénomènes collectifs dans le milieu cristallin et aussi une modélisation plus aisée de ses propriétés physiques. Cependant, tout solide est terminé par une surface qui délimite son volume. Le rôle de cette surface est primordial puisqu'elle modifie la nature des interactions par rapport à celles du volume. Cette modification résulte de la brisure de symétrie ; autrement dit le nombre de liaisons des spins de surface est moindre que celui des spins de volume et cette rupture de symétrie entraine des conséquences sur les propriétés physiques de ces liaisons (magnétiques, électroniques et chimiques).

En effet, les conditions aux limites BVK s'appliquent uniquement à des systèmes périodiques infinis. Or, la brisure de la symétrie de translation dans une direction donnée, rend impossible l'application de ces conditions. Autrement dit le théorème de Bloch n'est pas applicable suivant

cette direction. D'où la nécessité d'utiliser de nouvelles formulations théoriques afin de réaliser un couplage entre les équations du mouvement d'une couche de spins à l'autre. Ces formulations permettent, soit de résoudre des systèmes infinis d'équations, soit de limiter, dans une approximation valable, le nombre d'équations et le nombre d'inconnues.

Actuellement plusieurs méthodes ont été élaborées et adaptées à l'étude des systèmes magnétiques désordonnés pour le calcul des états de magnons localisés, ainsi que pour l'étude du phénomène de diffusion d'ondes de spins. Parmi celles-ci, on peut citer : la méthode de diagonalisation directe, la méthode des fonctions de Green et la méthode de raccordement.

Ces méthodes ont en commun l'objectif de quantifier les états d'énergie de l'onde de spins qui se constitue suite à l'excitation magnétique.

12.1. La méthode de diagonalisation directe (MDD)

La méthode a été introduite par Clark en 1965 [74], et elle a été appliquée à un système physique, en 1971 par Allen et Alldredge [75], qui se sont plus particulièrement intéressés aux modes de surfaces d'un réseau cubique à faces centrées et aux effets induits par une couche adsorbée. Depuis, elle a été utilisée pour l'étude de la dynamique vibrationnelle et magnétique des surfaces planes et vicinales [76-78].

Le principe de la MDD consiste à limiter les systèmes magnétiques étudiés à un nombre fini de plans atomiques de structure périodique dans une direction donnée (direction z par exemple), avec une extension infini dans les deux autres directions cartésiennes x et y.

Afin de garantir l'existence d'une région de volume au centre du système, le nombre de plans utilisés pour la modélisation doit être suffisamment grand, ce qui engendre des difficultés de calcul lors des simulations numériques dues à la taille de la matrice dynamique.

L'écriture des équations du mouvement de précessions des sites de spins d'un système magnétique, permet d'en déduire la matrice dynamique (construite à partir des équations linéaires liant les amplitudes de précession aux vecteurs de spins). La résolution numérique de la matrice dynamique détermine ses valeurs propres ainsi que ses vecteurs propres, ce qui donne accès aux courbes de dispersions, aux états localisés, aux densités spectrales et autres spectres.

12.2. La méthode des fonctions de Green

Cette méthode a été introduite par G. Green [79] en 1850. Elle est basée sur la résolution d'une équation aux dérivées partielles à coefficients constants. Cette dernière est bien adaptée à la méthode des perturbations. Elle est souvent utilisée comme une technique de référence pour

l'étude de la dynamique vibrationnelle et magnétique des systèmes réels avec quelques variantes dans son formalisme mathématique [80-92]. Elle a été appliquée, pour la première fois, à la physique de l'état solide par Slater [93]. Le principe de la méthode consiste à créer un réseau semi-infini à partir d'un réseau infini en annulant les interactions entre les atomes/ou spins situés de part et d'autre du plan bissecteur de deux plans atomiques consécutifs. Cette modification est interprétée comme une perturbation agissant sur la matrice dynamique M_D du système illimité en la transformant en une matrice M_S qui s'écrit sous la forme

$$M_S = M_D + W \tag{2.1}$$

Où *W* représente la matrice de perturbation composée d'une sous-matrice non nulle dont l'ordre fini dépend du nombre de plans atomiques/spins affectés par la perturbation.

Si $G(\omega)$ est la matrice des fonctions de Green définie par :

$$G(\omega) = [\omega I - M_D]^{-1} \tag{2.2}$$

Pour un système de spins perturbé, la fonction de Green peut s'exprimer comme suit

$$G_{S}(\omega) = [\omega I - M_{S}]^{-1} = [\omega I - (M_{D} + W)]^{-1}$$
$$G_{S}(\omega) = \left[(\omega I - M_{D}) \cdot \left(I - \frac{W}{\omega I - M_{D}}\right)\right]^{-1}$$
$$G_{S}(\omega) = \left[(\omega I - M_{D}) \cdot (I - G(\omega) \cdot W)\right]^{-1}$$

D'où la relation matricielle suivante

$$G_{\mathcal{S}}(\omega) = [(I - G(\omega).W)]^{-1}.G(\omega)$$
(2.3)

L'ensemble des états de précessions du système perturbé est alors donné par les pôles de la fonction $G_S(\omega)$. [94-96]. Ces derniers permettent, en général, d'interpréter les changements causés par la surface libre sur les spectres de précession des spins.

12.3. La méthode de raccordement

Pour traiter le problème de la dispersion des magnons en présence de surface, interface et/ou inhomogénéités magnétiques, la méthode analytique dite de raccordement constitue un outil efficace. Cette méthode a été introduite initialement par Feuchtwang, en 1967 [97] pour l'étude de l'équilibre de la structure statique d'un réseau cristallin semi-infini. Puis développé en 1987 par Khater et Szeftel [98], dans des applications, dans le domaine des phonons, sur les surfaces Ni(100) et Ni(100)+c(2×2) [99]. Depuis, la méthode de raccordement a contribué à l'étude de la dynamique électronique, vibrationnelle et magnétique de plusieurs systèmes physiques perturbés [100-104].

12.3.1. Principe de la méthode de raccordement

Dans ce présent travail de thèse, la méthode de raccordement a permis de décrire le mouvement de précession des spins dans le monoxyde de type MO, par un nombre limité d'équations. Son application exige que le monoxyde semi-infini soit divisé en trois régions distinctes.



Fig.II.4. Représentation schématique d'un monoxyde semi-infini selon le concept de la méthode raccordement.

i) **Région de volume (dite parfaite)** : c'est la région où on retrouve la structure du monoxyde loin de la surface. Dans cette zone, les spins ne sont pas influencés par la présence de la surface, elle est caractérisée par une périodicité tridimensionnelle. Elle permet de tracer les courbes de dispersion en volume et de définir les modes propageants et les modes évanescents du système, dont nous aurons besoin. Les

solutions du système sont obtenues à partir des valeurs et vecteurs propres du monoxyde parfait.

ii) **Région perturbée (parfois dite de défaut)** : c'est la région de surface elle même. Elle est affectée par la relaxation et la reconstruction, d'où la perte de la périodicité du réseau.

iii) **Région de raccordement** : c'est la zone intermédiaire entre la région parfaite et la surface. Elle permet dans la modélisation théorique de raccorder analytiquement les modes induits par la surface aux états de précession évanescents de la zone parfaite.

12.4. Le formalisme théorique

La présence d'une surface pose des problèmes théoriques compliqués à résoudre, qui sont liés à la brisure de symétrie. Il est indispensable d'introduire des méthodes appropriées pour les étudier. Notre approche dans ce domaine est basée sur celle proposée par Landauer- Büttiker [105-112] associée à la méthode dite de raccordement. L'approche de Landauer consiste à représenter l'échantillon étudier par une serie de diffuseur, ou défauts, incorporés dans un guide d'onde parfait, il permet en effet de mieux comprendre ce qui se passe dans des matériaux de basse dimensions ou de structure perturbée.

Dans ce travail, nous adaptons cette approche à l'étude de la dynamique de précession des spins dans les monoxydes antiferromagnétiques en présence de deux types de surfaces, plane et vicinale. La matrice dynamique du système semi-infini est rectangulaire, et l'application de la méthode de raccordement permettra de surpasser cette difficulté et donnera accès à tous les spectres magnonique du monoxyde en présence de la surface.

12.5. Matrice dynamique du système semi-infini

L'existence d'une surface constitue une brisure de symétrie, et les spectres magnoniques sont modifiés par rapport à ceux du volume en tant que système parfait.

La dynamique du système avec brisure de symétrie (connaître ses propriétés magnétiques et ses spectres magnoniques) passe inévitablement par la détermination de sa matrice dynamique D_S . Cette matrice trouve son origine dans l'écriture de toutes les équations du mouvement de précession des spins du système inhomogène (comprenant les spins des sites de la région perturbée ainsi que les spins de la région de raccordement de la figure 2.4), en utilisant l'équation (1.34).

50

L'écriture des équations des sites de raccordement fait intervenir les sites adjacents de la zone parfaite, par conséquent on obtient une matrice rectangulaire $D_s(m \otimes n)$ (plus de colonnes que de lignes).

12.6. Ecriture de la matrice de raccordement

D'après la méthode de raccordement, nous sommes amenés à exprimer l'ensemble des amplitudes de précession des spins du système semi-infini par un vecteur ayant comme composantes uniquement les précessions des spins de la surface et celles des spins de la zone de raccordement. Nous obtenons alors une matrice rectangulaire $D_R(n\otimes m)$; dite matrice de raccordement.

Pour déterminer les éléments de la matrice de raccordement, nous suivons les étapes suivantes : - nous définissons un espace avec une base distincte { \vec{R}^+ }. Ce dernier est utilisé pour l'étude de la précession des spins appartenant à la région de raccordement. Dans cette région, on peut écrire leurs amplitudes de précession comme suit

$$\vec{u}_{\alpha}(n_x, n_y, n_y) = \sum_{j=1}^{2} Z_j^{nx} A'(\alpha, j) \vec{R}_j^+$$
(2.4)

Avec \vec{R}_{j}^{+} , le vecteur unitaire qui caractérise les modes évanescents *j* dans la base { \vec{R}^{+} }, α est l'une des trois directions (*Ox*), (*Oy*) ou (*Oz*), *A*' est le poids pondéré associé aux différents modes évanescents déterminés à l'aide des vecteurs propres issus de l'étude de la matrice dynamique du monoxyde parfait.

Si on note par $|\vec{u}\rangle$ le vecteur de précession des spins de la zone perturbée. On peut le décomposer en deux parties

$$\left|\vec{u}\right\rangle = \begin{bmatrix} \left|\vec{irr}\right\rangle\\ \left|\vec{R}^{+}\right\rangle\end{bmatrix}$$
(2.5)

Ce vecteur permet de remonter à la matrice de raccordement D_R .

En effectuant le produit matriciel entre la matrice dynamique D_S et la matrice de raccordement D_R , on obtient une matrice carrée, noté $S(m \otimes m)$, du monoxyde semi-infini. On écrit alors

$$[D_{S}(m \otimes n)].[D_{R}(n \otimes m)].\left[\begin{vmatrix} \overrightarrow{irr} \\ |\overrightarrow{R}^{+} \\ \end{vmatrix}\right] = [S(m \otimes m)]\left[\begin{vmatrix} \overrightarrow{irr} \\ |\overrightarrow{R}^{+} \\ \end{vmatrix}\right]$$
(2.6)

12.7. Etats localisés des spins

En raison de la brisure de symétrie suivant la direction (Oz), par exemple, l'onde de spins est atténuée en présence de la surface. Par conséquent, il est très pratique de relier les amplitudes des vecteurs de précession des spins adjacents (aux spins qui assurent la liaison avec les spins de la zone de raccordement) par un facteur d'atténuation Z, tel que

$$\vec{u}_{\alpha}(n_{x}, n_{y}, n_{z} \pm 1) = Z^{\pm 1} \vec{u}_{\alpha}(n_{x}, n_{y}, n_{z})$$
(2.7)

Le paramètre Z et son inverse 1/Z sont appelés facteurs de phases.

L'équation (2.7) est l'une caractéristique essentielle de la méthode de raccordement.

Les états localisés induits par l'existence de la surface, dans la structure du monoxyde à spins couplés antiferromagnétiquement, sont à déterminer par la relation de compatibilité suivante

$$\det([S(m \otimes m)] = 0 \tag{2.8}$$

Nous rappelons que la description des phénomènes de localisation et de la diffusion d'ondes de spins en présence des inhomogénéités ponctuelles ou géométriques exige la connaissance des modes propageants et des modes évanescents. Ces modes peuvent être déterminés par la méthode du déterminant (diagonalisation) ou la méthode de l'augmentation de la base de la matrice dynamique du système parfait (ou en volume), que nous avons noté par D_V .

12. 8. Densités d'états magnoniques

Pour déterminer les densités d'états locales des magnons, notées LMDOS, des sites situés dans la zone irréductible, nous associons l'opérateur des fonctions de Green à la méthode de raccordement [113].

L'opérateur s'exprime d'une façon compacte par la relation suivante

$$G(\Omega + i\varepsilon) = [(\Omega + i\varepsilon)I - S(\vec{q}, J_{ll'})]^{-1}$$
(2.9)

Cet opérateur est obtenu à partir de la matrice S (issue du produit matriciel entre la matrice dynamique du système semi-infini et la matrice de raccordement), que nous avons calculée par l'équation (2.6).

Les densités spectrales magnoniques, pour un vecteur d'onde parallèle à une direction α donnée se calcule par la relation

$$\rho_{(\alpha,\beta)}^{(l,l')}(\Omega) = 2\Omega \sum_{m} C_{\alpha m}^{l} . C_{\beta m}^{l'} . \delta(\Omega - \Omega_{m})$$
(2.10)

Où *l* et *l*' représentent deux positions différents de sites de spins, α et β se référent aux directions cartésiennes, et la lettre $C_{\alpha m}^{l}$ définit la composante α de vecteur amplitude de précession du spin *l*, pour la branche d'énergie Ω_{m} .

La densité d'états magnoniques locale correspond à la somme de la trace des matrices des densités spectrales. Elle est donnée par la relation

$$N(\Omega) = \sum_{l\alpha} \rho_{(\alpha,\alpha)}^{l}(\Omega) = (-2\Omega/\pi) \sum_{l\alpha} \lim_{\varepsilon \to 0^{+}} [G_{\alpha\beta}^{ll'}(\Omega + j\varepsilon)]$$
(2.11)

Références du chapitre II

- [1] Belgium Polymer Group, *Nanocomposites à charges lamellaire et matrice polymère*, compte d'un atelier de prospective sur le sujet, ARAMM, INSA- Lyon, FPL (2003).
- [2] S. Andrieu and P Müller, *Les surfaces solides : concepts et méthodes*, Editeur: EDP Sciences (2005).
- [3] J. Fridel, Ann. Phys. 1, 257 (1976).
- [4] F. Leroy, PhD Thesis, Grenoble (2004).
- [5] S. Rousset, B. Croset, V. Repain. Y. Girard, G. Prévot, V. Repain and S. Rohart, C.R. Physique 6, 33 (2005).
- [6] C. Teichert, Appl. Phys. A 76, 653 (2003).
- [7] P. L. Chen, C. T. Kuo, T. G. Tsai, B.W. Wu, C. C. Hsu and F.M. Pan, Appl. Phys. Lett. 82, 2796 (2003).
- [8] V. Repain, J.M. Berroir, S. Rousset, J. Lecoeur, Surf. Sci. 447, L152 (2000).
- [9] H. Lichtenberger, M. Mühlberger, F. Schäffler, Appl. Phys. Lett. 86, 131919 (2005).
- [10] M. Hernández-Vélez, Thin Sol. Films 495, 51 (2006).
- [11] Q. Cai, W. Zhou, J. Phys. Cond. Matter 16, 6835 (2004).
- [12] R. F. Dou, J. F. Jia, M. J. Xu, M. H. Pan, K. He, L. J. Zhang and Q. K. Xue, Physica E 25, 660 (2005).
- [13] S. Rousset, V. Repain, G. Baudot, Y. Garreau and J. Lecoeur, J. Phys. Cond. Matter 15, S3363 (2003).
- [14] Y. Garreau, A. Coati, A. Zobelli and J. Creuze, Phys. Rev. Lett. 91, 116101 (2003).
- [15] X. R. Huang, J. Bai, M. Dudley, B. Wagner, R. F. Davis and Y. Zhu, Phys. Rev. Lett. 95, 086101 (2005).
- [16] H. Zheng, L. Salamanca-Riba, R. Ramesh and H. Li, Appl. Phys. Lett. 85, 2905 (2004).
- [17] L. Maurice, J. Briatico, D. G. Crété, J. P. Contour and O. Durand, Phys. Rev. B 68, 115429 (2003).
- [18] F. Shulze, A. Dadgar, J. Bläsing and A. Krost, Appl. Phys. Lett. 84, 4747 (2004).
- [19] T. J. Minvielle, R. L. White, M. L. Hildner and R. J. Wilson, Surf. Sci. 366, L755 (1996).
- [20] I. Stara, V. Nehasil and V. Matolin, Surf. Sci. 365, 69 (1996).
- [21] J. G. Mavroides, J. A. Kafalas and D. F. Kolisar, Appl. Phys. Lett. 28, 241 (1976).
- [22] A. Marmier, A. Lozovoi and M. W Finnis, J. Eur. Ceram. Soc. 23, 2729 (2003).
- [23] L. Pham Van, O. Kurnosikov and J. Cousty, Surf. Sci. 411, 263 (1998).
- [24] L. Pham Van, J. Cousty, C. Lubin, Surf. Sci. 549, 157 (2004).
- [25] S. Benedetti, P. Torelli, P. Luches, E. Gualtieri, A. Rota and S. Valeri, Surf. Sci. 601, 2636 (2007).
- [26] F. Raouafi, C. Barreteau, D. Spanjaard and M. C. Desjonquères, Phys. Rev. B 66, 045410 (2002).
- [27] Y. W. Mo, J. Kleiner, M. B. Webb and M. G. Lagally, Surf. Sci. 268, 275 (1992).
- [28] L. Robert, " adsorption", Techniques de l'ingénieur, vol. J 2-1, (1996).
- [29] P. Hartman, J. Crystal. Growth 49, 166 (1980).
- [30] J. Bassieres, R. Baro, J. Crystal .Growth 18, 225 (1973).
- [31] K. Müller, Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie 90, 184 (1986).
- [32] E. A. Wood, J. Appl. Phys. 35 1306 (1964).

- [33] P. W. Tasker, J. Phys. Cr Solid State Phys. 12, 4977 (1979).
- [34] A. M. Stoneham, *Defects and their structure in Non-Metallic Solids*, eds B. Henderson and A. E. Hughes (New York: Plenum), (1976).
- [35] F. Bertaut, Compt. Rendu 246, 3447 (1958).
- [36] U. Gradmann: J. Mag. Mag. Mat. 54-57, 733 (1986).
- [37] C. Chappert, K. Le Dang, P. Beauvillaic, H. Hurdequint and D. Renard, Phys. Rev. B 34, 3192 (1986).
- [38] C. Chappert and P. Bruno: J. Appl. Phys. 64, 5736 (1988).
- [39] P. Bruno and J. P. Renard, Appl. Phys. A 49, 499 (1989).
- [40] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. 105, 904 (1957).
- [41] D. Mauri et al., J. Appl. Phys 62, 3047 (1987).
- [42] F. Vidal, Y. Zheng, J. Milano, D. Demaille, P. Schio, E. Fonda and B. Vodungbo, Appl. Phys. Lett. 95, 152510 (2009).
- [43] C. Helman, J. Milano, S. Tacchi, M. Madami, G. Carlotti, G. Gubbiotti, G. Alejandro, M. Marangolo, D. Demaille, V. H. Etgens and M. G. Pini, Phys. Rev. B 82, 094423 (2010).
- [44] M. Sacchi, M. Marangolo, C. Spezzani, R. Breitwieser, H. Popescu, R. Dealaunay, B. Rache Salles, M. Eddrief and V. H. Etgens, Phys. Rev. B 81, 220401 (2010).
- [45] S. Tacchi, M. Madami, G. Carlotti, G. Gubbiotti, M. Marangolo, J. Milano, R. Breitwieser, V. H. Etgens, R. L. Stamps and M. G. Pini, Phys. Rev. B 80,155427 (2009).
- [46] R. Breitwieser, M. Marangolo, J. Lüning, N. Jaouen, L. Joly, M. Eddrief, V. H. Etgens and M. Sacchi, Appl. Phys. Lett. 93, 122508 (2008).
- [47] M. Sacchi, M. Marangolo, C. Spezzani, L. Coelho, R. Breitwieser, J. Milano and V. H. Etgens, Phys. Rev. B 77, 165317 (2008).
- [48] B. C. Duke, The first Thirty years, Surf. Sci. 299/300 (1994).
- [49] A. Cornet and J.P. Deville, *Physique et Ingénierie des Surfaces*, Ed. EDP Sciences (1998).
- [50] J. P. Eberhart, Analyse Structurale et Chimique des Matériaux, Ed. Dunod, Paris, (1997).
- [51] D. Landolt, *Corrosion et Chimie de Surfaces des Matériaux*, Traité des Matériaux, N°12, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, Lausanne, (1993).
- [52] J. L. Martin and A. George, Caractérisation Expérimentale des Matériaux II –Analyse par Rayons X, Electrons et Neutrons, Traité des Matériaux, N°3, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, Lausanne, (1998).
- [53] J. P. Péré, *La Microscopie Techniques d'Etude en Biologie*, Collection 128, Ed. Nathan, Paris (1994).
- [54] N. Chaban, Thèse de doctorat, Université de Grenoble, France (2012).
- [55] J. M. Cowley. *Electron Diffraction Techniques*. Oxford University Press, N.York(1992).
- [56] D. B. Willimas and C.B. Carter. *Transmission Electron Microscopy: A Textbook for Materials Science*. Plenum Press, New York and London (1996).
- [57] D. McMullan, Scanning 17, 175 (1995).
- [58] E. Z. Ruska. Phys, 83, 492 (1933).
- [59] M. Z. Knoll. Tech. Phys, 16, 467 (1935).
- [60] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber and E. Weibel, Phys. Rev. Lett. 49 (1982).
- [61] R. Wiesendanger and H. J. Guntherodt, *Scanning Tunneling Microscopy II*, ed. Springer Series in Surf. Sci. 28 (1992).
- [62] G. Binnig, C. F. Quate and C. Gerber, Atomic force microscope, Phys. Rev. Lett. 56, 933

(1986).

- [63] I. Czekaj, F. Loviat, F. Raimondi, J. Wambach, S. Biollaz and A. Wokaun, Appl. Catalysis A 329, 68 (2007).
- [64] S. Colin, E. Beche, R. Berjoan, H. Jolibois and A. Chambaudet, Corrosion Science 41, 1051 (1999).
- [65] J.P. Deville and A. Cornet, *Physique et ingénierie des surfaces*. EDP Sciences (2012).
- [66] P. Auger, J. Physique Rad. 6, 205 (1925).
- [67] L. J. Clarke, Surface Crystallography: An Introduction to Low Energy Electron Diffraction, John Wiley, New York, p329, (1985).
- [68] C. Davisson and L. M. Germer, Phys. Rev. 30, 705 (1927).
- [69] E. Bauer, Techniques for the direct observations of structure and imperfections, Ed. R.F. Bunshah, Vol. II, Part. 2, page 502 (Wiley- Interscience, New York, 1969).
- [70] Y. Lee, J. Y. Juang, J. H. Ou, Y. F. Chen, K. H. Wu, T. M. Uen and Y. S. Gou, Physica B 284, 2099 (2000).
- [71] K. Inumaru, T. Ohara and S. Yamanaka, Appl. Surf. Sci. 158, 375 (2000).
- [72] G. A. Samorjai, Treatise on solid state chemistry, Ed. N.B. Hannay, Vol. 6A, 1 (Plenum, New York, 1976).
- [73] D. P. Woodruff and T. A. Delchar, *Modern techniques of surface science*, Cambridge University Press (1988).
- [74] W. Clarke, PhD Thesis, university of California, Los Angeles (1965).
- [75] R. E. Allen, G. P. Alldrege and F. W. De Wette, phys. Rev. B 4, 1648 (1971).
- [76] J. E. Black and P. Bopp, Surf Sci. 140, 275 (1984).
- [77] A. Lock, J. P. Toennies, G. Witte, J. Elec. Spec. Related Phen. 54, 309 (1990).
- [78] P. Knipp, Phys. Rev. B43, 6908 (1991).
- [79] G. Green, Journal für die reine und angewandte Mathematik 39, 73 (1850).
- [80] L. Dobrzynski, Surf. Sci. Reports 6, 119 (1986).
- [81] L. Dobrzynski and D. L. Mills, J. Phys. Chem. Solids 30, 1043 (1969).
- [82] P. Masri, G. Allan and L. L. Dobrzynski, J. Phys. 33, 85 (1972).
- [83] G. Armand, Phys. Rev. B 14, 2218 (1976).
- [84] G. Armand, J. Phys. 38, 989 (1977).
- [85] G. Armand and P. Masri, Surf. Sci. 130, 89 (1983).
- [86] F. Garcia-Moliner, Ann. Phys. (Paris) 2, 179 (1977).
- [87] R. A. Allen, Surf. Sci. 76, 91 (1978).
- [88] G. Treglia and M. C. Desjonqueres, J. de Phys. 46, 987 (1985).
- [89] P. Knippet and B. M. Hall, Surf. Sci. 224, 983 (1989).
- [90] A. Kara, C. S. Jayanthi, S. Y. Wu and F. Ercolessi, Phys. Rev. Lett. 72, 2223 (1994).
- [91] E. J. Mele and M. V. Pykhtin, Phys. Rev. Lett. 75, 3878 (1995).
- [92] A. Kara, S. Durukanoglu and T. Rahim, Phys. Rev. B 53, 15489 (1995).
- [93] J. C. Slater, *Quantum Theory of Molecules and Solids*, (M. C. Graw-Hill, New York, London, 1965).
- [94] H. Grimech and A. Khater, Surf. Sci. 323 (1995).
- [95] H. Grimech and A. Khater, Surf. Sci. 341 (1995).
- [96] A. Virlouvet, H. Grimech, A. Khater, Y. Pennec and K. Maschke, J. Phys. Condens, Matter, 8, 7589 (1996).

- [97] T. E. Feuchtwang, Phys. Rev. 155, 731 (1967).
- [98] J. Szeftel and A. Khater, J. Phys. C: Solid State Phys. 20, 4725 (1987).
- [99] J. Szeftel, A.Khater, F. Mila, S. Datato and N.Auby, J. Phys. C: Solid State Phys. 21, 2113 (1988).
- [100] A. Virlouvet, H. Grimech, A. Khater, Y. Pennec and K. Maschke, J. Phys. : Condens. Matter, 8, 7589 (1996).
- [101] A. Khater, B. Bourahla and R Tigrine, J. Phys. Conference Series 92, 012032 (2007).
- [102] Y. Pennec and A. Khater, Surf. Sc. 348, 82 (1996).
- [103] B. Bourahla, A. Khater and R. Tigrine, Thin Solid Films 517, 6857 (2009).
- [104] B. Bourahla, Thèse de Doctorat, Université M. Mammeri (2007).
- [105] J. E. Avron, A. Elgart, G. M. Graf, L. Sadun and K. Schnee, Comm. Pure. Appl. Math. 57, 528 (2004).
- [106] J. E. Avron, A. Elgart, G. M. Graf and L. Sadun, J. Stat. Phys. 116, 425 (2004).
- [107] M. Büttiker, Phys. Rev. B 38, 9375 (1988).
- [108] M. Büttiker, A. Prêtre and H. Thomas, Phys. Rev. Lett. 70, 4114 (1993).
- [109] X. Waintal, E. B. Myers, P. W. Brouwer and D. C. Ralph, Phys. Rev. B, 62, 8249 (2000).
- [110] M. Büttiker, Y. Imry, R. Landauer and S. Pinhas, Phys. Rev. B 31, 6207 (1985).
- [111] G. Nenciu, J. Math. Phys. 48, 033302 (2007).
- [112] D. K. Ferry and S.M. Goodnick. *Transport in Nanostructures*, Cambridge University Press(2001).
- [113] D. Ghader, V. Ashokan, M. Abou Ghantous and A. Khater, Eur. Phys J. B 86, 180 (2013).

Chapitre III

Dynamique des surfaces des monoxydes semi-infinis suivant la direction [001]

I. Introduction II. Chemins de haute symétrie dans la direction [001] III. Excitations magnétiques dans les monoxydes semi-infinis III.1. Interaction magnétique III.2. Dynamique de spins de surface du réseau monoxyde de type MO III.2.1. Matrice dynamique du système de surface de monoxyde semi-infini Sommaire III.2.2. Matrice de raccordement IV. Résultats des états localisés des monoxydes semi-infinis, suivant la direction [001] IV.1. Les états localisés de spins engendrés par la surface plane d'un monoxyde MO IV.2. Les états localisés de spins engendrés par la surface vicinale d'un monoxyde MO V. Résultats des densités magnoniques locales (LMDOS), suivant la direction [001] V.1. LMDOS des sites irréductibles de la surface plane V.2. LMDOS des sites irréductibles de la surface vicinale VI. Discussion et interprétation des résultats VII. Conclusion du chapitre III Références du chapitre III

I. Introduction

La miniaturisation des dispositifs technologiques et l'engouement pour la nanoscience sont essentiellement motivés par des propriétés physiques exceptionnelles induites par la faible dimensionnalité des matériaux [1]. En effet, les longueurs caractéristiques des propriétés physiques (transport électronique et magnétisme) sont de l'ordre de grandeur des longueurs d'échelle de ces nanocomposés (comme l'épaisseur ou la surface de tailles nanométriques). Citons comme longueur caractéristique la largeur des parois magnétiques ou la longueur de diffusion dépendante du spin de l'électron, qui est une grandeur importante dans les mécanismes de magnéto-transport. D'un point de vue technologique, les films minces contenant des ferromagnétiques sont d'un grand intérêt dans la miniaturisation du matériel électronique destinés au stockage de l'information et à l'accès rapide aux données et cela pour leurs nouvelles propriétés [2-7], qui diffèrent de celles des matériaux massifs.

Malgré la maîtrise des moyens de fabrication et d'élaboration des matériaux, ceux-ci ne sont jamais parfaits. La brisure de symétrie engendrée par la surface elle-même et les inhomogénéités dues au désordre atomique qui s'y trouve à la surface, gouvernent en grande partie leurs propriétés, dont on peut tirer avantage dans plusieurs applications. Ces défauts étaient autrefois souvent négligés par les modèles théoriques, car leur étude pose des problèmes théoriques compliqués à résoudre, qui sont liés essentiellement à la brisure de symétrie.

La présence d'une surface modifie et génère de nouvelles propriétés physiques des matériaux et créée des états localisés de magnons. Actuellement, plusieurs études sont menées pour comprendre leurs influences sur les propriétés magnétiques en général [8-11], et la propagation d'ondes de spins en particulier, par conséquent, les applications pratiques des matériaux vont dépendre des propriétés de leurs surfaces principalement. Leur étude dynamique peut, par ailleurs, conduire à une meilleure connaissance de leurs caractéristiques et constituer ainsi un moyen de contrôle de fabrication fiable de composants électronique, magnétique ou optiques.

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'influence de la forme géométrique de la surface et de la direction cristallographique sur les excitations des spins dans les structures de types monoxydes, notées MO, à couplage antiferromagnétique. Nous abordons le problème des états localisés et les densités d'états des surfaces suivant la direction [001]. La première surface examinée est une surface plane. La seconde, sera une surface en présence d'une marche atomique (terrasse et contres marches).

A partir d'un système modèle, notre travail porte sur l'application et le développement des méthodes analytiques et des simulations numériques pour étudier le phénomène de la localisation des ondes de spins en fonction de la fréquence d'excitation, ainsi que les autres paramètres physiques qui caractérisent le système.

II. Chemins de haute symétrie dans la direction [001]

• Réseau direct et première zone de Brillouin

La structure du réseau direct de la surface (100) est un carré (figure 3. 1 a), il est formé

par les deux vecteurs de base suivants : $\vec{a} \begin{pmatrix} a/2 \\ a/2 \end{pmatrix}$ et $\vec{b} \begin{pmatrix} -a/2 \\ a/2 \end{pmatrix}$.



Fig.(3.1).Représentation des réseaux direct et réciproque ainsi que la première zone de Brillouin réduite de la surface (100)d'une structure monoxyde de type MO en (a) (b) et (c), respectivement.

• Réseau réciproque

Le réseau réciproque du réseau direct de la surface (100), la Fig.(3.1a), est obtenu à l'aide des deux vecteurs de base \vec{A}^* et \vec{B}^* définis par les relations :

$$\vec{A}^* \cdot \vec{a} = 2\pi$$
$$\vec{B}^* \cdot \vec{b} = 2\pi$$
$$\vec{a} \cdot \vec{B}^* = 0$$
$$\vec{b} \cdot \vec{A}^* = 0$$

Un simple calcul permet d'obtenir les résultats suivants :

$$\vec{A}^{*} \begin{pmatrix} 2\pi/a \\ 2\pi/a \end{pmatrix} \text{et} \vec{B}^{*} \begin{pmatrix} -2\pi/a \\ 2\pi/a \end{pmatrix} \text{ avec } \|\vec{A}^{*}\| = \frac{2\sqrt{2}\pi}{a} \text{ et } \|\vec{B}^{*}\| = \frac{2\sqrt{2}\pi}{a}$$

La première zone de Brillouin du réseau carré de la surface (100) est définie dans le réseau réciproque. Elle est représentée sur la Fig.(3.1b).

Sur la Fig.(3.1c), nous avons représenté la première zone de Brillouin réduite, les points remarquables de cette zone sont les points de haute symétrie Γ , X et M.

III. Excitations magnétiques dans les monoxydes semi-infinis

Nous avons étudié l'influence de la forme géométrique de la surface (surface plane et surface sous forme d'une marche) et de la direction cristallographique sur les excitations des spins dans les structures monoxydes, de type MO, à couplage antiferromagnétique. Pour chaque surface examinée, nous avons simulé l'effet de variation des constantes de couplage sur le mouvement des spins, en allant de l'adoucissement vers le durcissement des intégrales d'échange et superéchange au niveau de la zone perturbée.



Fig.(3.2a). Vue de dessus de la disposition des spins à la couche superficielle de la structure monoxyde de type MO. Les cercles bleus et rouges représentent, respectivement, les sites de spins métalliques ayant un spin orienté vers le haut et vers le bas.



Fig. (3.2b). La géométrie de la surface vicinale considérée à l'extrémité de la structure semi-infinie de la structure du monoxyde MO.

III.1. Interaction magnétique

Dans les structures monoxydes, il y a peu de chevauchement des fonctions d'onde des cations les plus proches voisins M^{2+} , mais elles se chevauchent fortement avec les orbitales 2p des anions O^{2-} voisins. Les ponts O^{2-} transmettent une interaction superexchange via l'hybridation entre les orbitales 2p de l'oxygène et les orbitales 3d du métal de transition. Dans ce cas, l'interaction mobilise deux transferts virtuels d'électrons.

Dans toutes les structures de type monoxyde, l'échange interionique, couplant les spins sur les ions adjacents, est plus petit. Cela dépend du chevauchement des fonctions d'onde à décroissance exponentielle. Dans tous les cas, il ne dépasse jamais la barre de 0,01 eV.

Nous rappelons que l'interaction est responsable de l'ordre magnétique des spins ioniques. Les interactions entre une paire de sites de spins (i, j) sont décrites par l'hamiltonien de Heisenberg donné par l'équation (1.6), (voir le chapitre I).

Dans la structure monoxyde parfaite MO considérée dans ce travail, nous calculons trois possibilités d'interactions entre NN sites de spins voisins les plus proches, en fonction de l'alignement parallèle et antiparallèle, nous les avons notées par:

$$J_{NN'} = \begin{cases} J_{1AA}, \, sites \, A - A \\ J_{1AB}, \, sites \, A - B \\ J_{1BB}, \, sites \, B - B \end{cases}$$
(3.1)

Néanmoins, nous n'avons trouvé qu'un seul type d'interaction entre les sites de spins 2NN voisins les plus proches. Nous les avons notés par :

$$J_{2NN'} = \{J_{2AB}, sites A - B$$

$$(3.2)$$

Une illustration des différents types d'interactions dans un réseau parfait MO, a été donné au chapitre 1, sur la figure (1.5b) – page 28.

L'intérêt principal de ce travail est de relever l'effet de la zone de diffusion, qui est définie par la dynamique des couches superficielles du monoxyde. Dans la zone de surface ellemême, le superéchange et les couplages d'échange entre sites de spins sont caractérisés par des valeurs différentes de celles du réseau du monoxyde MO parfait.

Loin de la zone de volume, les couplages entre différents sites de spins sont, respectivement, $J_{1s//AA}$, $J_{1s//BB}$, $J_{1s//AB}$ et $J_{2s//AB}$, dans le plan horizontal du réseau MO infini. Par contre, dans la direction normale, les interactions entre les couches superficielles et les plans adjacents suivants sont symbolisées par $J_{1s\perp AA}$, $J_{1s\perp BB}$, $J_{1s\perp AB}$ et $J_{2s\perp AB}$.

Afin de déterminer les énergies normalisées du réseau monoxyde MO semi-infini, nous introduisons, pour les zones parfaites et diffusantes, les relations suivantes:

$$\lambda_{1BB} = \frac{J_{1BB}}{J_{1AA}}, \ \lambda_{1AB} = \frac{J_{1AB}}{J_{1AA}}, \ \lambda_{2AB} = \frac{J_{2AB}}{J_{1AA}}$$
(zone parfait) (3.3a)

$$\lambda_{1AA//} = \frac{J_{1AA//}}{J_{1AA}}, \ \lambda_{1BB//} = \frac{J_{1BB//}}{J_{1AA}}, \ \lambda_{1AB//} = \frac{J_{1AB//}}{J_{1AA}}, \ \lambda_{2AB//} = \frac{J_{2AB//}}{J_{1AA}} \ (\text{zone perturbée})$$
(3.3b)

$$\lambda_{1AA\perp} = \frac{J_{1AA\perp}}{J_{1AA}}, \ \lambda_{1BB\perp} = \frac{J_{1BB\perp}}{J_{1AA}}, \ \lambda_{1AB\perp} = \frac{J_{1AB\perp}}{J_{1AA}}, \ \lambda_{2AB\perp} = \frac{J_{2AB\perp}}{J_{1AA}}$$
(zone perturbée) (3.3c)

Les paramètres des équations (3b) - (3c) permettent de décrire les modifications magnétiques induites par la zone de surface et l'effet de la marche atomique.

Pour identifier les différents changements engendrés par la présence de la marche en surface, sur la dynamique de spins, nous avons simulé les trois possibilités (l'adoucissement, l'homogénéité et le durcissement) sur le couplage magnétique en surface. Les effets sont décrits par les paramètres λ_{1ij} .

Nous rappelons que, pour $\lambda_{1ij} < 1$, un effet d'adoucissement se produit dans le domaine de surface par rapport au réseau de monoxyde parfait, alors que pour $\lambda_{1ij} > 1$, un effet de durcissement se produit. Dans tous les cas, les indices i et j décrivent les deux sous-réseaux de spins *A* et *B*.

III.2. Dynamique de spins à la surface du réseau monoxyde de type MO

La présence d'une surface brise la symétrie de translation du réseau monoxyde dans les directions Ox et Oz. Cela donne lieu à des modes de spins localisés associés à la bande de volume, appelés branches de magnons de Rayleigh.

Tout le long de ce travail, nous avons utilisé la méthode dite de raccordement pour déterminer les modes de magnons de Rayleigh.

Pour obtenir la précession des spins dans la structure semi-infinie de monoxyde, nous utilisons l'équation (1.6), avec les expressions suivantes des vecteurs de spins :

$$\vec{S}_p(t) = \vec{S}_p(0) + \vec{\sigma}_p(0) \times \exp(-j\omega t)$$
(3.4)

où $\vec{S}_p(0)$ est la partie indépendante du temps dans la direction de l'ordre magnétique le long de la direction O_z et σ_p est la variable fluctuante de spins par rapport à la direction de l'ordre magnétique, donnant lieu à des excitations de spins [12-17].

En écrivant les équations de mouvement de tous les sites de spins au voisinage de la marche en surface, qui délimite le domaine perturbé, on obtient une matrice dynamique rectangulaire qui contient plus de variables inconnues que d'équations (plus de colonnes que de lignes).

Pour résoudre le problème, nous introduisons une approche analytique, qui nous permet de transformer la matrice dynamique rectangulaire initiale en une matrice carrée, par les quantités correspondantes.

III.2.1. Matrice dynamique du système de surface de monoxyde semi-infini

La matrice dynamique, notée M_d , du système de surface plane, trouve son origine dans l'écriture des équations de mouvement des sites de spins (a), (b), (c) et (d) (dits irréductibles), indiqués sur la Fig.3.2a et les sites de raccordement. Ces spins sont choisis de telle manière qu'ils appartiennent à la cellule qui décrit la surface plane perturbée, avec un environnement de volume parfait.

L'ensemble des équations de mouvement de précession des spins définit précédemment constitue un système linéaire homogène. Celui-ci peut se mettre sous forme d'une matrice rectangulaire M_d , contenant plus d'inconnus (6 inconnus) que d'équations (10 équations) telle que :

$$[M_d]|U\rangle = |0\rangle \tag{3.5}$$

avec, dim $[M_d] = 10 \ge 6$

$$\dim |u\rangle = 6 \ge 1$$
$$\dim |0\rangle = 10 \ge 1$$

Ici $|u\rangle$ est un vecteur colonne décrivant les amplitudes de précessions de tous les spins d'une cellule unitaire de la zone considérée.

Pour obtenir la matrice dynamique de la surface vicinale (en présence de la marche), on procède de manière similaire, au premier cas, c'est – à dire en écrivant les équations de mouvement de précession des spins des sites irréductibles (a), (b), (c), (d),(e) et (f), indiqués sur la Fig.(3.2b), et ceux appartenant à la zone de raccordement.

La dimension de la matrice dynamique de la deuxième surface est : dim $[M_d] = 10 \times 14$.

III.2.2. Matrice de raccordement

Le but de cette partie est d'établir les relations de raccordement, reliant les amplitudes de précessions des vecteurs de spins appartenant au domaine de la surface et le champ de précession des modes évanescents en volume (système parfait).

La connaissance des facteurs de phase [z, 1/z], caractérisant les modes évanescents dus à la présence de la surface, et déterminés à partir de l'étude précédente en volume, nous permet de faire cet état de raccordement.

Pour un spin appartenant à la région de raccordement de notre système de surface, on peut décrire les amplitudes de précessions des vecteurs de spins à l'aide de la relation suivante :

$$u_{\alpha}(n_x, n_y, n_z) = \sum_i^{i=2} Z_i^{n_z} P(\alpha, i) R$$
(3.6)

Ici α représente l'une des trois directions cartésiennes et $P(\alpha,i)$ exprime les poids pondérés associés aux différents modes évanescents. Ils sont déterminés à l'aide des vecteurs propres issus de l'étude de la matrice dynamique de la zone parfaite (matrice *D* en volume définie auparavant).

Le vecteur $|u\rangle$, décrivant les amplitudes de précessions des vecteurs de spins appartenant à la maille élémentaire de la zone considérée précédemment (voir Fig.(3.2a) et (3.2b), peut se décomposer en deux parties :

- i) la première est notée par |*irr*>, elle est constituée par les amplitudes de précessions des sites irréductibles formant la région de la surface plane et la surface vicinale (marche).
- ii) Quand à la seconde notée par $|rac\rangle$, elle est formée par les amplitudes de précessions associées aux sites raccordés, ceci pour la base $|R\rangle$.

Ainsi on écrit :

$$|u\rangle = \binom{|irr\rangle}{|rac\rangle}$$
(3.7)

• Pour la surface plane :

 $dim|irr\rangle = (6 \ge 1)$ $dim|rac\rangle = (4 \ge 1)$

Pour la surface vicinale:

$$dim|irr\rangle = (8 \ge 1)$$

 $dim|rac\rangle = (6 \ge 1)$

A partir de là, le raccordement des spins peut être réalisé à l'aide des expressions suivantes :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} I_d & 0\\ 0 & R_1\\ 0 & R_2 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} = M_R \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} = (3.8)$$

Où I_d est une matrice identité, sa taille dépend du nombre de spins des sites irréductibles.

 R_1 , R_2 sont des sous-matrices qui dépendent du nombre de modes propageants du système parfait. La matrice M_R est appelée matrice de raccordement : sa dimension est celle de l'inverse de la matrice dynamique M_d .

Le produit matriciel, $M_d \times M_R = D_s$ permet d'avoir une matrice carrée.

Pour la surface plane, la dimension de la matrice dynamique : $dim(D_s) = (6 \times 6)$.

Pour la surface vicinale, la dimension de la matrice dynamique : $\dim(D_s) = (10 \times 10)$.

Pour accéder aux magnons de surface et aux spectres de surface, on recherche la solution non triviale de la matrice dynamique carrée $[D_s]$ de la structure monoxyde dans le cas de la surface plane et la surface vicinale (marche), en fonction du couplage magnétique entre paires de spins.

Les résultats numériques de nos simulations sont donnés dans les Figs. (3.3)-(3.8), où les états localisés de spins sont présentés pour les trois possibilités d'interactions magnétiques dans le domaine de surface. L'adoucissement est décrit quand on suppose que les interactions de surface sont plus petites que celles de la zone parfaite. Alors qu'un cas de durcissement est considéré, lorsque les interactions magnétiques de surface sont plus importantes que celles du volume. Pour décrire une situation homogène, nous supposons que toutes les interactions sont les mêmes partout (surface et volume).

IV. Résultats des états localisés des monoxydes semi-infinis, suivant la direction [001]IV.1. Les états localisés de spins engendrés par la surface plane d'un monoxyde MO



Fig.(3.3) : Courbes des états énergétiques localisés de spins à la limite de la surface plane d'un réseau de monoxyde MO. La direction d'excitation est [001].Les énergies en volume sont représentées en rouge, tandis que les symboles circulaires représentent les modes de magnon de surface localisés. Les résultats sont donnés pour les interactions de spins adoucissant. Les interactions de spin d'échange et de super-échange dans la zone perturbée sont prises plus petites d'environ 20% que celles de la structure de monoxyde parfaite.



Fig.(3.4) : Mêmes résultants que la figure (**3.3**), avec des interactions homogènes. Dans ce cas, les interactions sont prises partout comparables, zones parfaites et perturbées.



Fig. (3.5) : Mêmes résultats que la figure (3.3) pour les interactions de spins de durcissement. Cette situation correspond au cas où les interactions dans le domaine perturbé sont prises supérieures d'environ 20% à celles de la structure parfaite de monoxyde antiferromagnétique.

IV.2. Les états localisés de spins engendrés par la surface vicinale d'un monoxyde MO (en présence de la marche)



Fig. (3.6) : Spectres théoriques de magnons localisés à la surface de la structure de monoxyde MO, obtenus pour une possibilité de l'adoucissement du couplage des spins à la surface. La direction d'excitation est [001]. Les modes théoriques de précession des spins en volume sont tracés par la zone ombrée. Les constantes de couplage au niveau des couches de la surface sont 20% inférieures à celles du volume parfait.



Fig. (3.7) : Identique à la Fig.(3.4), avec des interactions homogènes entre les sites de spins à la surface. Les constantes de couplage au niveau des couches de la surface sont comparables à celles du système parfait.



Fig. (3.8) : Identique à la Fig.(3.4), avec des interactions durcies entre les sites de spins à la surface. Les constantes de couplage au niveau des couches de la surface sont 20% plus grandes que celles du système parfait.

V. Résultats des densités magnoniques locales (LMDOS), suivant la direction [001]V.1. LMDOS des sites irréductibles de la surface plane



Fig. (3.9) : Les courbes des magnons indiquent les densités locales des sites de spins (LMDOS) en fonction de la fréquence de diffusion Ω et les paramètres d'interaction à la surface. La direction d'excitation est [001]. Les LMDOS sont données pour les sites irréductibles de spins (a), (b), (c) et (d) qui constituent la zone de surface. Les LMDOS sont exprimés en unités arbitraires. Les constantes de couplage à la surface sont 20% inférieures par rapport à celles de la zone parfaite.


Fig. (3.10) : Identique à la figure (3.7). Les constantes de couplage des spins à la surface sont prises homogènes entre les différents sites.



Fig. (3.11) : Identique à la figure (3.7). Les constantes de couplage au niveau des couches de la surface sont 20% plus élevées que les constantes du monoxyde parfait.



V.2. LMDOS des sites irréductibles de la surface vicinale

Fig. (3.12) : Les courbes des magnons indiquent les densités locales des sites de spins (LMDOS) en fonction de la fréquence de diffusion Ω et les paramètres d'interaction à la surface. La direction d'excitation est [001]. Les LMDOS sont données pour les sites irréductibles de spins (a), (b), (c), (d),

(e) et (f) qui forment la marche atomique. Les LMDOS sont exprimés en unités arbitraires. Les constantes de couplage à la surface sont 20% inférieures par rapport à celles de la zone parfaite.



Fig. (3.13) : Identique à la figure (3.10). Les constantes de couplage des spins à la surface sont prises homogènes entre les différents sites.



Fig. (3.14) : Identique à la figure (3.10). Les constantes de couplage au niveau des couches de la surface sont 20% plus élevées que les constantes du monoxyde parfait.

VI. Discussion et interprétation des résultats

a)Les états localisés des spins

Le modèle des ondes de spins présenté dans ce travail, suppose l'existence d'une structure ordonnée. Il n'est valable que dans la limite des basses températures. Les propriétés magnoniques des monoxydes de première série peuvent être considérées à partir deux points de vue :

(*i*) le comportement des grandeurs physiques en fonction de la forme géométrique de la surface (étude d'une surface plane et surface vicinale)

(*ii*) et en fonction de la direction cristallographique ([001] et [011]).

Sur les Fig.(3.3), Fig.(3.4) et Fig. (3.5), nous avons représenté les courbes des états énergétiques localisés de spins à la limite de la surface plane ; tandis que sur les Fig.(3.6), Fig.(3.7) et Fig. (3.8)les résultats se rapportent à une surface vicinale d'un réseau de monoxyde MO suivant la direction d'excitation [001].

Les états localisés générés par les surfaces des monoxydes perturbés (structures semi-infinies) sont tracés par des branches en noir. Les états du volume (monoxyde 3D parfait) sont

représentés en bande continue (rouge pour la surface plane et en bleu pour la surface vicinale).

Comme on peut le constater, les modes localisés, dans l'ensemble des situations de l'environnement magnétique et des directions cristallographiques examinées, sont fortement dépendant des constantes de couplage (échange et super-échange) entre différents sites de spins (de l'adoucissement au durcissement).

On constate que les branches des états localisés de spins se décalent vers les hautes fréquences, le long du chemin de la direction de haute symétrie avec le durcissement des intégrales d'échange et de super-échange au niveau de la surface. On remarque aussi que le nombre de branches localisées augmente dans le cas de la surface vicinale par rapport à la surface plane. Ceci est attendue puisque, les deux terrasses situées de part et d'autre de la contre marche engendrent plus d'états localisés et plus d'interactions à causes des réflexions multiples et la brisure de symétrie.

Comme dans le cas des métaux et des matériaux semi-conducteurs, on note la présence d'excitations de surface spécifiques dans des réseaux de monoxyde semi-infinis. On distingue trois types de modes magnons localisés en surface:

- (i) les modes magnons de Rayleigh [15],
- (ii) les modes de Fuchs-Klieswer [16],
- (iii) les modes de surface microscopiques [17].

Les deux premiers modes cités ont une longue pénétration dans le cristal. Par contre, les modes Rayleigh sont situés sous les branches acoustiques massives. Les seconds modes (Fuchs) sont situés dans les branches optiques. Le troisième type de modes se trouve, en général, dans l'intervalle du spectre des magnons de volume.

Nous rapportons que l'existence d'une surface, d'une interface ou de différents types de perturbations géométriques dans les matériaux magnétiques, induit des états de spins localisés autour de ces zones. Ainsi, les surfaces modifient principalement les propriétés électroniques et magnétiques, dans les structures oxydées, en induisant une sous-stœchiométrie dans les couches externes. Par conséquent, de fortes redistributions d'électrons ont lieu autour des sites d'oxygènes. Les mêmes phénomènes sont observés dans les processus d'adsorption et d'adhésion.

Les branches de magnons localisées de la surface vicinale sont calculées numériquement par les solutions de l'équation (3.5). Les résultats sont représentés sur les Figs.(3.6), (3.7) et (3.8), en fonction du vecteur d'onde le long des chemins de symétrie élevée.

Ces états démontrent les caractéristiques essentielles des modes de surface des ondes de spins et l'influence des paramètres de couplage sur les modes localisés des magnons dans le domaine de la surface.

Afin de pouvoir faire une comparaison, la bande de magnons en volume est également tracée pour la structure de monoxyde parfaite, qui correspond à la fréquence d'intervalle définie par : $0 \le \Omega \le 133$, comme illustrée par la zone ombrée.

Le modèle présenté est appliquée pour étudier la dynamique de spins et les effets de couplage sur les spectres magnétique, en simulant un cas d'adoucissement, puis homogène et en fin un durcissement à la surface en présence des deux terrasses et de la contre marche.

Sur la Fig.(3.6), les résultats correspondent au cas de l'adoucissement des interactions, lorsque les constantes de couplage magnétique entre sites de surface sont inferieures à celles du monoxyde ferromagnétique parfait tridimensionnel de l'ordre de 20 %.

Alors que les résultats de la figure (3.8) traitent une situation de durcissement, ce qui correspond au cas où les interactions magnétiques au niveau de la zone de surface du réseau sont supérieures à celles du réseau de spins du monoxyde parfait de 20 %.

Dans la figure. (3.7), les résultats décrivent la possibilité homogène. Ici, les interactions magnétiques sont partout similaires.

Comme cela a été mentionné dans le chapitre 2, la région où le module du facteur de phase, $|\eta| = 1$, correspond aux modes propageants, dans le monoxyde antiferromagnétique parfait.

Près du domaine de la surface, les courbes des spectres des spins représentent des branches de magnons se propageant le long de la direction O_z qui sont, cependant, effectivement localisés dans le sens où leur champ de fluctuation d'amplitude de précession est évanescent dans les couches de spins adjacentes à la surface.

De plus, l'amplitude de l'onde de spins localisée dans la zone de surface décroît de façon exponentielle avec une pénétration croissante dans le bulk du réseau monoxyde parfait.

Nous notons que les branches de dispersion des magnons de Rayleigh, en dehors de la bande de magnons en volume, correspondent à des ondes de spins en déplacement sur la frontière du domaine de surface, avec des champs de précession qui sont par ailleurs localisés le long des chemins de haute symétrie, et diminuant le long de la direction Oz de manière évanescente comme lorsqu'on s'éloigne de la frontière de la surface vers le réseau en bulk.

Il est évident que, dans tous les cas simulés, qu'un certain nombre de branches localisées donnent les énergies de surface échelonnées. De plus, les résultats illustrent comment la rupture de la symétrie de translation due à la présence d'une marche peut induire de nouvelles branches le long d'un bord de la marche dans une surface.

Dans l'ensemble des cas simulés et les surface examinées, on voit bien que les branches de spins localisés sont très sensibles aux interactions magnétiques au niveau de la zone de surface. Comme il faut s'y attendre, on observe le déplacement des branches du magnon Rayleigh vers des fréquences plus élevées avec le durcissement des valeurs de λ .

Pour les interactions magnétiques élevées (durs) les modes optiques de surface apparaissent à des fréquences élevées au-dessus de la limite supérieure de la bande apparente des magnons.

b) Les densités d'états magnoniques

Nous avons calculé les densités d'états magnoniques locales (LMDOS) par sites de spins. Les résultats sont présentés sur les Fig.(3.9)-(3.11) pour la surface plane et (3.12)-(3.14) pour la surface vicinale. Décrivant, respectivement, les effets d'interaction magnétique adoucissante, homogène et durcissante au niveau de la zone de surface.

Les LMDOS sont calculés pour les sites de spins (a), (b), (c), (d) pour la surface plane et (a), (b), (c), (d), (e) et (f) pour la surface vicinale qui constituent la zone irréductible du monoxyde étudié (indiquée sur les Fig.(3.1) et (3.2)).

Le groupe de trois sites de spins (a), (c), (e), sont orientés dans le même sens (spin up) et les trois autres sites (b), (d), (f), ont également la même nature (spin down).

Dans le cas d'une surface plane, les spectres LMDOS, sur les Fig. (3.9), (3.10) et (3.11), présentent des pics de résonance situés à l'intérieur de la bande de magnons situés dans la zone parfaite $0 \le \Omega \le 133$.

Sur la figure (3.9), on constate que les sites (a) et (b) sont excités tout d'abord, à très basse fréquence, par rapport aux autres sites, qui se situent sur le plan assurant le passage à la couche ci-dessous.

De plus, en s'éloignant de la surface, l'amplitude de la précession se déplace vers les hautes fréquences. Les mêmes remarques sont valables sur les deux Fig. (3.10) et (3.11).

Par comparaison entre les trois figures de LMDOS, on remarque que la structure et le nombre de pics résonnants et leurs positions sont très sensibles à la variation du couplage magnétique noté par le symbole λ .

Les sites irréductibles ne présentent aucune résonance collective, ce qui nous amène à conclure que les sites de spins situés sur la zone irréductible n'ont pas la même fréquence de précession.

Les mêmes observations sont aussi valables dans le cas de la deuxième surface vicinale. Les spectres LMDOS sont sensibles aussi aux changements de couplage magnétique sur la zone de surface vicinale, comme on peut le voir sur les Fig. (3.12), (3.13) et (3.14).La sensibilité de ces résultats est comparable à celle observée pour les spectres magnétiques aux frontières séparant les domaines de phase: en nanocontact atomique unique [18].

Dans les courbes des LMDOS, on aperçoit plusieurs pics dus aux interactions entre les modes de précession localisés dans le domaine perturbé et les modes propageants créés par le guide d'ondes parfait (monoxyde 3D). Certains pics correspondent aux résonances de type Fano.

Les spectres des LMDOS des sites de spins appartenant à la zone irréductible sont aussi très sensibles aux variations de l'environnement magnétiques au niveau des surfaces sous étude.

On note un déplacement vers les hautes énergies en fonction de durcissement des intégrales d'échange et de superéchange dans les zones perturbées.

On peut noter que ces états dépendent fortement de l'ordre structurel des spins sites et des intégrales de couplage dans les zones perturbées. Cette étude attend de nombreuses applications futures dans l'étude de la dynamique magnétique de ces systèmes afin de mieux comprendre le transport de l'information et aussi dans l'étude de la drinfluence de la combinaison de plusieurs couches différentes sur la précession des magnons de ces monoxydes.

VII. Conclusion du chapitre

La rupture de la symétrie de translation dans la direction perpendiculaire à une surface donne lieu à des modes d'ondes de spins localisés dans son voisinage.

Le cadre mathématique de la méthode de raccordement et le modèle de Heisenberg sont utilisés dans notre étude et peuvent être appliqués pour analyser les phénomènes de localisation et de diffusion de magnons pour une configuration géométrique de surface (plane et vicinale).

Nous avons également calculé le LMDOS pour les sites de spins irréductibles qui constituent un ensemble représentatif minimum dans le domaine de surface. Les résultats sont donnés en fonction des paramètres de couplage de spins. En faisant varier le couplage magnétique en surface, on a observé des décalages importants des niveaux d'énergie des modes localisés en surface, des cas d'adoucissement au durcissement. Ceci illustre théoriquement la variation des spectres de diffusion pour le durcissement et le adoucissement des paramètres d'échange et de super-échange en surface et le couplage cohérent entre ces ondes de spins localisées et les modes de spins continu du système monoxyde.

Les spectres magnétiques étant fortement modifiés par les changements de l'environnement au niveau du réseau de surface, cette situation conduit à une modification des propriétés électroniques. Nous concluons que la réactivité des sites de surface dépend de la position atomique (position énergétique des orbitales), qui participent à la liaison chimique avec les espèces réactives.

Références du chapitre III

- [1] J.A.C. Bland and B. Heinrich, editors. Ultrathin Magnetic Structures I : An Introduction to the Electronic, Magnetic and Structural Properties. Springer, (2005).
- [2] A.Karipera, E. Güneria, F. Gödeb and C. Gümüşc, Chal. Lett. 9, 27, (2012).
- [3] C. Sanz, C. Guillén, M. T. Gutiérrez and J. Herrero, Phys. Status Solidi (a) 210, 320, (2013).
- [4] R. Lamni, Thèse de Doctorat, Université Poincaré, Nancy I, France (2005).
- [5] J.Goniakowski and C. Noguera, Phys. Rev. B 83, 115413, (2011).
- [6] A. Salazar, R. Patino, J. L. Peña, W. Cauich and A. I. Oliva, Braz. J. Phys. 36, 1058 (2006).
- [7] C.V. Chianca and R. N. Costa, J. Mag. and Mag. Mat. 246, 16, (2002).
- [8] V. Russier, K. Younsi and L. Bessais, J. Magn. Magn. Mat. 324, 1122 (2012).
- [9] F. Fang, M. Boero, P. Rabu and C. Massobrio, C. R. Acad. Sci. Chim. 15, 202 (2012).
- [10] R. Soulairol, Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie Paris VI (2011).
- [11] W. P. Zhou, G. H. Yun and X. X. Liang, Phys. Rev. B 77, 104403 (2008).
- [12] A. Belayadi, B. Bourahla and A. Mougari, Spin 9, 1950005 (2019).
- [13] A. Belayadi, Surf. Rev. Lett. 26, 19501646 (2019).
- [14] O. Nafa and B. Bourahla, Computational Condensed Matter 16, 1-7 (2018).
- [15] W. A. Harrison, Phys. Rev. B 76, 054417 (2007).
- [16] G. Fischer, M. Däne, A. Ernst, P. Bruno, M. Lüders, Z. Szotek, W. Temmerman and W. Hergert, Phys. Rev. B 80, 014408 (2009).
- [17] V. Ashokan, M. Abou Ghantous, D. Ghader and A. Khater, J. Mag. Mag. Mat. 363, 66 (2014).
- [18] B. Bourahla, A. Khater, R. Tigrine, O. Rafil and M. Abou Ghantous, J. Phys. Condens. Matter 19, 266208 (2007).

Chapitre IV

Dynamique des surfaces des monoxydes semi-infinis suivant la direction [011]

| | I. Introduction |
|----------|---|
| Sommaire | II. Chemins de haute symétrie dans la direction [011] |
| | III. Matrice dynamique et matrice de raccordement |
| | III.1. Matrice dynamique du système de surface de monoxyde semi-infini |
| | III.2. Matrice de raccordement |
| | IV. Résultats des états localisés des monoxydes semi-infinis suivant la direction [011] |
| | IV.1. Les états localisés de spins engendrés par la surface plane d'un monoxyde MO |
| | IV.2. Les états localisés de spins engendrés par la surface vicinale d'un monoxyde MO |
| | V. Résultats des densités magnoniques locales (LMDOS) suivant la direction [011] |
| | V.1. LMDOS des sites irréductibles de la surface plane |
| | V.2. LMDOS des sites irréductibles de la surface vicinale |
| | VI. Discussion et interprétation des résultats |
| | VII. Conclusion du chapitre IV |

I. Introduction

Les études concernant les surfaces des solides et les interfaces entre divers matériaux ont connu un développement spectaculaire ces dernières années [1-15], en particulier, celles qui se rapportent aux études des propriétés magnétiques, vibrationnelles et électroniques. L'objectif de la technologie moderne est de créer des systèmes atomiques ou moléculaires capables de transférer une information à l'échelle du nanomètre.

En effet, l'étude d'une surface à l'échelle atomique révèle un grand nombre de défauts dont les plus fréquents sont les marches, les crans, les lacunes et les dislocations émergentes. Les surfaces vicinales constituent un cas particulier de surfaces à marches régulières, créées par une légère désorientation entre la partie perpendiculaire à la surface et une direction cristalline de haute symétrie. Du fait de ces défauts, la diffusion d'un atome arrivant sur la surface sera fortement perturbée.

Lorsque les volumes des matériaux deviennent faibles, on observe généralement une modification de leurs propriétés physico-chimiques. Cette modification peut être directement liée à des effets de taille ou a des effets de surface (non stœchiométrie, modification des angles de liaisons) qui sont prépondérants dans ces conditions.

Un intérêt de plus en plus croissant a été accordé aux surfaces d'oxydes de métaux de transition qui a révélé des propriétés particulièrement intéressantes. En outre, les surfaces polaires d'oxydes de métaux de transition, présentent des effets de reconstruction importants, à cause de la divergence du potentiel électrostatique avec le nombre de couches anions-cations. Les physiciens spécialistes des surfaces, qui ont longuement développé des concepts et accumulé des résultats sur les surfaces de métaux ou de semi-conducteurs, cherchent encore à répondre à des questions élémentaires sur les propriétés superficielles des oxydes (polarité, énergie de surface, ...) [16].

Les avancées enregistrées par la technologie ont permis de créer de nouveaux dispositifs miniaturisés très utiles pour le codage et le stockage de beaucoup plus d'informations que les anciens systèmes et ce grâce à la charge et le spin magnétique. C'est le domaine de l'électronique de spins (voir la Figure (4.1) illustrant une image par le MEB).

Pour le stockage magnétique, la limite physique se fait elle aussi sentir, avec l'augmentation des densités d'information stockées, les dimensions des zones de stockage d'un bit diminuent fortement. Elles atteignent actuellement une dimension de quelques dizaines de nanomètres, pour laquelle il est difficile de maintenir un moment magnétique dans un état stable. C'est l'effet super-paramagnétique.



Fig.(4.1). Modèle d'organisation de nanoparticules magnétiques [17].

Ce chapitre est consacré à l'étude de l'effet de la direction cristallographique et l'influence de la forme géométrique sur la propagation d'ondes de spins et la rotation des spins dans la structure de type monoxyde semi-infini, de type MO, à couplage antiferromagnétique, suivant la direction [011].

II. Chemins de haute symétrie dans la direction [011]

• Réseau direct et première zone de Brillouin

La structure du réseau direct de la surface (110) est rectangulaire (figure (4.a)), il est formé par les deux vecteurs de base suivants :





• Réseau réciproque

Le réseau réciproque du réseau direct de la surface (110), figure 4.2b, est obtenu à l'aide des deux vecteurs de base \vec{A}^* et \vec{B}^* définis par les relations :

$$\vec{A}^* \cdot \vec{a} = 2\pi,$$

$$\vec{B}^* \cdot \vec{b} = 2\pi,$$

$$\vec{a} \cdot \vec{B}^* = 0,$$

$$\vec{b} \cdot \vec{A}^* = 0.$$

Un simple calcul permet d'avoir les résultats suivants :

$$\vec{A}^* \begin{pmatrix} 2\sqrt{2}\pi/a \\ 0 \end{pmatrix} \text{et } \vec{B}^* \begin{pmatrix} 0 \\ 2\pi/a \end{pmatrix} \text{ avec } \|\vec{A}^*\| = \frac{2\sqrt{2}\pi}{a} \text{ et } \|\vec{B}^*\| = \frac{2\pi}{a}.$$

La première zone de Brillouin du réseau rectangulaire de la surface (110) est définie dans le réseau réciproque. Elle est représentée sur la figure (4.2b).

Sur la figure (4.2c), nous avons représenté la première zone de Brillouin réduite, les points remarquables de cette zone sont les points de haute symétrie Γ , X, S et Y.

Effet de la direction cristallographique sur la dynamique du monoxyde de MO

Nous avons vu que les oxydes ont de nombreuses propriétés intéressantes pour une multitude d'applications. Cependant, ces propriétés sont complexes, elles dépendent de la structure cristallographique, de la composition, ainsi que des dimensions du matériau considéré. Pour obtenir les informations souhaitées, il a été nécessaire de développer des approches analytiques appropriées pour résoudre ce type de problème.

Dans cette partie, nous reprenons les étapes suivies dans le chapitre 3 dans l'analyse de la dynamique des surfaces des monoxydes semi-infinis. Notre but est de relever l'effet de la direction cristallographique et l'influence de la forme géométrique sur le mouvement de précession des spins dans la structure de monoxyde de type MO à couplage antiferromagnétique. Afin de mettre en évidence cet effet nous avons varié la direction des excitations des spins selon la direction [011] pour les deux types de surfaces, surface plane et surface vicinale, où nous avons calculé et représenté les états localisés et les densités d'états de précession des ondes de spins (LDOS) de la zone perturbée.

III. Matrice dynamique et matrice de raccordement III.1. Matrice dynamique du système de surface de monoxyde semi-infini

La matrice dynamique M_d du système de surface plane, trouve son origine dans l'écriture des équations de mouvement de précision des spins (a), (b), (c) et (d), indiqués sur la figure (3.2a) et ceux de la zone de raccordement. Ces spins sont choisis de telle manière qu'ils appartiennent à la zone de surface ainsi que à la zone de raccordement possédant un environnement de volume.

L'ensemble des équations de mouvement précession de spins définit précédemment constitue un système linéaire homogène. Celui-ci, peut se mettre sous forme d'une matrice rectangulaire M_d , contenant plus d'inconnus (6 inconnus) que d'équations (10 équations) telle que :

$$[M_d]|U\rangle = |0\rangle \tag{4.1}$$

avec, $dim[M_d] = 10 \times 6$

$$dim |u\rangle = 6 \times 1$$
$$dim |0\rangle = 10 \times 1$$

Où $|u\rangle$ est un vecteur-colonne décrivant les amplitudes de précession de tous les spins d'une cellule unitaire de la zone perturbée considérée.

De manière similaire, on écrit les équations de mouvement de précession des spins des sites irréductibles (a), (b), (c), (d),(e) et (f), indiqués sur la figure (3.2b) ainsi que ceux de la zone de raccordement, pour la deuxième forme de surface en présence de la marche atomique. La dimension de la matrice dynamique de la deuxième surface est : dim $[M_d] = 10 \times 14$.

III.2. Matrice de raccordement

En suivant une démarche identique à celle du chapitre 3, un spin appartenant à la région de raccordement du système de surface, peut être décrit par les amplitudes de précessions des vecteurs de spins, à l'aide de la relation suivante

$$u_{\alpha}(n_{x}, n_{y}, n_{z}) = \sum_{i}^{i=2} Z_{i}^{n_{z}} P(\alpha, i) R$$

$$(4.2)$$

Dans cette équation, la paramètre α représente l'une des trois directions cartésiennes et $P(\alpha,i)$, sont les poids pondérés associés aux différents modes de magnons. Ils sont déterminés par la diagonalisation de la matrice dynamique de la zone parfaite (noté *D* auparavant).

Les composantes du vecteur $|u\rangle$ contiennent toutes les amplitudes de précessions des vecteurs de spins appartenant à la maile élémentaire de la zone considérée précédemment (voir Figs. (3.2a) et (3.2b)). Ce vecteur peut se décomposer en deux parties : la première est notée par $|irr\rangle$, constituée par les amplitudes de précessions des sites irréductibles formant la région de la surface plane et la surface vicinale (marche). Quand à la seconde notée par $|rac\rangle$, elle est formée des amplitudes de précessions associées aux sites raccordés, ceci pour la base $|R\rangle$. Ainsi on écrit : $|u\rangle = {|irr\rangle \choose |rac\rangle}$ (4.3)

- Pour la surface plane : dim|irr> = (6 × 1) dim|rac> = (4 × 1)
- Pour la surface vicinale : *dim*|*irr*> = (8 x 1) *dim*|*rac*> = (6 x 1).

De sorte que la matrice de raccordement M_R des spins peut se mettre sous la forme suivante :

$$|u\rangle = \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |rac\rangle \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} I_d & 0\\ 0 & R_1\\ 0 & R_2 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix} = M_R \begin{pmatrix} |irr\rangle \\ |R\rangle \end{pmatrix}$$
(4.4)

Où I_d est une matrice identité, sa taille dépend du nombre de spins dits sites irréductibles. Les notations R_1 , R_2 sont des sous-matrices qui dépendent du nombre de modes propageants dans le système parfait.

En tenant compte des dimensions des matrices, on peut réécrire le système d'équations (4.1) de la manière suivante

$$[M_d(6x10)] \cdot [M_R(10x6)] \binom{|irr\rangle}{|R\rangle} = |0\rangle$$
(4.5)

Le produit des deux matrices M_d et M_R donne la dimension de la matrice dynamique D_s

- Pour la surface plane, la dimension de la matrice dynamique est : $dim(D_s) = (6 \times 10)$.
- Pour la surface vicinale, la dimension de la matrice dynamique est: $dim(D_s) = (10 \times 14)$.

Les résultats numériques de nos simulations sont donnés dans les Figs.(4.3)-(4.5) pour la surface plane et les Figs.(4.6)-(4.8) pour la surface vicinale, où les états localisés de spins sont présentés pour les trois possibilités d'interactions magnétiques dans le domaine de surface.

IV) Etats localisés de spins dans les monoxydes semi-infinis suivant la direction [011]IV.1) Etats localisés de spins engendrés par la surface plane du monoxyde MO



Fig.(4.3) : Courbes des états énergétiques localisés de spins à la limite de la surface plane d'un réseau de monoxyde MO, la direction d'excitation étant [011].
Les énergies en volume sont représentées en rouge, tandis que les symboles circulaires représentent les modes de magnons de surface localisés.
Les résultats sont donnés pour les interactions de spins adoucissant.
Les interactions de spins d'échange et de super-échange dans la zone perturbée sont prises plus petites d'environ 20% que celles de la structure de monoxyde parfaite.



Fig.(4.4) : Mêmes résultats que sur la figure (4.3) pour les interactions de spins homogènes. Dans ce cas, les interactions sont prises partout comparables, zones parfaites et zones perturbées.



Fig. (4.5) : Mêmes résultats que sur la figure (4.3), pour les interactions de spins de durcissement. Cette situation correspond au cas où les interactions dans le domaine perturbé sont prises supérieures d'environ 20% à celles de la structure parfaite de monoxyde antiferromagnétique.

IV.2) Etats localisés de spins engendrés par la surface vicinale dans le monoxyde MO (en présence de la marche)



Fig.(4.6) : Spectres théoriques de magnons localisés à surface de la structure de monoxyde MO, obtenus pour une possibilité de l'adoucissement du couplage des spins à la surface. La direction d'excitation est [011]. Les modes théoriques de précession des spins en volume sont tracés par la zone ombrée. Les constantes de couplage au niveau des couches de la surface sont 20% inférieures à celles du volume parfait.



Fig.(4.7) : Identique à la Fig.(4.6) mais avec l'homogénéité des interactions entre les sites de spins à la surface. Les constantes de couplage au niveau des couches de surface sont comparables à celles du monoxyde parfait.



Fig. (4.8) : Identique à la Fig.(4.6), mais avec le durcissement des interactions entre les sites de spins à la surface. Les constantes de couplage au niveau des couches de la surface sont 20% plus élevées que celles de la zone parfaite.

V. Les densités magnoniques locales (LMDOS) suivant la direction [011]

V.1. LMDOS des sites irréductibles de la surface plane



Fig.(4.9) : Les courbes des magnons indiquent les densités locales des sites de spins (LMDOS) en fonction de la fréquence de diffusion Ω et les paramètres d'interaction à la surface. La direction d'excitation est [011]. Les LMDOS sont données pour les sites irréductibles de spins (a), (b), (c) et (d) qui constituent la zone de surface. Ils sont exprimés en unités arbitraires. Les constantes de couplage à la surface sont 20% inférieures à celles de la zone parfaite.



Fig.(4.10) : Identique à la figure (4.9). Les constantes de couplage des spins à la surface sont prises homogènes entre les différents sites.



Fig.(4.11) : Identique à la figure (4.9). Les constantes de couplage au niveau des couches de la surface sont 20% plus élevées que les constantes du monoxyde parfait.



V.2. LMDOS des sites irréductibles de la surface vicinale

Fig. (4.12) : Les courbes des magnons indiquent les densités locales des sites de spins (LMDOS) en fonction de la fréquence de diffusion Ω et des paramètres d'interaction à la surface. La direction d'excitation est [011]. Les LMDOS sont données pour les sites irréductibles de spins (a), (b), (c), (d), (e) et (f) qui forment la zone de la marche atomique. Ils sont exprimés en unités arbitraires. Les constantes de couplage à la surface sont 20% inférieures à celles de la zone parfaite.



Fig. (4.13) : Identique à la figure (4.12). Les constantes de couplage des spins à la surface sont prises homogènes entre les différents sites.



Fig. (4.14) : Identique à la figure (4.12). Les constantes de couplage des spins au niveau des couches de la surface sont 20% plus élevées que les constantes du monoxyde parfait.

VI. Discussion et interprétation des résultats

Les états localisés de spins

Les états énergétiques de spins localisés sont représentés sur les figures (4.3), (4.4) et (4.5) pour la surface plane, et sur les figures (4.6), (4.7) et (4.8) pour la surface vicinale (marche atomique) d'un réseau de monoxyde MO, suivant la direction d'excitation [011]. Dans les deux cas, les courbes sont tracées pour les mêmes constantes de couplage entre sites de spins (de l'adoucissement au durcissement) cités dans le chapitre 3. Les états localisés générés par les surfaces des monoxydes perturbées (structures semi-infinies) sont représentés par des branches en noir. Et les états du volume (monoxyde 3D parfait) sont représentés en bande continue (rouge pour la surface plane et en bleu pour la surface vicinale). On constate que les branches des états localisés de spins se décalent vers les hautes fréquences, le long des directions de haut symétrie $\overline{\Gamma X}$, \overline{XS} , \overline{SY} et $\overline{Y\Gamma}$ avec le durcissement des intégrales d'échange et de superéchange au niveau de la surface.

Dans le cas d'adoucissement des constantes d'échange et super-échange au niveau de la surface plane, on remarque l'apparition de trois états localisés de surface suivant la direction $\overline{\Gamma X}$ et $\overline{Y\Gamma}$ au dessous de la bande de volume qui sont moins énergétiques, par contre, suivant la direction \overline{XS} et \overline{SY} , on constate que tous les états localisés de surface se trouve à

l'intérieur de la bande de volume. Ces modes correspondent aux modes de surface de Rayleigh et les modes de surface microscopique. La même remarque est à faire pour la surface vicinale sauf que le nombre d'état localisés augmente. Ceci est dû à la forme géométrique de la surface vicinale.

Dans le cas de l'homogénéité, on remarque que les branches des états localisés de surface se décalent vers les hautes fréquences, le long du chemin de la direction haute symétrie avec l'apparition de deux modes de surface les modes de Rayleigh et les modes microscopiques. Avec le durcissement des intégrales d'échange et de super-échange au niveau de la surface, nous remarquons l'apparition de deux branches au-dessus de la bande du volume qui sont plus énergétiques que celle des magnons de volume. Nous distinguons la présence de trois types de modes magnons localisés en surface : les modes de Rayleigh, les modes de Fuchs et les modes de surface microscopiques.

Nos résultats numériques ont mis en évidence l'apparition de nouveaux états de magnons qui sont localisés au voisinage de la surface plane et la surface vicinale. Notons bien que le nombre et le type de branches des états localisés qui apparaissent, dépendent fortement des différents paramètres physiques qui interviennent dans le calcul des équations du mouvement de précession des spins. Ainsi nous avons montré que pour un rapport de spins λ inférieur à 1, nous avons des branches acoustiques caractérisées par des grandes valeurs d'énergie. Par contre, pour des valeurs de λ supérieures à 1, nous avons des branches optiques, caractérisées par de faibles valeurs d'énergie.

On remarque aussi que le nombre de branches localisées augmente dans le cas de la surface vicinale par rapport à la surface plane. Ceci est attendue puisque les deux terrasses situées de par et d'autre de la contre marche engendrent plus d'états localisés et plus d'interactions à causes des réflexions multiples et la brisure de symétrie. Le même constat est à faire avec la direction [001].

Les densités d'états magnoniques

Les spectres des densités d'états magnoniques sont exprimés en unités arbitraires, en fonction de la fréquence normalisée Ω dans la première zone de Brillouin irréductible, et ce suivant les directions de hautes symétries. Ils sont représentés sur les figures (4.9), (4.10) et (4.11) pour les sites irréductibles (a), (b), (c) et (d) de la surface plane, et sur les figures (4.12), (4.13) et (4.14) pour les sites irréductibles (a), (b), (c), (d), (e) et (f) de la surface vicinale. Ils sont définis pour les mêmes constantes de couplage entre sites de spins définis précédemment au

chapitre 3. Ces densités d'états localisés sont le résultat de la somme des carrées des amplitudes des mouvements de précession de spins des sites irréductibles appartenant à la zone perturbée.

Pour chaque configuration, nous avons analysé les trois possibilités du choix de l'environnement magnétique dans le domaine propre de la région perturbée par rapport à la valeur de l'intégrale d'échange de monoxyde parfaite MO.

Dans le cas d'adoucissement des constantes d'échanges et de superéchange au niveau de la surface plane et vicinale, les spectres magnétiques montrent plusieurs pics d'oscillations qui s'étalent sur une plage de fréquence [0, 133], qui sont les limites correspondant au continuum. Nous remarquons que les pics ont des hauteurs et des largeurs qui dépendent fortement des paramètres du système.

Dans le cas d'homogénéité, nous observons plusieurs pics d'oscillations de différentes tailles et largeurs. Ces derniers se déplacent légèrement vers les hautes fréquences avec le durcissement.

Les mêmes observations sont aussi valables dans le cas de durcissement, les spectres LMDOS sont sensibles aussi aux changements de couplage magnétique sur la zone de surface plane et surface vicinale.

Les pics apparaissent à des énergies bien déterminées. Certains d'entre eux, sont associées aux différents états de magnons localisés qui sont générés au voisinage des surfaces considérées. Tandis que d'autres, sont des pics de résonances, dus à des interactions du type Fano [18-19]. Ces derniers sont une signature d'un couplage interférentiel entre des modes propageants et les modes discrets créés par la présence de la surface.

D'une manière générale, nous remarquons que les densités d'états de précession de spins dans la surface plane et vicinale se décalent vers les énergies les plus élevées.

Le résultat le plus remarquable c'est l'apparitions d'un nombre de pics de résonnances pour les sites irréductibles (a) et (b) qui sont excités tout d'abord, à de très basses fréquences, par rapport aux autres sites, qui se situent sur le plan qui assure le passage à la couche ci-dessous. Ces derniers se décalent vers les hautes fréquences aves Le durcissement des constantes d'échanges et superéchanges au niveau de la surface plane et vicinale, suivant la direction [011].

VII. Conclusion du chapitre IV

Dans ce chapitre, nous avons tenté de mettre l'accent sur le rôle important de la direction cristallographique et l'influence de la forme géométrique sur le mouvement de précession des ondes de spins sur quelques spectres magnétiques. Nous avons montré que leur présence dans la structure de monoxyde de type MO à couplage antiferromagnétique a un effet remarquable sur le comportement des ondes de spins.

Nous avons déterminé les matrices dynamiques des systèmes perturbés, et aussi tracé les états localisés au niveau de la surface plane et vicinale pour trois cas différents du choix de l'environnement magnétique dans le domaine propre de la région perturbée par rapport à la valeur de l'intégrale d'échange et super échange de la structure monoxyde parfaite. Le nombre de branches localisées augmente dans le cas de la surface vicinale par rapport à la surface plane. Ceci est attendue puisque, les deux terrasses situées de part et d'autre de la contre marche engendrent plus d'états localisés et plus d'interactions à causes des réflexions multiples et la brisure de symétrie.

Références du chapitre IV

- [1] C. Naud, Ann. Phys. Fr. 27, 1-140 (2002).
- [2] S. Patole, M. Islam, R. C. Aiyer and Shailaja, J. Mat. Sci. 41, 5602 (2006).
- [3] S. Chotikaprakhan, A. Haj-Daoud, E. Neubauer, J. Pelzl, B.K. Bein and R. Meckenstock. Eur. Phys. J. Special. Topics 153, 391 (2008).
- [4] N. Shibata, S. D Findlay, S.Azuma, T. Mizoguchi, T.Yamamoto and Y. Ikuhara, Nat. Mater.8, 654 (2009).
- [5] P. Masri and B. Djafari-Rouhani J. Phys. Colloques 45 (C5), 37 (1984).
- [6] M. Leans and J. C. Inkson, Semiconductor Science and Technology 4, 138 (1989).
- [7] V. Mikhail, M.A. Kisin, G. Stroscio, B.Belenky, S. Gorfinkel and J. Luryi, Appl. Phys. 83, 9 (1998).
- [8] W. Zhang, T. S. Fisher and N. Mingo, J. Heat Transfer 129, 481 (2007).
- [9] A. Taisne, B. Décamps and L. Priester, J. Phys. IV France 106,43 (2003).
- [10] T. Methfessel and H. J. Elmers, Surf. Sci. 603, 462 (2009).
- [11] M. Stengel, D. Vanderbilt and N. A. Spaldin, Nat. Mater. 8, 392(2009).
- [12] G. Verbeeck, V. Tendeloo, A. Brinkman and H. Hilgenkamp, Nat. Mater.5, 556 (2006).
- [13] U. Geurts, S. Bass, K. Mahapatra, T. Brunner, T. Muckand V. Wagner, J. Phys. IV France 132, 307 (2006).
- [14] G. Le Lay, J. Phys. IV France 07, C6-115-C6-125 (1997).
- [15] H. Alves, A. S. Molinari, H. Xie and A. F. Morpurgo Nature Materials7, 574 (2008).
- [16] B. Bourahla, A. Khater, and M. Abou Ghantous, Eur. Phys. J. Web Conf. 29, 00011 (2012).
- [17] O. Nafa, B. Bourahla and A. Khater, Physica B 407, 1027 (2012).
- [18] D. Ghader, V. Ashokan, M. Abou Ghantous and A. Khater, Eur. Phys J. B 86, 180 (2013).
- [19] B. Bourahla, O. Nafa and A. Khater, Canadian J. Phys. 91, 343 (2013).

Conclusion générale

Les matériaux magnétiques de type oxydes restent toujours un sujet ouvert et d'actualité, en raison des potentialités d'application, la particularité des propriétés magnétiques et le comportement des excitations élémentaires. La magnonique associée au transport électronique dans ces milieux, est à la base de plusieurs applications industrielles telles que la téléphonie mobile, les têtes des enregistreurs et les capteurs magnétique, etc. A titre d'exemple, la plupart des monoxydes de première série possèdent d'excellentes propriétés pour des applications hyperfréquences ciblées (dans la gamme de fréquence du MHz au GHz). De plus, les avancées enregistrées dans le domaine de la spintronique, ont motivé le développement de plusieurs approches théoriques et des méthodes de simulations permettant de comprendre le comportement des ondes de spin dans les semi-conducteurs de type monoxydes de première série à couplage antiferromagnétique.

Aujourd'hui, il est bien établi que les surfaces réelles ne sont pas parfaitement planes, mais sont, en général, légèrement désalignées par rapport à une direction cristallographique principale et par conséquent, elles sont formées d'une succession de terrasses séparées par des marches. Pour tenir compte de cette réalité, nous avons examiné deux formes de surface du monoxyde : la surface plane et la surface vicinale. L'objectif est de relever l'impact d'une marche atomique sur la dynamique des spins et de comparer ses spectres magnoniques à ceux d'une surface plane et de noter les effets négligés.

La démarche consiste à développer une approche théorique et numérique pour prendre en considération l'étude de ces surfaces réelles d'une part. D'autre part, essayer de faire une étude plus approfondie, en introduisant les effets liés au couplage spin-orbite et tenir compte de l'influence de l'échange et super-échange sur le transport magnonique. Cette dernière reste un problème mal compris en dépit de l'extrapolation des modèles simples qui arrivent actuellement à expliquer la magnonique de façon satisfaisante à basse température. Cependant, ils s'avèrent incapables d'expliquer de manière cohérente la dépendance en température.

Comme les amplitudes de précession des spins sont fortement dépendantes de la direction cristallographique, nous avons étudié la dynamique des monoxydes dans deux directions différentes. Notre étude théorique est basée essentiellement sur un hamiltonien d'Heisenberg associé à la méthode dite de raccordement. Les simulations numériques sont menées à l'aide de programmes élaborés par nous même, ce qui nous a permis d'illustrer quelques aspects fondamentaux qui régissent le comportement magnétique et la dynamique de spins.

Il est à signaler que les simulations numériques sont considérées comme des méthodes puissantes d'expérimentation virtuelle permettant la détermination des paramètres physiques pertinents. Elles sont à l'origine d'informations d'une importance majeure dans l'élaboration de modèles théoriques qui conduisent à la compréhension des phénomènes magnétiques. A leurs tours, les modèles théoriques prédictifs sont d'un très grand intérêt lorsqu'il s'agira, à partir d'un prototype, de développer toute une nouvelle gamme de dispositifs sans avoir recours à de longues années de recherches expérimentales.

Le contenu de la thèse décrit deux parties distinctes :

i) Dans la première, nous nous sommes intéressés à l'influence de la forme géométrique de la surface d'un monoxyde de type MO (surface plane et surface vicinale) et l'impact de l'environnement magnétique sur la dispersion des magnons dans la direction cristallographique [001].

ii) Dans la deuxième partie, nous avons repris la théorie traitant des ondes de spins dans une autre direction d'excitation, il s'agit de la direction [011]. Cette partie a permis de mettre en évidence l'influence des directions d'excitation sur la propagation des ondes de spins dans les monoxydes étudiés de forme MO.

Dans chacune des parties, nous avons pu modéliser les structures monoxydes de type MO par un modèle théorique capable de déterminer les propriétés des spectres magnétiques en tenant compte des paramètres d'échange et super-échange. En particulier, nous avons calculé les états de spins localisés et les densités d'états magnoniques locales (LMDOS) pour les deux surfaces, plane et vicinale, cela pour trois probabilités des paramètres de couplage dans la zone nano-structurée. Pour l'évaluation des LMDOS décrivant l'état du système, un algorithme numérique basé sur la méthode de raccordement et les fonctions de Green, a été conçu et ce dans le but de permettre d'augmenter l'efficacité du calcul. Nous rappelons que les monoxydes de première série peuvent être considérés comme étant des systèmes à deux sousréseaux. Dans le système global, la moitié des spins est en couplage ferromagnétique et l'autre moitié est en interaction antiferromagnétique. Nos résultats sont représentés selon les directions de haute symétrie.

La dynamique des monoxydes semi-infinis est explorée en utilisant la méthode dite de raccordement. Cette technique a permis d'établir une cartographie complète de l'évanescence de l'onde de spins. Le calcul numérique a révélé la présence de modes localisés de spins, dus à la brisure de symétrie. Ces derniers dépendent fortement des paramètres caractérisant le

système sous étude. Les deux formes de surface et les directions cristallographiques examinées ont laissé des empreintes distinctives sur les spectres magnoniques. Ces dernières peuvent alors nous renseigner sur la nature de la surface et les angles d'incidence des ondes de spins et notamment sur le sens de propagation dans les structures monoxydes antiferromagnétiques à deux sous-réseaux de spins.

Les interférences entre les états localisés de spins et les magnons incidents donnent lieu aux résonances de type Fano. De plus, nos résultats ont démontré une grande influence et un rôle capital pour la cristallisation sur la dynamique des surfaces des monoxydes MO.

En présence de la marche atomique, l'allure des courbes des états localisés de spins est très sensible aux variations des interactions entre sites de spins à la surface. Ces variations font déplacer les états énergétiques des modes de précession des spins vers les fréquences plus élevées. Ceci permet de conclure que nous pouvons obtenir des systèmes plus énergétiques, à la même température, en changeant uniquement la direction d'excitation. En d'autres termes, l'introduction d'une marche change complètement les marges et les limites des intervalles de propagation ainsi que les fréquences d'excitation de chaque mode.

Notre perspective d'investigation des plus intéressantes est l'étude de l'influence de l'anisotropie et le couplage magnons-phonons dans les monoxydes complexes à épaisseur finie (structures lamellaires).

Résumé

La plupart des systèmes fonctionnels en électronique de spin (capteurs et mémoires) reposent sur des hétérostructures comportant des couches ferromagnétiques. Pour améliorer leurs performances et permettre de nouvelles applications, des dispositifs fondés sur des semiconducteurs à base d'oxydes antiferromagnétiques ont été développés.

Les monoxydes se sont révélés comme étant des matériaux capables d'expliquer la relation entre le transport électronique et les spectres magnétiques. Il est à noter que des avancées théoriques sont nécessaires pour tenir compte de tous les phénomènes observés dans ces nouveaux systèmes magnétiques.

Dans ce travail on se propose de réaliser une étude théorique sur les excitations de spin dans les monoxydes de métaux de transition de la première série qui adoptent une structure de type NaCl. Ces monoxydes sont presque toujours non-stœchiométriques, et cette nonstoechiométrie est considérée comme des inhomogénéités qui sont capables de modifier les propriétés physiques. En outre, ces monoxydes sont presque tous semi-conducteurs, excepté quelques uns qui sont conducteurs, contrairement aux monoxydes des métaux classiques.

Le mouvement et l'amplitude de précession des spins dans les monoxydes antiferromagnétiques sont examinés en volume et en surfaces (plane et en présence de marche) en utilisant la méthode dite de raccordement. Les spectres magnétiques sont déterminés et discutés en fonction des différents paramètres caractérisant les structures sousétude. Nous déterminons numériquement les états localisés de spins, les densités d'états locales (LMDOS) magnoniques en présence des deux types de surfaces examinées. Nous signalons que l'interaction entre les états localisés de spins et les modes du continuum font apparaître dans les spectres magnétiques plusieurs oscillations, certaines d'entre elles sont de type Fano.

Mots-clés : Monoxydes antiferromagnétiques, Ondes de spin ; Méthode de raccordement ; Spectres magnétiques

Abstract

Most of the functional systems in spintronics (sensors and memories) contain heterostructures made of ferromagnetic layers. To improve their performance and allow new applications, devices based on semiconductors based on antiferromagnetic oxides have been developed.

Monoxides have been shown to be materials capable of explaining the relationship between electron transport and magnetic spectra. It should be noted that theoretical advances are necessary to take into account all the phenomena observed in these new magnetic systems.

In this work, we propose a theoretical study on the spin excitations in the transition metal monoxides of the first series which adopt a structure of the NaCl type. These monoxides are almost always non-stoichiometric, and this nonstoichiometry is considered to be inhomogeneities which are capable of altering physical properties. In addition, almost all of these monoxides are semiconductors except a few which are conductive, unlike the monoxides of conventional metals.

The motion and amplitude of spin precession in antiferromagnetic monoxides are examined in the bulk and at the surface (plane and stepped) using the matching method. The magnetic spectra are determined and discussed according to the different parameters characterizing the structures under study. We numerically determine the localized spin states, the magnonic local densities of states (LMDOS) in the presence of the two types of surfaces examined. We point out that the interaction between the localized spin states and the modes of the continuum causes several oscillations to appear in the magnetic spectra, some of them are identified as Fano type.

Keywords: Antiferromagnetic monoxides, Spin waves; Matching method, Magnetic spectra.