

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université Ibn Khaldoun - TIARET



Faculté des Sciences de la Matière
Département de Physique

Mémoire

Présenté par :

Mr. KADARI Azzouz
Mr. DJAMAA Houssein

Pour obtenir le diplôme de
Master

Filière : Physique
Spécialité: Technologie et Physique des Couches Minces Nanostructurées

Sujet :

Simulation numérique de la jonction tunnel
Fe/MgO/Fe

Soutenu le : 20 juin 2017

Devant le jury:

- | | | |
|------------------------|-----|-----------|
| • Mr. BENRABAH BEDHIAF | MCA | Président |
| • Mr. ADJADJ AZEDDINE | MCB | Examineur |
| • Mr. LARABI ABDELKRIM | MAA | Encadreur |

Année Universitaire 2016/2017

Dédicaces

A mes parents et à mes frères

Houssein.

A mes parents et à mes frères

Azzouz.

Remerciements

Tout d'abord nous présentons mes sincères remerciements à notre encadreur Mr. Abdelkrim LARABI, pour les informations qui nous a donné durant cette année.

Mes remerciements vont également aux messieurs Bedhief BENRABAH et Azeddine ADJADJ pour avoir accepté de présider ce jury et d'examiner notre travail.

Je tiens finalement à remercier Mr. Ahmed KADARI.

Table des matières

LISTES DES ABREVIATIONS	6
LISTE DES FIGURES	7
LISTE DES TABLEAUX	9
Introduction Générale.....	10
I Chapitre I.....	11
I.1 Introduction	11
I.2 L'origine de la magnétorésistance.....	11
I.3 La Magnétorésistance tunnel.....	11
I.4 Description phénoménologique de la TMR.....	12
I.5 Condition de franchissement d'une barrière isolante (effet tunnel)	12
I.6 Modèle de Jullière pour les jonctions tunnel magnétiques.....	14
I.7 Les modèles de TMR	18
I.7.1 Modèle de Bardeen.....	18
I.7.2 Modèle des électrons libres	19
I.7.3 Modèle de Slonczewski.....	21
I.8 Conclusion sur les différents modèles étudiés.....	22
II Chapitre II.....	23
II.1 Introduction	23
II.2 Equation de Schrödinger	23
II.3 La théorie de la fonctionnelle de densité (DFT).....	24
II.4 Approximations	25
II.4.1 L'approximation de la densité locale (LDA).....	26
II.4.2 L'approximation du gradient généralisé (GGA)	28
II.5 Résolution des équations de Kohn-Sham à une particule.....	28
II.6 Procédure de calcul dans la DFT.....	29
II.7 Les systèmes à spin polarisé.....	29
II.8 Les fonctions de Green hors équilibre(NEGF) pour des systèmes ouverts	31
II.9 L'état Stationnaire et self-consistent procédure	34
III Chapitre III	37
III.1 Introduction	37
III.2 Structures du fer et l'oxyde de magnésium	37
III.2.1 L'oxyde de magnésium	37
III.2.2 Le fer cubique centré.....	38
III.3 Le code utilisé lors de nos calculs (Code SIESTA).....	39
III.4 Détails des calculs	40

Table des matières

III.5	Pseudo-potentiels.....	40
III.5.1	Les orbitales pseudo-atomiques :	41
III.6	Test de convergence:	41
III.6.1	Le fer Fe et l'oxyde de magnésium MgO.....	41
III.7	Résultats et discussions	44
III.7.1	Propriétés structurales	44
III.7.2	Propriétés électroniques.....	46
III.8	Mise en place de la jonction tunnel Fe / MgO.....	49
III.8.1	Définition de la géométrie de l'électrode.....	49
III.8.2	Définition de la géométrie initiale de la région centrale.....	49
III.8.3	Optimisation de la géométrie de la région centrale	50
III.8.4	Propriétés structurelles de système.....	51
III.8.5	Mécanismes de tunnels dans les jonctions de tunnel à base de MgO.....	51
III.8.6	Spin parallèle	52
III.8.7	Spin anti-parallèle.....	53
III.8.8	magnétorésistance tunnel.....	53
III.8.9	Tendances de la conductance de jonction tunnel.....	54
	Conclusion générale	56
	REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	Erreur ! Signet non défini.

LISTES DES ABREVIATIONS

TMR : la Magnéto-résistance Tunnel.

MRAM : Mémoires Magnétiques à Accès aléatoire.

JTMs : Jonctions Tunnel Magnétiques.

DFT : Théorie de la fonctionnelle de la densité.

SIESTA: Spanish Initiative for Electronic Simulation of Thousand of Atoms.

LDA : l'Approximation de la Densité Locale.

GGA : l'Approximation du Gradient Généralisé.

LCAO : la Théorie des Combinaisons Linéaires des Orbitales atomiques.

LAPW : la Méthode des Ondes Planes Augmentées.

LSDA : l'Approximation de la Densité Locale de Spin.

DOS : Density of States.

LISTE DES FIGURES

Figure I-1: Les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction tunnel magnétique...	12
Figure I-2: diagramme représentant une barrière tunnel rectangulaire. On distingue trois régions, celles avant et après la barrière, lorsque le potentiel est nul, et celle au niveau de la barrière de longueur l , lorsque le potentiel vaut V_0	13
Figure I-3: Conductance relative en fonction de la tension appliquée d'une Jonction Fe-Ge-Fe à $T = 4,2$ K... ..	15
Figure I-4 : Effet tunnel entre deux métaux ferromagnétiques (MF1 et MF2) séparés par une barrière isolante I rectangulaire et déformée par une tension appliquée V	17
Figure I-5 : Diagramme d'énergie pour un électron dans une jonction tunnel magnétique pour le cas où la configuration des aimantations des électrodes ferromagnétiques FM1 et FM2 est parallèle.....	18
Figure I-6 : (a)Modélisation du remplissage des niveaux pour des électrons dans une boîte de potentiel (b) modélisation du profil de potentiel pour une structure FM/I/FM qui consiste en une succession de trois boîtes telles que celle montrée en (a).....	21
Figure II 1: Schéma décrivant le processus itératif pour la résolution des équations de Kohn-Sham.....	35
Figure III- 1 : Structure cristalline de MgO (CFC).....	43
Figure III 2 :(a) Maille du CC de Fe et axes cristallographiques. (b) Zones de Brillouin 3D et 2D pour la face (001) d'une maille CC et directions de haute symétrie. Source. (c) Structure de bandes du Fe le long des lignes de haute symétrie	44
Figure III-3 : Convergence de l'énergie totale du fer en fonction de l'énergie de MeshCutoff en utilisant la GGA.....	48
Figure III-4 : Convergence de l'énergie totale du fer en fonction du nombre de K-points dans la zone réduite de Brillouin en utilisant la GGA.....	49
Figure III-5 : Convergence de l'énergie totale du l'oxyde de magnésium MgO en fonction de l'énergie de MeshCutoff en utilisant la GGA.....	49

Figure III-6 : Convergence de l'énergie totale du l'oxyde de magnésium MgO en fonction du nombre de K-points dans la zone réduite de Brillouin en utilisant la GGA.....	50
Figure III-7 : la variation de l'énergie totale de fer en fonction de paramètre de maille.....	51
Figure III-8 : la variation de l'énergie totale du l'oxyde de magnésium MgO en fonction de paramètre de maille.....	52
Figure III-9 : structure de bandes et densité d'état totale de l'oxyde de magnésium MgO.	53
Figure III-10 : Structure de bandes du fer (Fe).....	54
Figure III-11: la densité d'état de fer du spin up et spin down.....	55
Figure III-12 : Cellule électrode utilisée pour la mise en place du système Fe / MgO. La géométrie de l'électrode est configurée en fonction de la constante de réseau équilibrée calculée de Fe.....	56
Figure III-13 : région centrale utilisée pour la mise en place du système Fe / MgO. La géométrie de la région centrale est optimisée avant utilisation.....	56
Figure III-14 : Energie après chaque étape d'optimisation pour différentes longueurs de cellules dans le système Fe / MgO.....	57
Figure III-15: Les trois jonctions tunnel magnétiques étudiées dans ce travail. Les atomes de Fe sont représentés par des sphères marron, les atomes de Co sont violets, les atomes de Mg sont verts et les atomes d'O sont rouges.....	59
Figure III-16: la conductance pour un voltage nul dans les configurations parallèle et antiparallèles du système Fe / MgO pour différentes résolutions d'échantillonnage k points. La zone de Brillouin bidimensionnelle est échantillonnée en utilisant $N \times N$ points k, où N est le nombre de points k spécifiés.....	60

LISTE DES TABLEAUX

Tableau III-1: choix des différents paramètres inclus dans le calcul pour l'oxyde de magnésium et le fer.....	48
Tableau III-2 : paramètre de maille du fer, calculé avec le code SIESTA en comparaison avec résultat expérimental.....	51
Tableau III-3 : paramètre de maille du l'oxyde de magnésium MgO, calculé avec le code SIESTA en comparaison avec résultat expérimental.....	52
Tableau III-4: Principaux paramètres structurels pour le système considéré dans ce travail (voir le texte). D1 est la distance entre les deux couches d'électrode la plus proche de la barrière donnée en variation pourcentage par rapport à la distance de volume égale à $2,795^\circ$ A. D2 est la distance entre l'électrode la plus proche et les couches d'oxygène. D3 est le déplacement des atomes de Mg les plus externes vers les électrodes.....	58
Tableau III-5: Conductance un voltage nul avec une aimantation parallèle (GP) et anti-parallèle (GAP) des électrodes ainsi que la valeur calculée du TMR pour la jonction magnétiques tunnel. Les conductances sont en unités de $\text{mS}/\mu\text{m}^2$ et les valeurs de TMR.....	59

Introduction Générale

La spintronique (ou électronique de spin) est un sujet en plein développement à travers le monde. Alors que l'électronique classique est basée sur le contrôle de courants de charge, l'électronique de spin manipule des courants de spin en exploitant l'influence du spin sur le transport électronique dans des nanostructures magnétiques associant matériaux magnétiques et non-magnétiques.

La Magnétorésistance tunnel s'appuie sur le Modèle de Jullière qui utilise la différence de la densité d'état électronique en fonction du spin pour les matériaux ferromagnétiques. On considère que lors d'une transition tunnel, l'électron qui a traversé la barrière tunnel ne change pas de spin. Pour obtenir une TMR, il faut réaliser un empilement de deux couches ferromagnétiques séparées par une couche très mince isolante de l'ordre du nanomètre. L'une des applications directes de la TMR est la conception des mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAM) et le disque dur est actuellement le moyen de stockage réinscriptible le plus utilisé dans le monde.

Dans le premier chapitre, nous avons étudié la magnétorésistance tunnel (TMR) qui s'obtient en remplaçant deux matériaux ferromagnétiques séparés par une couche isolante. Nous avons aussi présenté différents modèles pour décrire le comportement magnétorésistif d'une jonction tunnel tels que le modèle des électrons libres, le modèle de Jullière, celui de Bardeen et enfin le modèle de Slonczewski. Nous avons conclu que ces modèles prédisent des résultats assez voisins de sorte qu'à l'heure actuelle, les expériences ne permettent pas définitivement d'en écarter certains.

Dans le deuxième chapitre, nous avons représenté la théorie de la fonctionnelle de densité constitue actuellement l'une des méthodes les plus utilisées dans les calculs quantiques de la structure électronique de la matière.

Dans le chapitre III, en se basant sur la DFT en étudiera les propriétés structurales et électroniques des matériaux, le code de calcul utilisé est (SIESTA). Décrit la mise en place et l'optimisation de la jonction tunnel magnétique et traite leur structure et leurs propriétés magnétiques de surface. Examine la conductance du voltage nul et le TMR de la jonction et discute le mécanisme de tunnel donnant lieu à ces propriétés.

I Chapitre I

I.1 Introduction

Les jonctions tunnel Fe/MgO/Fe sont très étudiées car elles présentent de fortes valeurs de magnétorésistance par effet tunnel (TMR). La magnétorésistance tunnel est définie comme la variation relative de la résistance du système entre ses deux valeurs extrêmes.

I.2 L'origine de la magnétorésistance

Bien que la spintronique ait connu ses plus rapides développements au cours des trente dernières années, on peut associer son origine aux travaux de William Thompson en 1856 [1]. Ceux-ci ont mis en évidence une variation de résistance dans un métal ferromagnétique (le fer) lors de l'application d'un champ magnétique externe, dont l'angle variait avec la direction du courant. Il s'agissait de la première mise en évidence de l'anisotropie de magnétorésistance. Puis l'intérêt pour l'interaction entre le transport électrique et les propriétés magnétiques des matériaux a attiré d'avantage d'attention dès les années 1930, avec les travaux de Mott [2] et son modèle à deux courants. Cet intérêt croissant a pris ensuite plus d'importance à partir des années 1960-1970, avec notamment le développement de l'informatique et du stockage magnétique des données : on note ainsi en 1975 l'apparition d'une revue dédiée aux capteurs magnétiques [3] et une autre consacrée aux phénomènes physiques de magnétorésistance [4].

Mais la spintronique a pris un réel tournant avec la découverte de l'effet tunnel polarisé en spin par Tedrow et Meservey en 1971 [5], dans des structures de type Al/Al₂O₃/Ni. Cet effet a été confirmé par Jullière en 1975 [6] qui mit en évidence la présence de magnétorésistance tunnel (TMR) dans des empilements Fe/Ge/Pb et Fe/Ge/Co, et proposa un modèle qui porte désormais son nom.

I.3 La Magnétorésistance tunnel

La structure utilisée est celle d'une couche isolante comprise entre deux ferromagnétiques contrairement à l'aimantation de la première couche, la seconde n'est pas imposée. L'aimantation dans la première couche est prédéfinie et un champ externe permet de changer facilement la direction de l'aimantation de la seconde couche. Quand le courant traverse la première couche ferromagnétique, seuls les électrons dont le spin est orienté dans la direction de l'aimantation peuvent passer. Il en résulte un courant polarisé en spin, où tous les spins des électrons ont le même sens. Deux cas sont alors à considérer : si la seconde couche possède une aimantation dans le même sens que la première, alors les électrons

traversent l'isolant par effet tunnel quantique (Figure 1 a). Dans le cas contraire, le courant tunnel est bloqué (Figure 1 b). Quelques électrons pourtant parviennent à traverser la barrière, l'effet tunnel est réduit : le courant qui circule est faible.

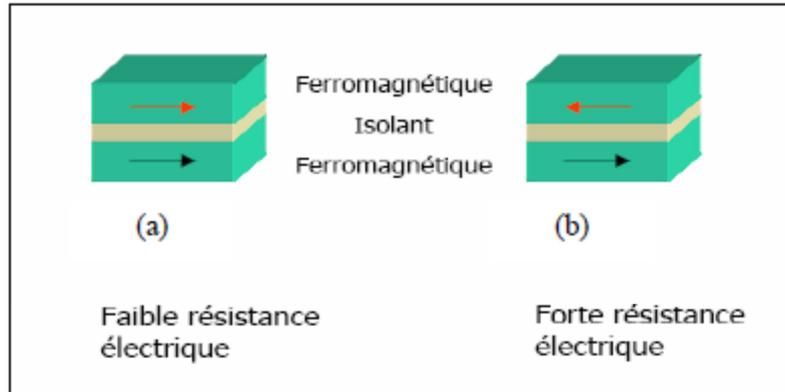


Figure I-1: Les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction tunnel magnétique.

I.4 Description phénoménologique de la TMR

Ce contexte est consacré à l'exposé de certaines notions théoriques utiles à l'interprétation des phénomènes de condition des électrons polarisés en spin entre deux matériaux ferromagnétiques séparés par une barrière isolante.

Dans une première partie, nous présentons les caractéristiques essentielles du transport électroniques par effet tunnel dans une structure métal isolant métal. Ensuite, la seconde partie est consacrée à l'influence du spin de l'électron sur ces caractéristiques de conduction.

I.5 Condition de franchissement d'une barrière isolante (effet tunnel)

Considérons une barrière de potentiel telle qu'elle est schématisée dans la Figure I-2.

La fonction d'onde d'une particule doit vérifier l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(x,t) = -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \psi(x,t) + V(x) \psi(x,t) \quad (\text{I.1})$$

On recherche des états stationnaires solutions de cette équation tels que :

$$\psi(x,t) = \varphi(x) \chi(t) \quad (\text{I.2})$$

On obtient alors :

$$\frac{i\hbar}{\chi(t)} \frac{d\chi(t)}{dt} = \frac{1}{\varphi(x)} \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \varphi(x) \right] + V(x) \quad (\text{I.3})$$

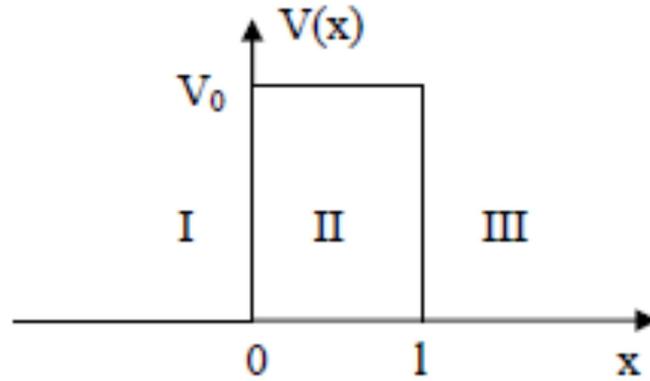


Figure I-2: diagramme représentant une barrière tunnel rectangulaire. On distingue trois régions, celles avant et après la barrière, lorsque le potentiel est nul, et celle au niveau de la barrière de longueur l , lorsque le potentiel vaut V_0 .

Cette égalité n'est possible que si chacune des fonctions vaut une constante $E = \hbar \omega$. La solution de l'équation différentielle constituée par le membre de gauche donne :

$$\psi(x, t) = \varphi(x) e^{-i\omega t} \quad (\text{I.4})$$

Le membre de droite de l'équation différentielle peut s'écrire :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V(x) \right] \varphi(x) = E \varphi(x) \quad (\text{I.5})$$

et sa solution s'écrit :

$$\varphi(x) = A e^{ikx} + A' e^{-ikx} \quad (\text{I.6})$$

que l'on peut décomposer dans les trois régions I, II et III en :

$$\varphi_I(x) = A_1 e^{ik_1 x} + A_1' e^{-ik_1 x} \quad (\text{I.7})$$

$$\varphi_{II}(x) = A_2 e^{ik_2 x} + A_2' e^{-ik_2 x} \quad (\text{I.8})$$

$$\varphi_{III}(x) = A_3 e^{ik_1 x} + A_3' e^{-ik_1 x} \quad (\text{I.9})$$

Où :

$$K_1 = \sqrt{\frac{2mE}{\hbar^2}} \quad (\text{I.10})$$

$$K_2 = \sqrt{\frac{2m(V_0 - E)}{\hbar^2}} \quad (\text{I.11})$$

Les conditions de raccordement permettent de calculer le coefficient de transmission de la Barrière :

$$T = \left| \frac{A_3}{A_1} \right|^2 = \frac{4E(V_0 - E)}{4E(V_0 - E) + V_0^2 sh^2 \left[\sqrt{2m(V_0 - E)} l / \hbar \right]} \quad (\text{I.12})$$

Considérons un électron d'énergie 1 eV rencontrant une barrière telle que $V_0 = 2 \text{ eV}$ et $l = 0,5 \text{ nm}$, on trouve $T = 0,14$. Donc un électron a une chance sur sept environ de franchir la barrière

I.6 Modèle de Jullière pour les jonctions tunnel magnétiques

En 1975, Jullière [7] a mis en évidence le rôle prépondérant du spin des électrons dans le transport par effet tunnel dans des jonctions Fe/Ge/Fe où une couche de 10 nm composée du semi-conducteur Ge légèrement oxydé fait office de barrière (typiquement d'une hauteur de potentiel de 100 meV). A basse température ($4,2 \text{ K}$), ses observations font état d'une variation de la conductance électrique en fonction de l'orientation relative des aimantations des deux couches magnétiques (Figure I-3). Ce phénomène, qui est la magnétorésistance tunnel (TMR) s'explique par l'existence d'un courant tunnel à travers la barrière dépendant de la polarisation en spin des électrons de conduction des deux électrodes.

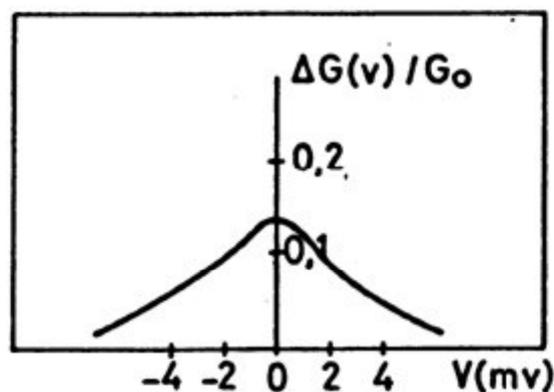


Figure I-3: Conductance relative $(\Delta G / G_0)$ en fonction de la tension appliquée d'une Jonction Fe-Ge-Fe à $T = 4,2 \text{ K}$.

Avec ΔG est la différence entre les deux valeurs de conductance correspondant aux aimantations relatives parallèle et antiparallèle des deux couches ferromagnétiques [7]. Jullière a proposé un modèle descriptif simple basé sur la notion de polarisation des métaux

ferromagnétiques. Cette quantité notée P est définie comme étant la différence relative des densités d'états, au niveau de Fermi, $n_{spin}(E_F)$ pour les deux bandes de spin (de configuration de spin \uparrow ou \downarrow) :

$$P = \frac{n_{\uparrow}(E_F) - n_{\downarrow}(E_F)}{n_{\uparrow}(E_F) + n_{\downarrow}(E_F)} \quad (\text{I.13})$$

En supposant que l'électron conserve son état de spin lors de son passage à travers la barrière, on peut considérer que la conduction s'effectue par deux canaux indépendants Figure I.4. La conductivité pour chaque canal de spin est calculée par la règle de Fermi. Celle-ci stipule que la probabilité de passage d'un électron dans un état de spin donné est proportionnelle à la densité d'états disponibles au niveau de Fermi dans l'électrode réceptrice.

De même, le nombre d'électrons candidats au passage à travers la barrière est proportionnel à la densité d'états initiaux dans l'électrode de départ. Il en résulte que pour chaque catégorie d'électrons (spin up et spin down) la conductivité tunnel G est proportionnelle au produit des densités d'états des deux électrodes, émettrice et réceptrice. Dans ce modèle à deux courants [8] chaque état de spin contribue de manière indépendante au courant tunnel. La conductivité totale est la simple somme des conductivités pour chaque canal. On obtient donc :

$$G_{Totale} = G_{\uparrow} + G_{\downarrow} \quad (\text{I.14})$$

Si n_1^{spin} et n_2^{spin} sont les densités d'états au niveau de Fermi des électrodes 1 et 2 on obtient :

$$\begin{cases} G_p \cong n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) \\ G_{ap} \cong n_1^{\uparrow}(E_F)n_2^{\downarrow}(E_F) + n_1^{\downarrow}(E_F)n_2^{\uparrow}(E_F) \end{cases} \quad (\text{I.15})$$

Comme on peut clairement le voir sur la (Figure I.6), dans une configuration parallèle des aimantations des deux matériaux ferromagnétiques, les densités d'états de spin \uparrow , $n_1^{\uparrow}(E_F)$ et $n_2^{\uparrow}(E_F)$ sont majoritaires dans chacune des électrodes 1 et 2. La transmission des électrons de spin \uparrow se fait entre des états majoritaires de chaque côté de la barrière ce qui entraîne une conductance électrique importante pour ce canal de spin. A l'inverse, les densités d'états de spin \downarrow , $n_1^{\downarrow}(E_F)$ et $n_2^{\downarrow}(E_F)$ sont minoritaires dans chacune des électrodes et entraînent une conductance électrique faible pour ce canal de spin. La résistance globale de la jonction tunnel

magnétique étant équivalente à la mise en parallèle des résistances des deux canaux de spin, on obtient une résistance faible (conductance forte, dominée par le canal de spin \uparrow).

De la même manière, dans la configuration anti-parallèle des aimantations, les densités d'états $n_1^\uparrow(E_F)$ et $n_2^\downarrow(E_F)$ sont majoritaires, et les densités d'états $n_1^\downarrow(E_F)$ et $n_2^\uparrow(E_F)$ sont minoritaires. On voit clairement que les électrons de spin \uparrow initialement majoritaires et venant de l'électrode 1 n'ont pas assez d'états de spin \uparrow disponibles dans l'électrode 2 d'où une conductance tunnel faible pour le canal de spin \uparrow , et que les électrons de spin \downarrow sont fortement minoritaires dans l'électrode 1 et ne peuvent combler tous les états de spin \downarrow à leur disposition dans l'électrode 2, d'où une conductance tunnel faible pour ce canal de spin \downarrow . Il en résulte une conductance globale faible et une résistance de la jonction tunnel élevée.

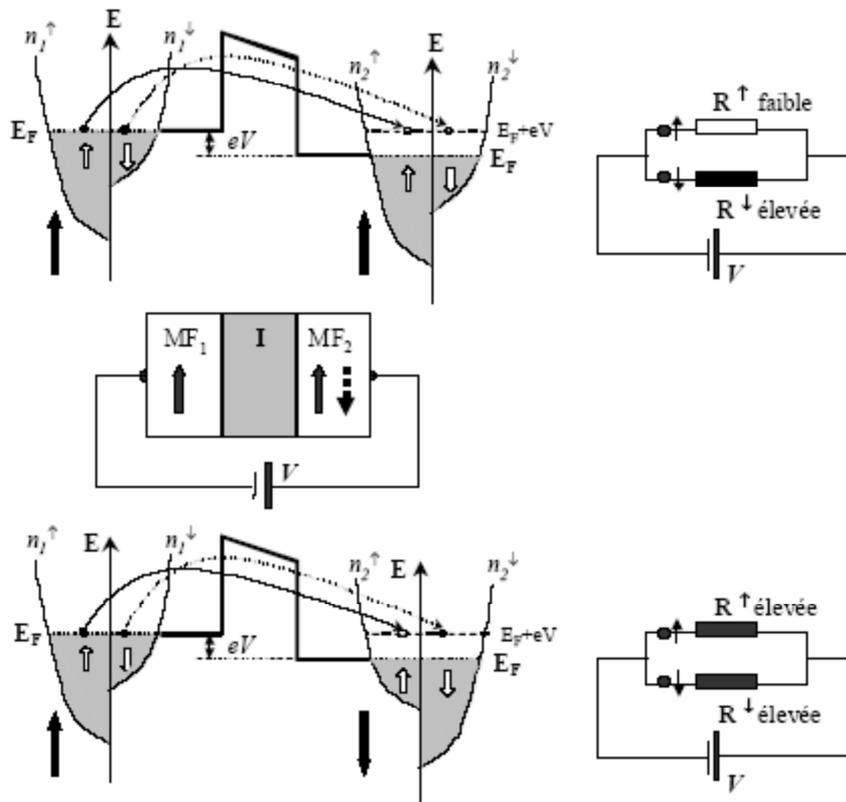


Figure I-4 : Effet tunnel entre deux métaux ferromagnétiques (MF1 et MF2) séparés par une barrière isolante I rectangulaire et déformée par une tension appliquée V .

Les densités d'états $n_1^\uparrow(E)$, $n_2^\uparrow(E)$, $n_1^\downarrow(E)$, $n_2^\downarrow(E)$ sont schématisées par des paraboles décalées en énergie par l'échange. En négligeant les phénomènes de spin-flip lors du passage à travers la barrière, les électrons de spin \uparrow et de spin \downarrow traversent alors la barrière de manière

indépendante par deux canaux de spin distincts. La conduction totale à travers la barrière est alors modélisée par deux résistances électriques connectées en parallèle. Le schéma (a) décrit le cas où les deux électrodes sont dans une configuration magnétique parallèle et le schéma (b) le cas où les électrodes sont dans une configuration magnétique anti-parallèle [9].

On développe alors l'équation décrivant la magnétorésistance tunnel TMR :

$$TMR = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} = \frac{G_p - G_{ap}}{G_{ap}} = \frac{(n_1^\uparrow n_2^\uparrow + n_1^\downarrow n_2^\downarrow) - (n_1^\uparrow n_2^\downarrow + n_1^\downarrow n_2^\uparrow)}{n_1^\uparrow n_2^\downarrow + n_1^\downarrow n_2^\uparrow} \quad (I.16)$$

Cette quantité est sans dimension et s'exprime couramment en %. On remarquera que Jullière n'introduit que la notion de polarisation électronique au niveau de Fermi et que les paramètres tels que l'épaisseur et la hauteur de la barrière ou la nature des électrodes n'interviennent pas. La conductance tunnel s'écrit alors :

$$G = G_{eff} (1 + P_1 P_2 \cos \theta) \quad (I.17)$$

Où θ est l'angle entre les directions des aimantations des deux électrodes (Figure I.7) et G_{eff} la valeur moyenne de la conductance de surface. P_1 et P_2 désignent les polarisations au sens de Jullière des électrodes 1 et 2 respectivement.

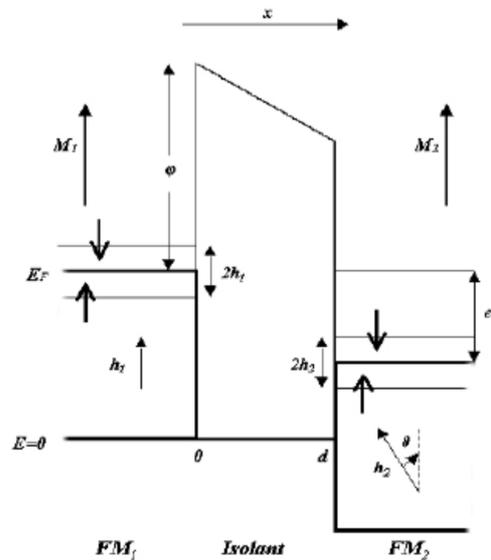


Figure I-5 : Diagramme d'énergie pour un électron dans une jonction tunnel magnétique pour le cas où la configuration des aimantations des électrodes ferromagnétiques FM1 et FM2 est parallèle.

Le champ d'échange sépare les bandes d'énergie correspondant aux deux directions de spin (représentées par \uparrow et \downarrow) [10].

I.7 Les modèles de TMR

Consécutivement aux premiers travaux de Jullière et à son modèle de magnétorésistance tunnel, de nombreux auteurs ont très largement amélioré ce dernier. L'avancée la plus significative dans ce domaine a été le développement d'un modèle proposé par Slonczewski [11] en 1989, qui intègre pour la toute première fois la concordance des fonctions d'ondes à travers la barrière tunnel pour le transport dépendant du spin. Par la suite, différents auteurs ont proposé leurs modèles propres ou amélioré ceux déjà existants.

I.7.1 Modèle de Bardeen

Bardeen [12] a exprimé la probabilité par unité de temps pour qu'un électron d'énergie E dans l'électrode de gauche (FM1) passe par effet tunnel et se retrouve dans un état de la même énergie mais dans l'électrode de droite (FM2) (on peut remarquer l'analogie avec la règle de Fermi) :

$$P_{12}(E) = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{12}(E, V)|^2 f_1(E) n_1(E) (1 - f_2(E + eV)) n_2(E + eV) \quad (\text{I.18})$$

Où $f_1(E)$ et $f_2(E + eV)$ sont les probabilités d'occupation des états dans les électrodes MF1 et MF2 aux énergies E et $E + eV$ respectivement, et sont donc données par la distribution de Fermi Dirac, $n_1(E)$ et $n_2(E + eV)$ sont les densités d'états aux énergies E et $E + eV$ dans les Électrodes correspondantes, et $M_{12}(E, V)$ est l'élément de la matrice de transition.

La densité de courant J_{12} qui passe de MF1 vers MF2 s'écrit :

$$J_{12} = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{ij}} \int_{-\infty}^{+\infty} |M_{12}(E)|^2 f_1(E) n_1(E) (1 - f_2(E + eV)) n_2(E + eV) dE \quad (\text{I.19})$$

Le courant inverse J_{21} passant de MF2 vers MF1 est donné par :

$$J_{21} = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{ij}} \int_{-\infty}^{+\infty} |M_{21}(E)|^2 f_2(E + eV) n_2(E + eV) (1 - f_1(E)) n_1(E) dE \quad (\text{I.20})$$

La densité de courant total est alors $J_{12} - J_{21}$, soit :

$$J = -\frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{k_{ij}} \int_{-\infty}^{+\infty} |M_{12}(E)|^2 n_1(E) n_2(E + eV) (f_1(E) - f_2(E + eV)) dE \quad (\text{I.21})$$

Où nous avons utilisé le fait que $M_{21} = M_{12}^*$. La conductance dynamique dJ/dV par unité de surface s'écrit alors :

$$G(V) = \frac{dJ}{dV} = -\frac{2e^2}{\hbar} \sum_{k_{//}} \int_{-\infty}^{+\infty} |M_{12}(E)|^2 n_1(E) n_2(E + eV) \frac{df_2(E + eV)}{d(eV)} dE \quad (\text{I.22})$$

Dans le calcul ci-dessus, le spin des électrons n'a pas été pris en compte : suivant la configuration magnétique considérée, il suffit d'ajouter un indice supplémentaire (\uparrow ou \downarrow) aux populations $n_1(E)$ et $n_2(E)$. C'est le modèle de Bardeen.

I.7.2 Modèle des électrons libres

Nous allons voir comment il est possible de modéliser, en utilisant le modèle des électrons libres, le transport tunnel dans une hétérostructure FM/I/FM.

Dans un premier temps, considérons le modèle de Sommerfeld qui correspond à des électrons sans interaction dans une boîte. Il s'agit d'électrons dits libres (Figure I-6 (a)). La résolution de l'équation de Schrödinger avec un potentiel V_0 constant donne des états d'énergie E de V_0 jusqu'à E_F :

$$E - V_0 = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \frac{\hbar^2 (k_z^2 + k_{//}^2)}{2m} \quad (\text{I.23})$$

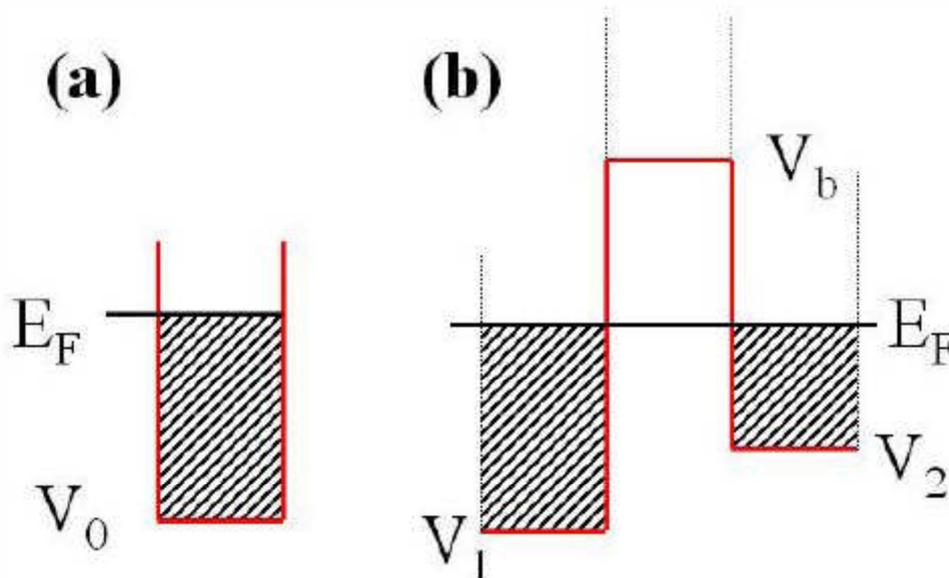


Figure I-6 : (a) Modélisation du remplissage des niveaux pour des électrons dans une boîte de potentiel (b) modélisation du profil de potentiel pour une structure FM/I/FM qui consiste en une succession de trois boîtes telles que celle montrée en (a).

Dans un deuxième temps, on envisage des électrons d'une électrode ferromagnétique. Cette électrode est modélisée par une même boîte que celle présentée ci-dessus. Pour rendre compte du magnétisme, on considère que le potentiel est différent pour les deux directions de spin. Il vaut V^\uparrow pour les spins \uparrow et V^\downarrow pour les spins \downarrow . Les niveaux d'énergie sont alors définis, suivant la direction de spin :

$$E - V^\uparrow = \frac{\hbar^2}{2m} (k_z^{\uparrow 2} + k_{//}^2) \quad (\text{I.24})$$

$$E - V^\downarrow = \frac{\hbar^2}{2m} (k_z^{\downarrow 2} + k_{//}^2) \quad (\text{I.25})$$

Les termes $k_{//}$ dépendant de la direction de spin mais cette contribution du spin peut être intégrée dans V^\uparrow et V^\downarrow .

Dans un troisième temps, la structure *FM/I/FM* se modélise par 2 boîtes ferromagnétiques séparées par une troisième dont le potentiel V_b est supérieur à E_F d'avoir une boîte vide. On aboutit au profil de potentiel de la figure (I-6 (b)). La résolution de l'équation de Schrödinger donne les vecteurs d'onde perpendiculaires au plan de la barrière, dans chaque électrode et pour la direction de spin σ :

$$k_1^\sigma = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (E_F - V_1^\sigma) - k_{//}^2} \quad (\text{I.26})$$

$$k_2^\sigma = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (E_F - V_2^\sigma) - k_{//}^2} \quad (\text{I.27})$$

Dans la barrière, la fonction d'onde est une onde évanescente dont le vecteur d'onde est donné par :

$$k = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (V_b - E_F) - k_{//}^2} \quad (\text{I.28})$$

Le coefficient de transmission pour cette barrière vaut alors $T = \frac{|\psi_2|}{|\psi_1|}$ [10] :

$$T_{//} = \frac{16k_1 k^2 k_2 \exp(-2kd)}{\{k(k_1 + k_2)[1 + \exp(-2kd)]\}^2 + \{(k^2 - k_1 k_2)[1 + \exp(-2kd)]\}^2} \quad (\text{I.29})$$

En particulier si les deux électrodes sont identiques alors $k_1 = k_2 = k^\uparrow$ pour la configuration parallèle et $k_1 = k_2 = k^\downarrow$ pour la configuration antiparallèle :

Dans le cas de jonctions tunnel parfaites, la périodicité dans le plan parallèle à l'interface FM/I est assurée. De plus, dans l'hypothèse d'une périodicité transverse, le vecteur d'onde transverse de l'électron $k_{//}$ est conservé. Il est alors possible d'utiliser la formule de Landauer- Büttiker, sous la forme :

$$G = \frac{e^2}{(2\pi)^2 \hbar} \int d^2 k_{//} T(k_{//}) \quad (\text{I.30})$$

Un modèle couramment utilisé est le modèle de Slonczewski [11] qui est une approximation du calcul des électrons libres. La valeur de la conductance dans ce modèle est obtenue en considérant les équations 25 et 26, en intégrant sur $k_{//}$ et en ne conservant que les termes du premier ordre en $1/d$:

$$G = \frac{e^2}{4\pi\hbar} \frac{k_0}{d} T(o) \quad (\text{I.31})$$

Avec $k_0 = k$ et $k_{//} = 0$, dans ce cas, on aboutit pour l'expression de la TMR, à un résultat similaire à celui de Jullière mais en remplaçant la polarisation P par une polarisation effective qui tient compte de la hauteur de la barrière V_b :

$$P_{eff} = P \frac{k_0^2 - k^\uparrow k^\downarrow}{k_0^2 + k^\uparrow k^\downarrow} \quad \text{Avec} \quad P = \frac{k^\uparrow - k^\downarrow}{k^\uparrow + k^\downarrow} \quad (\text{I.32})$$

I.7.3 Modèle de Slonczewski

La première approche théorique précise de la magnétorésistance tunnel entre deux électrodes identiques (FM1=FM2) fut faite par Slonczewski [11]. Toujours en restant dans le cadre du modèle des électrons libres, il supposa que seuls les électrons au niveau de Fermi participent au courant ; après intégration sur $k_{//}$ et en ne conservant que les termes dominants en $1/d$, les conductances dans les configurations magnétiques P et AP, notées G_P et G_{AP} sont telles que :

$$G_p \propto \frac{k_0}{d} [T^{\uparrow\uparrow}(k_{//} = 0) + T^{\downarrow\downarrow}(k_{//} = 0)] = \frac{k_0}{d} \left[\frac{16k_0^2 k^{\uparrow 2}}{(k_0^2 + k^{\uparrow 2})^2} + \frac{16k_0^2 k^{\downarrow 2}}{(k_0^2 + k^{\downarrow 2})^2} \right] e^{-2dk_{//}} \quad (\text{I.33})$$

et

$$G_{ap} \propto \frac{k_0}{d} \left[T^{\uparrow\downarrow}(k_{//} = 0) + T^{\downarrow\downarrow}(k_{//} = 0) \right] = \frac{k_0}{d} \left[\frac{32k_0^2 k^{\uparrow} k^{\downarrow} e^{-2dk_{//}}}{k^0 (k^{\uparrow} + k^{\downarrow})^2 + (k_0^2 k^{\uparrow} k^{\downarrow})^2} \right] \quad (\text{I.34})$$

La magnétorésistance s'écrit alors :

$$TMR = \frac{G_p - G_{ap}}{G_{ap}} = \frac{2P_{eff}^2}{1 - P_{eff}^2} \quad \text{Avec} \quad P_{eff} = \frac{k^{\uparrow} - k^{\downarrow}}{k^{\uparrow} + k^{\downarrow}} \frac{k_0^2 - k^{\uparrow} k^{\downarrow}}{k_0^2 + k^{\uparrow} k^{\downarrow}} \quad (\text{I.35})$$

Le résultat obtenu par Slonczewski a la même forme que celui du modèle de Jullière mais en considérant cette fois une polarisation effective, produit de la polarisation des électrodes ferromagnétiques et d'un terme qui dépend de la hauteur de la barrière. Ainsi, à la différence du modèle de Jullière, la magnétorésistance dépend du type de jonction tunnel : Slonczewski fut le premier à considérer que la polarisation « tunnel » n'est pas une propriété intrinsèque des métaux mais dépend du couple {métal-isolant} considéré. Des expériences récentes ont clairement validé ce concept et ont montré la forte dépendance entre la polarisation en spin et les propriétés structurales et électroniques des métaux, de l'isolant et de leurs interfaces [13].

I.8 Conclusion sur les différents modèles étudiés

Ces modèles peuvent tous être utilisés pour décrire le comportement magnétorésistif d'une jonction tunnel magnétique JTMs. Cependant, ces différentes formulations ne sont pertinentes que dans des gammes de paramètres assez limitées et ne peuvent en aucun cas décrire le comportement des JTM dans leur globalité. Ces modèles produisent des résultats assez voisins de sorte qu'on ne peut pas actuellement les distinguer d'une façon précise.

II Chapitre II

II.1 Introduction

Les matériaux sont constitués d'électrons et de noyaux, formant ainsi un système à N corps en interaction forte, ce qui rend la résolution de l'équation de Schrödinger extrêmement difficile. Pour lever cette difficulté le recours à d'autres techniques et théories est devenu nécessaire. Parmi ces théories, on cite celle de la fonctionnelle de densité, qui consiste à une reformulation du système quantique à N corps en un système à un corps (mono corps). L'idée principale de la (DFT) est que la seule densité électronique de l'état fondamental détermine entièrement toutes les propriétés d'un système d'électrons en interaction coulombienne avec les noyaux ponctuels.

II.2 Equation de Schrödinger

La structure électronique d'un système à N corps est décrite par l'équation de Schrödinger.

$$H\Psi = \left[-\sum_i^N \frac{\hbar^2}{2m_i} \nabla_i^2 - \sum_I^A \frac{\hbar^2}{2M_I} \nabla_I^2 - \sum_{i,I} \frac{Z_I e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_I|} + \frac{1}{2} \sum_{i<j} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + \frac{1}{2} \sum_{I<J} \frac{Z_I Z_J e^2}{|\vec{R}_I - \vec{R}_J|} \right] \Psi = E\Psi \quad (\text{II.1})$$

Où H est l'hamiltonien et Ψ la fonction d'onde. Les deux premiers termes de l'hamiltonien sont respectivement les opérateurs énergie cinétique des N électrons (indités i) et des A noyaux atomiques (indités I). Les trois autres termes représentent les différents potentiels d'interaction électron-noyau, électron-électron et noyau-noyau. Cette forme complexe de l'équation de Schrödinger rend sa résolution analytique assez difficile.

De manière à simplifier la résolution de cette équation, Max Born et Robert-Oppenheimer ont proposés une approximation visant à simplifier l'équation de Schrödinger [14]. Cette approximation considère la position des noyaux atomiques comme fixes; leur énergie peut donc être négligée et le terme d'interaction entre noyaux considéré comme constante est notée E_{II} . L'équation de Schrödinger à résoudre devient:

$$H\Psi = \left[\sum_i^N -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 - \sum_{i,I} \frac{Z_I e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_I|} + \frac{1}{2} \sum_{i<j} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + E_{II} \right] \Psi = E\Psi \quad (\text{II.2})$$

De manière à alléger les notations on représentera, par convention, l'opérateur énergie cinétique par T, le potentiel externe ressenti par les électrons par V_{ext} et le potentiel

d'interaction électron-électron par U . L'équation s'écrit dès lors sous une forme plus condensée comme :

$$H\Psi = [T + V_{ext} + U]\Psi = E\Psi \quad (\text{II.3})$$

II.3 La théorie de la fonctionnelle de densité (DFT)

La théorie de la fonctionnelle de densité [15-16] constitue actuellement l'une des méthodes les plus utilisées dans les calculs quantiques de la structure électronique de la matière. L'objectif principal de cette théorie est de remplacer la fonction d'onde multiélectronique par la densité électronique en tant que quantité de base pour les calculs.

La théorie de la fonctionnelle de densité est basée sur le théorème de Pierre Hohenberg et Walter Kohn [17], qui stipule, que l'énergie totale E , d'un système d'électrons dans un potentiel externe est une fonctionnelle unique de la densité électronique ρ :

$$E = E(\rho) \quad (\text{II.4})$$

Ils ont montré aussi, que la densité exacte, de l'état fondamental à une particule est celle qui minimise l'énergie $E(\rho)$, et que les autres propriétés de l'état fondamental sont aussi fonctionnelle de cette densité.

$$E(\rho) = \text{Min } E(\rho) \quad (\text{II.5})$$

Pour un système à spin polarisé, l'énergie totale et les autres propriétés de l'état fondamental deviennent une fonctionnelle des deux densités de spin haut et bas.

$$E = E(\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}) \quad (\text{II.6})$$

Puisque l'énergie cinétique d'un gaz d'électrons en interaction étant inconnue, Kohn et Sham ont proposés en 1965 un modèle qui consiste à remplacer le système d'électrons en interaction impossible à résoudre analytiquement, par un système d'électrons indépendant évaluant dans un potentiel externe [18]. Cela revient à exprimer la fonctionnelle énergie totale écrite comme:

$$E(\rho) = F(\rho) + \int V_{ext}(r)\rho(r) d^3r \quad (\text{II.7})$$

Par l'équation suivante:

$$E_s(\rho) = T_s(\rho) + V_s(\rho) \quad (\text{II.8})$$

Où $T_s(\rho)$ sont l'énergie cinétique des électrons sans interactions, $V_s(\rho)$ le potentiel dans lequel les électrons se déplacent. L'intérêt de la reformulation introduite par Kohn et Sham est que l'on peut maintenant définir un hamiltonien mono-électronique et écrire les équations mono-électroniques, qui contrairement à l'équation de Schrödinger définie en haut, peuvent être résolues analytiquement.

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_i} \nabla_i^2 + V_s(r) \right] \Psi_i(r) = E_i \Psi_i(r) \quad (\text{II.9})$$

La résolution des équations de Kohn et Sham va permettre de déterminer les orbitales $\Psi_i(r)$ qui vont reproduire la densité électronique du système multiélectronique d'origine.

$$\rho(r) = \sum_i^N \left| \Psi_i(\vec{r}) \right|^2 \quad (\text{II.10})$$

Le potentiel V_s mono-électronique apparaissant dans l'équation (II.9) peut être exprimé comme suit :

$$V_s = V_{ext} + \int \frac{\rho(r) \cdot \rho'(r)}{\left| \begin{matrix} \vec{r} & \vec{r}' \\ r & r' \end{matrix} \right|} d^3 r' + V_{xc}[\rho(r)] \quad (\text{II.11})$$

Le premier terme est le potentiel externe créé par les noyaux, le deuxième exprime l'interaction coulombienne classique entre paires d'électrons (potentiel de Hartree), le dernier terme est le potentiel d'échange et de corrélation. Comme on peut l'observer dans l'équation (II.11), ce potentiel dépend de la densité électronique; qui est elle-même calculée à partir des fonctions d'ondes des électrons indépendants, qui mêmes dépendent du potentiel calculé à partir de la densité. Cette approche conduit à un traitement dit « self consistant »

II.4 Approximations

La DFT est une théorie exacte dans la mesure où la densité électronique qui minimise l'énergie totale est exactement la densité du système de N électrons en interaction. Cependant cette théorie reste inapplicable car le potentiel d'échange et de corrélation est inconnu. Il est donc nécessaire d'approximer ce potentiel d'échange et de corrélation.

Il existe deux types d'approximations: L'approximation de la densité locale où LDA et l'approximation du gradient généralisée où GGA.

II.4.1 L'approximation de la densité locale (LDA)

L'approche de la densité locale [19-20] est basée sur le modèle du gaz uniforme d'électron et constitue l'approche la plus simple pour exprimer l'énergie d'échange et de corrélation. Celle-ci est décrite comme:

$$E_{xc}^{LDA}(\rho) = \int \rho(r) \varepsilon_{xc}[\rho(r)] d^3r \quad (II.12)$$

Où $\varepsilon_{xc}[\rho(r)]$ désigne l'énergie d'échange et de corrélation pour une particule d'un gaz homogène d'électrons. Kohn et Sham ont aussi permis, pour les systèmes magnétiques, la polarisation de spin par l'approximation de la densité locale de spin (LSDA) où l'énergie d'échange et de corrélation ε_{xc} devient une fonctionnelle des deux densités spin haut et bas.

$$E_{xc}^{LSDA}[\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}] = \int \rho(r) \varepsilon_{xc}[\rho_{\uparrow}(r), \rho_{\downarrow}(r)] d^3r \quad (II.13)$$

L'énergie ε_{xc} peut être décomposée en une contribution d'échange $\varepsilon_x(\rho)$ et de corrélation $\varepsilon_c(\rho)$.

$$\varepsilon_{xc}[\rho] = \varepsilon_x[\rho] + \varepsilon_c[\rho] \quad (II.14)$$

$\varepsilon_x[\rho]$ est l'énergie d'échange et $\varepsilon_c[\rho]$ est l'énergie de corrélation.

Pour la théorie de Hartree d'un gaz d'électrons libres, l'énergie d'échange à la forme $\rho^{\frac{1}{3}}$ et elle est définie comme suit:

$$\varepsilon_x = -\frac{0.4582}{r_s} \quad (II.15)$$

En unité atomiques, où $r_s = \left(\frac{3}{4}\rho\right)^{-\frac{1}{3}}$.

La corrélation a été estimée en premier par Wingner [21] :

$$\varepsilon_c(\rho) = -\frac{0.44}{r_s + 7.8} \quad (II.16)$$

D'autre part, l'énergie de corrélation d'un gaz d'électron libre de densité uniforme a été modéliser dans une simulation Montée Carlo par Ceperly et Alder [22], et a été donnée par Perdew et Zunger [23] par :

$$\varepsilon_c = -\frac{0.1423}{1 + 1.0529r_s^{\frac{1}{2}} + 0.3334r_s} \quad r_s > 1 \quad (\text{II.17})$$

$$\varepsilon_c = -0.0480 + 0.0311 \ln r_s - 0.0116 r_s + 0.0020 r_s \ln r_s \quad r_s < 1 \quad (\text{II.18})$$

D'autres paramétrisations existent pour l'énergie de corrélation d'un gaz d'électrons homogènes, parmi elles, celle de Kohn et sham [24], Hedin et Lundquist [25], et Perdew et Wang [26], le principe variationnel a été appliqué, et les équations de Kohn-Sham à un électron ont été données par l'équation suivante :

$$\{T + V_{ei}(r) + V_H(r) + V_{xc}(r)\}\Psi_i(r) = \varepsilon_i \Psi_i(r) \quad (\text{II.19})$$

Où Ψ_i est la fonction d'onde de l'état électronique i , ε_i est la valeur propre de Kohn-Sham et V_H est le potentiel de Hartree des électrons donné par :

$$V_H(r) = e^2 \int \frac{\rho(r')}{|r-r'|} d^3r' \quad (\text{II.20})$$

Le potentiel d'échange et corrélation, V_{xc} est donné par :

$$V_{xc}(r) = \frac{\partial E_{xc}[\rho]}{\partial \rho(r)} \quad (\text{II.21})$$

Dans cette méthode, le problème à plusieurs corps a été remplacé par les équations de kohn et sham à un électron (II.19), qui peuvent être résolues, et la densité est représentée par une somme sur tous les états occupés:

$$\rho(r) = \sum_{occup} \Psi_i^*(r) \cdot \Psi_i(r) \quad (\text{II.22})$$

Les équations de Kohn et sham doivent être résolues d'une manière self- consistante, en effet les états électroniques occupés génèrent une densité de charge, qui produit le potentiel électronique utilisé pour résoudre les équations. Bien, qu'étant une approche assez simple conceptuellement, l'approche LDA permet néanmoins d'obtenir de bons résultats. Une compensation des erreurs permet d'expliquer en partie, le relatif succès de la méthode LDA. Celle-ci tend en effet à sous-estimer l'énergie d'échange alors qu'elle surestime l'énergie de corrélation ce qui permet, en fin d'obtenir des valeurs assez bonnes pour l'énergie d'échange et de corrélation.

II.4.2 L'approximation du gradient généralisé (GGA)

L'approche LDA se fondait sur le modèle du gaz d'électrons et supposait donc une densité électronique uniforme. Cependant les systèmes atomiques ou moléculaires sont plus souvent très différents d'un gaz d'électrons homogène et, de manière plus générale, on peut considérer que tous les systèmes réels sont inhomogènes c'est-à-dire que la densité électronique possède une variation spatiale. L'approximation non-locale GGA a été développée de manière à prendre en compte cette variation de la densité en exprimant les énergies d'échange et de corrélation en fonction de la densité mais également de son gradient (dérivée première). De manière générale, l'énergie d'échange et de corrélation est définie dans l'approximation GGA comme:

$$E_{xc}^{GGA}[\rho] = \int [f(\rho(r), \nabla\rho(r))] d^3r \quad (\text{II.23})$$

La GGA est donnée par différentes paramétrisations de la fonctionnelle d'échange et de corrélation [27-28]. L'approximation du gradient généralisée a été développée pour améliorer la qualité des résultats de la LDA. La version GGA proposée par Perdew et Wang [30] ou bien encore MPW (Modified Perdew Wang)[31], on peut citer également les fonctionnelles d'échange B88(Perdew88) [32], Perdew86 [22], ou PBE (PerdewBurke-Ernzerhof)[33]. L'amélioration de la qualité des énergies totales par la GGA, a changé l'attitude des chimistes quanticiens quand à l'utilisation des calculs DFT-GGA, pour étudier les propriétés physiques de grosses molécules [34] à la place de la traditionnelle Hartree-Fock (HF), plus un traitement des effets de corrélation.

II.5 Résolution des équations de Kohn-Sham à une particule

Le modèle de Kohn-Sham permet d'aboutir à un ensemble d'équations de Schrödinger mono-électroniques connues sous le nom de Kohn-Sham.

$$\left[-\frac{\nabla^2}{2m} + V_{ext} + V_H + V_{xc} \right] \Psi_i = E_i \Psi_i \quad (\text{II.24})$$

qui doivent être résolues numériquement selon un processus itératif. De manière à pouvoir résoudre ces équations de manière numérique, un certain nombre de représentations de la densité, le potentiel et surtout les orbitales de Kohn-Sham doivent être envisagées.

Le choix de la représentation est fait pour minimiser le temps de calcul, en maintenant suffisamment la précision. Les orbitales de Kohn-Sham sont données par :

$$\Psi_i(r) = \sum_{\alpha} C_{i\alpha} \Psi_{\alpha}(r) \quad (\text{II.25})$$

Où $\Psi_{\alpha}(r)$ sont les fonctions de bases, et les $C_{i\alpha}$ sont les coefficients de l'expansion.

La résolution self-consistante des équations de KS revient à déterminer les $C_{i\alpha}$ pour les orbitales occupées qui minimisent l'énergie totale. L'énergie est réécrite en utilisant les valeurs propres à une particule, pour éliminer la fonctionnelle inconnue $T_s[\rho]$.

$$E(\rho) = E_{ii}[\rho] + \sum_{\text{occup}} \varepsilon_i + E_{xc}[\rho] - \int \rho(r) \left(V_{xc}(r) + \frac{1}{2} V_H(r) \right) d^3r \quad (\text{II.26})$$

ρ , V_H et V_{xc} sont données respectivement par les équations (II.22), (II.20) et (II.21).

II.6 Procédure de calcul dans la DFT

Les équations de $\rho(r)$, $V_H(r)$ et V_{xc} sont résolues d'une manière itérative. En introduisant une densité de départ ρ^{in} , l'équation séculaire $(H - \varepsilon_i S)C_i = 0$ est diagonalisée en assurant que les orbitales sont orthogonales. Une nouvelle densité ρ^{out} est calculée en utilisant l'équation (II.22), si l'on n'obtient pas la convergence des calculs, cette densité d'entrée est mélangée avec la densité calculée de la manière suivante :

$$\rho_{in}^{i+1} = (1 - \alpha) \rho_{in}^i + \alpha \rho_{out}^i \quad (\text{II.27})$$

Où l'indice i représente le nombre de l'itération, et α le paramètre de mélange.

La procédure est poursuivie jusqu'à la convergence.

II.7 Les systèmes à spin polarisé

Dans la généralisation de la DFT pour les systèmes à spin polarisé, la densité de charge $\rho(r)$ est décomposée en deux densités avec spin haut et bas respectivement.

$$\rho(r) = \rho_{\uparrow}(r) + \rho_{\downarrow}(r) \quad (\text{II.28})$$

L'énergie totale est alors fonctionnelle des deux densités de spin.

$$E = E(\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}) \quad (\text{II.29})$$

L'énergie est décomposée comme dans l'équation (II.6). Le terme de coulomb reste une fonctionnelle de la densité totale, l'énergie cinétique T_S et E_{xc} deviennent fonctionnelle des deux densités de spin.

$$\{T + V_{ei}(r) + V_H(r) + V_{xc\sigma}(r)\}\Psi_{i\sigma}(r) = E_{i\sigma}\Psi_{i\sigma}(r) \quad (\text{II.30})$$

Où σ est l'indice du spin et:

$$\rho_{\sigma}(r) = \sum_{occup} \Psi_{occup}^*(r) \cdot \Psi_{i\sigma}(r) \quad (\text{II.31})$$

Le potentiel d'échange et de corrélation est donné par

$$V_{xc\sigma} = \frac{\partial E_{xc}[\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}]}{\partial \rho_{\sigma}(r)} \quad (\text{II.32})$$

L'expression de l'énergie totale devient alors :

$$E[\rho] = E_{ii}[\rho] + \sum_{occ} \varepsilon + E_{xc}[\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}] - \frac{1}{2} \int \rho(r) V_H(r) d^3r - \int (\rho_{\uparrow}(r) V_{xc,\uparrow}(r) + \rho_{\downarrow}(r) V_{xc,\downarrow}(r)) d^3r \quad (\text{II.33})$$

Ces équations sont résolues d'une manière self consistante comme dans le cas où on n'a pas de polarisation de spin. Cependant, il y'a séparation des orbitales de KS des deux composantes de spin, et deux ensembles d'équations à une particule doivent être résolues pour les obtenir.

Pour la résolution des équations de Kohn-Sham, plusieurs méthodes sont utilisées comme la méthode du pseudo potentiel, la méthode de la combinaison linéaire des orbitales atomiques (LCAO), la méthode linéaire des orbitales de muffin tin (LMTO), et la méthode des ondes planes augmentées (LAPW).

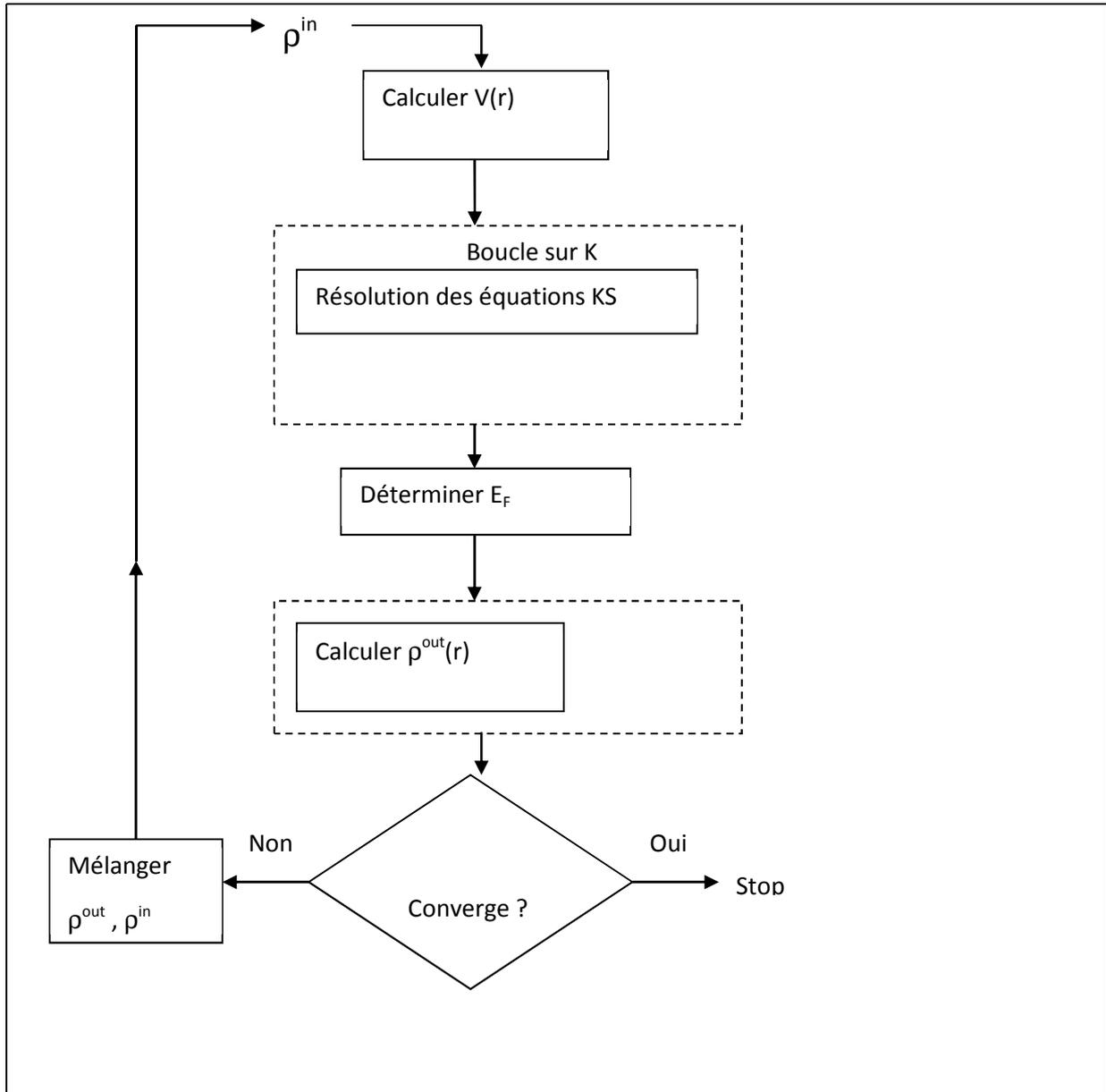


Figure II-1: Schéma décrivant le processus itératif pour la résolution des équations de Kohn-Sham.

II.8 Les fonctions de Green hors équilibre(NEGF) pour des systèmes ouverts

Le problème de transport des systèmes ouverts réside dans sa dimension infinie non périodique où son Hamiltonien est non hermitien. Ce problème peut être résolu en utilisant la fonction de Green retardée pour décrire l'ensemble des équations du système

$$[\epsilon^+ \mathcal{S} - \mathcal{H}] \mathcal{G}^R(E) = I \quad (\text{II.34})$$

Où I est une matrice unitaire de dimension infini, $\epsilon^+ = \lim_{\delta \rightarrow 0^+} E + i\delta$ et E est l'énergie. La même équation peut être écrite de la forme matricielle (dans ce qui suit on abandonnera l'indice R qui dénote la fonction de Green retardée) :

$$\begin{pmatrix} \epsilon^+ \mathcal{S}_L - \mathcal{H}_L & \epsilon^+ \mathcal{S}_{LM} - \mathcal{H}_{LM} & 0 \\ \epsilon^+ \mathcal{S}_{ML} - \mathcal{H}_{ML} & \epsilon^+ \mathcal{S}_M - \mathcal{H}_M & \epsilon^+ \mathcal{S}_{MR} - \mathcal{H}_{MR} \\ 0 & \epsilon^+ \mathcal{S}_{RM} - \mathcal{H}_{RM} & \epsilon^+ \mathcal{S}_R - \mathcal{H}_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{G}_L & \mathcal{G}_{LM} & \mathcal{G}_{LR} \\ \mathcal{G}_{ML} & \mathcal{G}_M & \mathcal{G}_{MR} \\ \mathcal{G}_{RL} & \mathcal{G}_{RM} & \mathcal{G}_R \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I & 0 & 0 \\ 0 & I_M & 0 \\ 0 & 0 & I \end{pmatrix} \quad (\text{II.35})$$

Où nous avons subdiviser la matrice de la fonctions de Green \mathcal{G} dans des blocs infinies représentant l'électrode gauche \mathcal{G}_L et l'électrode droite \mathcal{G}_R , et $\mathcal{G}_{LM}, \mathcal{G}_{RM}$ représentent l'interaction entre la molécule et les électrodes gauche et droite respectivement, et \mathcal{G}_{LR} représente le phénomène de diffusion entre les électrodes gauche et droite et \mathcal{G}_M est le bloc fini qui représente la molécule étendue. Nous avons également introduit les matrices $\mathcal{H}_L, \mathcal{H}_R$ et \mathcal{H}_{LM} , et leur blocs de la matrice de recouvrement, correspondant à l'hamiltonien des électrode gauche et droite et la matrice de couplage entre les électrodes et la molécule respectivement. \mathcal{H}_M est une matrice de dimension $M \times M$ et I_M est matrice unité de dimension $M \times M$. Les matrices infinies, \mathcal{H}_L et \mathcal{H}_R représentent les électrodes et elles ont la forme de bloc diagonale :

$$\mathcal{H}_L = \begin{pmatrix} \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & H_{-1} & H_0 & H_1 & 0 \\ \cdots & 0 & H_{-1} & H_0 & H_1 \\ \cdots & \cdots & 0 & H_{-1} & H_0 \end{pmatrix} \quad (\text{II.36})$$

Avec des expressions similaires pour la matrice \mathcal{H}_R et la matrice de recouvrement \mathcal{S} . Au contraire, la dimensionnalité des matrices de couplage entre les électrodes et la molécule sont infinies dont les éléments sont tous zéro sauf pour le bloc qui couple l'électrode et la molécule. Par exemple, nous avons

$$\mathcal{H}_L = \begin{pmatrix} \vdots \\ 0 \\ H_{LM} \end{pmatrix} \quad (\text{II.37})$$

L'étape cruciale pour résoudre l'équation (II.35) est d'écrire les équation correspondant à la fonction de Green représentant la molécule et les électrodes gauche et droit ensuite évalue la fonction de Green retardée pour la molécule étendue G_M^R . Ceci peut être fait en faisant les hypothèses suivantes sur le problème de l'électrostatique : la chute de potentiel se produit entièrement à travers la molécule étendue et il n'y a aucun changement à la structure

électronique des réservoirs (électrodes) dû au couplage de la molécule, ou par le potentiel externe. Compte tenu du fait que nous pouvons concentrer uniquement sur la région de diffusion (molécule) et traiter l'effet des électrodes en termes d'une interaction efficace. Ceci peut être réalisé en éliminant les degrés de liberté des électrodes par l'interface avec la molécule étendue. Effectivement, On peut renormalise l'Hamiltonien total à l'aide d'une procédure qui peut être démontrée en [39]. L'expression finale de G_M^R a la forme:

$$G_M^R(E) = [\epsilon^+ \mathcal{S}_M - H_M - \Sigma_L^R(E) - \Sigma_R^R(E)]^{-1} \quad (\text{II.38})$$

Où nous avons introduit les self-énergies retardés pour les électrodes gauche et droite

$$\Sigma_L^R(E) = (\epsilon^+ \mathcal{S}_{ML} - H_{ML}) G_L^{0R}(E) (\epsilon^+ \mathcal{S}_{LM} - H_{LM}) \quad (\text{II.39})$$

Et

$$\Sigma_R^R(E) = (\epsilon^+ \mathcal{S}_{MR} - H_{MR}) G_R^{0R}(E) (\epsilon^+ \mathcal{S}_{RM} - H_{RM}) \quad (\text{II.40})$$

Ici $G_L^{0R}(E)$ et $G_R^{0R}(E)$ sont les fonctions de Green retardées du surfaces dès l'électrode, c'est-à-dire les fonctions de Green retardées évaluées à la surface dès l'électrode voisins à la molécule étendue lorsque celle-ci est découplée de l'électrode. Évidemment $G_L^{0R}(G_R^{0R})$ correspond au bloc inférieur droit (gauche supérieure) de la fonction de Green retardé pour l'ensemble des électrodes semi-infinies gauche (droite). Ce sont tout simplement

$$G_L^{0R}(E) = [\epsilon^+ \mathcal{S}_L - \mathcal{H}_L]^{-1} \quad (\text{II.41})$$

Et

$$G_R^{0R}(E) = [\epsilon^+ \mathcal{S}_R - \mathcal{H}_R]^{-1} \quad (\text{II.42})$$

Note que $G_L^{0R}(G_R^{0R})$ n'est pas la même que $G_L^R(G_R^R)$ défini dans l'équation (II.35). Le fait que le premier est le la fonction de Green d'électrode semi-infini isolée, alors que Ces derniers sont les mêmes quantités pour les électrodes attachées à la région de diffusion. Mais surtout on n'a pas besoin de résoudre les équations (II.41) et (II.42) pour calculer les fonctions de Green de surface des électrodes. Cependant il existe une méthode pour éviter l'inversion de la matrice infini dans le référence [39].

Terminons cette section avec quelques commentaires sur les résultats obtenus. La fonction de Green retardée G_M^R contient toutes les informations sur la structure électronique de la molécule étendue attaché aux électrodes. Dans sa forme étroite donnée par l'équation (II.38)

c'est tout simplement la fonction de Green retardé associée à la Matrice de Hamiltonien effectif H_{eff} .

$$H_{eff} = H_M + \Sigma_L^R(E) + \Sigma_R^R(E) \quad (\text{II.43})$$

Notons que H_{eff} n'est pas un Hermitien puisque les self-énergies ne sont pas des matrices Hermitiennes. Cela signifie que le nombre total de particules dans la molécule étendue n'est pas conservé, comme prévu par la présence des électrodes. En outre, depuis que le G_M^R contient toutes les informations sur la structure électronique de la molécule étendue en équilibre avec les électrodes, il peut être directement utilisé pour extraire la conductance G à une tension de polarisation externe nulle. En fait on peut simplement appliquer la relation de Fisher-Lee [35-46] et obtenir:

$$G = \frac{2e^2}{h} \sum_{Tr} [\Gamma_L G_M^{R\dagger} \Gamma_R G_M^R] \quad (\text{II.44})$$

Où

$$\Gamma_\alpha = i[\Sigma_\alpha^R(E) - \Sigma_\alpha^R(E)^\dagger] \quad (\text{II.45})$$

($\alpha = L, R$) Dans l'équation (II.44), toutes les quantités sont évaluées à l'énergie de Fermi E_F . Il est évident que $Tr[\Gamma_L G_M^{R\dagger} \Gamma_R G_M^R](E)$ est tout simplement le coefficient de transmission total en fonction de l'énergie (E) obtenu de la théorie de diffusion standard [84].

II.9 L'état Stationnaire et self-consistent procédure

Prenons maintenant le cas où les éléments de la matrice de l'hamiltonien du système sont pas connus explicitement, mais seulement leur dépendance fonctionnelle sur la densité de charge $n(\vec{r})$, $\mathcal{H} = \mathcal{H}[n]$, est connue. C'est le cas le plus courant en champ moyen standard, c'est-à-dire la théorie de la structure électronique, tels que la DFT [41-42]. Si aucune polarisation externe n'est appliquée au dispositif (limite de réponse linéaire) l'hamiltonien du système peut être tout simplement obtenu à partir des procédures de calculs de la DFT standard en équilibre décrite dans les sections précédentes. Toutefois, lorsqu'une polarisation externe V est appliquée, la distribution de la charge dans la molécule étendue diffère de celle à l'équilibre depuis que la charge nette et la polarisation électrique tous les deux sont affectées par la polarisation externe. Cela permettra de déterminer un nouveau profil du potentiel électrostatique avec des propriétés de diffusion différentes. Ces modifications affecteront uniquement la molécule étendue, car les électrodes préservent la neutralité de la charge locale. Cela signifie que la densité de charge et donc l'Hamiltonien des électrodes ne sont pas

modifiés par la polarisation externe appliquée. Comme nous l'avons discuté au début le seul effet de la polarisation externe sur la courant/tension des électrodes est le déplacement rigide des énergies des sites ceux-ci. Alors l'hamiltonien prend la forme suivante:

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} \mathcal{H}_L + \mathcal{S}_L eV/2 & \mathcal{H}_{LM} & 0 \\ \mathcal{H}_{ML} & \mathcal{H}_M & \mathcal{H}_{MR} \\ 0 & \mathcal{H}_{RM} & \mathcal{H}_R - \mathcal{S}_R eV/2 \end{pmatrix} \quad (\text{II.46})$$

Notons que les matrices de couplage entre les électrodes et la molécule étendue ne sont également pas modifiées par la polarisation externe, depuis que la construction de la densité de charge des surfaces des plans de la molécule étendue à l'interface correspond exactement aux électrodes. L'hamiltonien de la molécule étendue:

$$\mathcal{H}_M = \mathcal{H}_M[n] \quad (\text{II.47})$$

dépend de la matrice densité, qui est calculée à l'aide de la fonction de Green [35-36-37-38-40-44-45]

$$D_M = \frac{2}{2\pi i} \int dE G_M^<(E) \quad (\text{II.48})$$

Alors, une procédure doit être conçue pour calculer cette quantité.

En équilibre, $G_M^<(E) = 2i\text{Im}[G^R(E)]f(E - \mu)$, alors il est seulement nécessaire de considérer la fonction de Green retardée, donnée par l'équation (II.38) hors d'équilibre, cependant, la présence des électrodes établit une population hors équilibre dans la molécule étendue et $G_M^<$ n'est plus égal à $2i\text{Im}[G^R(E)]f(E - \mu)$. Alors le formalisme de fonction de Green hors équilibre [35-36-37-38-44-45] fournit une expression correcte (voir le référence [40]).

$$G_M^<(E) = iG_M^R(E)[\Gamma_L f(E - \mu_L) + \Gamma_R f(E - \mu_R)]G_M^{R\dagger}(E) \quad (\text{II.49})$$

Où $\mu_{L/R} = \mu \pm eV/2$, $f(x)$ est la fonction de Fermi donnée à une température T.

$$\Sigma_{L/R} = \Sigma_{L/R}(E) \quad (\text{II.50})$$

Et

$$\Gamma_{L/R} = \Gamma_{L/R}(E) \quad (\text{II.51})$$

Notre principale hypothèse sur les électrodes est que l'effet de la polarisation externe induit un rigide déplacement dans la structure électronique, d'où il est facile de voir que:

$$\Sigma_{L/R}(E, V) = \Sigma_{L/R}(E \mp eV/2, V = 0) \quad (\text{II.52})$$

Et par conséquent :

$$\Gamma_{L/R}(E, V) = \Gamma_{L/R}(E \mp eV/2, V = 0) \quad (\text{II.53})$$

En d'autres termes, nous pouvons calculer les self-énergies et les matrices Γ pour une polarisation externe nulle et appliquer un déplacement de $\mp eV/2$ de la structure électronique pour imiter la polarisation externe appliquée.

Enfin $G_M^R(E)$ est donné à nouveau par l'équation (II.38) où nous remplaçons maintenant $\Sigma_{L/R}(E)$ avec $\Sigma_{L/R} = \Sigma_{L/R}(E \pm eV/2)$.

La self-consistent procédure est comme se suit. Tout d'abord une densité de charge initiale est utilisée pour calculer des H_M à partir de l'équation (II.47).

$$n^0(\vec{r}) = \langle \vec{r} | D_M^0 | \vec{r} \rangle \quad (\text{II.54})$$

Puis Γ_L, Γ_R et G_M^R sont calculées à partir des équations (II.52), (II.53) et (II.38). Ces quantités sont utilisées pour calculer $G_M^<$ dans l'équation (II.49), qui est alimenté par l'équation (II.48) pour trouver une nouvelle densité. Ce processus est itéré jusqu'à ce qu'une solution auto-cohérente " **self-consistent** " est obtenue, qui est alors:

$$\text{Max} \| D_M^j - D_M^{j+1} \| < \delta \quad (\text{II.55})$$

Où $\delta \ll 1$ est un paramètre de tolérance.

Enfin, le courant I peut être calculé à l'aide de [97]:

$$I = \frac{e}{h} \int dE \text{Tr} [\Gamma_L G_M^{R\dagger} \Gamma_R G_M^R] (f(E - \mu_L) - f(E - \mu_R)) \quad (\text{II.56})$$

où le terme $\text{Tr} [\Gamma_L G_M^{R\dagger} \Gamma_R G_M^R]$ représente le coefficient de transmission :

$$T(E, V) = \text{Tr} [\Gamma_L G_M^{R\dagger} \Gamma_R G_M^R] \quad (\text{II.57})$$

III Chapitre III

III.1 Introduction

Les propriétés des matériaux structurés en couches fines d'épaisseur nanométriques sont fortement dépendantes des phénomènes d'interfaces.

Nous avons étudié les propriétés structurales, électroniques les matériaux de fer et l'oxyde de magnésium. Théoriquement, il est difficile d'étudier les propriétés structurales qui jouent un rôle majeur dans la détermination de leurs propriétés physiques. Nous allons exposer par la suite les résultats obtenus avec chacune de ces méthodes en comparaison avec les résultats obtenus lors de notre modélisation basée sur une approche DFT.

III.2 Structures du fer et l'oxyde de magnésium

III.2.1 L'oxyde de magnésium

L'oxyde de magnésium MgO est un matériau céramique d'intenses études expérimentales et théorique avec diverses applications industrielles grâce à ces propriétés physiques et en particulier les propriétés optiques. Ce sont des cristaux ioniques possédant des températures de fusion élevées. Il possède une structure cristalline cubique à face centrées type NaCl, constituée de deux sous réseaux cubiques à faces centrées de (Mg) et de (O). Le paramètre de maille est l'énergie de cohésion sont donnée par plusieurs études expérimentales et théorique ($a = 0.421 \text{ \AA}$ [47] et $E_{\text{coh}} = 440 \text{ Kcal/mol}$ [48]). Considéré comme matériau isolant caractérisé par un gap direct est évalué à 8.9 eV.

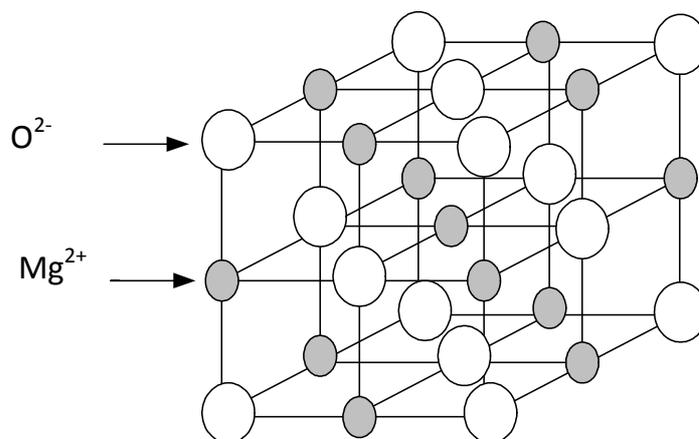


Figure III- 1 : Structure cristalline de MgO (CFC).

III.2.2 Le fer cubique centré

Le fer cristallise dans une structure cubique centrée avec un paramètre de maille $a_{Fe}=0.287$ nm. La Figure III.2 (b) représente les zones de Brillouin tridimensionnelle (3D ZB) et bidimensionnelle (2D ZB) pour la face (001) de la maille cubique centrée avec toutes les directions de haute symétrie. Les niveaux d'énergie quantifiés de chaque atome se transforment en bandes d'énergie permises et interdites lorsque les atomes sont arrangés de manière régulière dans un cristal. La dispersion en énergie des bandes électroniques diffère suivant la direction de propagation de haute symétrie puisque le potentiel perçu par les électrons est anisotrope ; la Figure III-2 (c) montre la structure de bandes du fer le long de ces différentes lignes. On s'intéressera par la suite au transport s'effectuant dans la direction [001], c'est-à-dire perpendiculairement aux plans (001) de la maille cubique. Cette direction correspond à la ligne de haute symétrie Δ , dans la zone de Brillouin 3D et au point Γ dans la zone de Brillouin 2D relative aux plans (001). La structure de bandes pour la direction Δ est représentée dans la partie grisée de la Figure III-2(c).

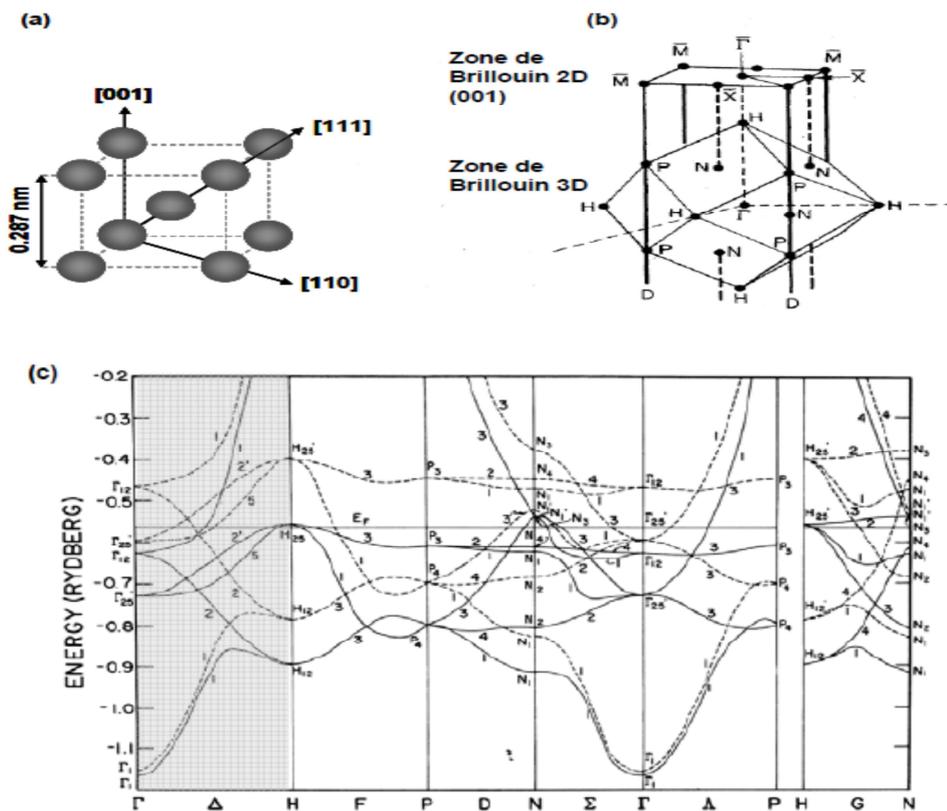


Figure III-1 : (a) Maille du CC de Fe et axes cristallographiques. (b) Zones de Brillouin 3D et 2D pour la face (001) d'une maille CC et directions de haute symétrie. Source. (c) Structure de bandes du Fe le long des lignes de haute symétrie [49].

En ce qui concerne les propriétés magnétiques, la structure cristallographique du Fe lui confère une anisotropie magnétique, c'est-à-dire que, d'un point de vue magnétique, toutes les directions cristallographiques ne sont pas équivalentes. C'est un matériau qui possède une anisotropie magnéto cristalline d'ordre quatre : le fer s'aimante plus facilement selon les axes correspondants aux arêtes du cube de la structure cristallographique. Ce sont les axes dits de facile aimantation et ils correspondent aux directions cristallographiques [001], [010] et [100]. Les autres directions comme [110] ou [111] sont des axes dits difficiles, la direction [111] étant la plus difficile. Dans le cas de nos JTMs, le champ magnétique extérieur est appliqué parallèlement aux plans (001) des couches, on ne fera donc référence désormais qu'aux seules directions [100] pour l'axe facile et [110] pour l'axe difficile.

III.3 Le code utilisé lors de nos calculs (Code SIESTA)

Les méthodes *ab initio* qui sont devenues aujourd'hui un outil de base pour le calcul des propriétés structurales des systèmes les plus complexes qui est basée sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Parmi ces méthodes, on cite la méthode SIESTA. Pour mener à bien les travaux présentés dans ce mémoire, nous avons utilisé cette dernière (SIESTA) qui repose sur la dynamique moléculaire. Elle a été développée par un groupe de chercheurs espagnols à partir de 1995 (P. Ordejon, J. M. Soler, E. Artacho et D. Sanchez-Portal auxquels se sont associés, par la suite, A. Garcia et J. Junquera).

Le code SIESTA partage de nombreuses caractéristiques avec les autres codes utilisant les pseudo-potentiels, cependant, il y a quelques différences qui en font un code mieux adapté aux systèmes comprenant un très grand nombre d'atomes par maille, comme ses initiales l'indiquent bien.

Donc, code SIESTA c'est un code basé sur le formalisme de la DFT, il peut utiliser pour le problème d'échange et corrélations entre électrons et optimisation de la géométrie...etc. Il est basé sur l'approximation de la densité locale (LDA) [50] ainsi que l'approche du gradient généralisé (GGA) [51]. Les électrons de valence de chaque type d'atome sont décrits par des pseudo-potentiels à norme conservée.

La méthode SIESTA utilise aussi les conditions aux limites périodiques dans les trois directions de l'espace et ainsi, les molécules, les chaînes, les défauts, les surfaces et interfaces, sont traités en utilisant la technique de la supercellule. L'une de ses principales caractéristiques réside dans l'implémentation d'algorithmes basés sur la méthode d'ordre N qui permettent l'étude de systèmes pour lesquels le temps de calcul est proportionnel au

nombre d'électrons N du système en question. SIESTA a été utilisé par plusieurs groupes dans le monde, sur une grande variété de systèmes. Il a été utilisé depuis son début en nanosciences surtout pour le calcul de la structure électronique de fullerènes et de nanotubes de carbone, surfaces de liquides et de solides ainsi que pour l'étude des propriétés magnétiques des clusters de Nickel et d'Aluminium.

Alors, l'étude de différentes propriétés physiques (optiques, magnétiques et vibrationnelles) des matériaux avec SIESTA a été introduite récemment. En ce qui concerne notre travail, nous allons, utiliser ce code pour l'étude des propriétés structurale et propriétés électroniques d'une jonction Fe/MgO/Fe.

III.4 Détails des calculs

Dans ce mémoire, les calculs ont été réalisés en utilisant un code appelé SIESTA, ce code est utilisé les paramètres suivants :

- Précision de la description de la structure électronique dans la DFT.
- Fonctionnelle de Harris « HARRIS » (non auto-cohérente).
- Base de développement des orbitales pseudo-atomiques : Double orbitales radiales + orbitales de polarisation « DZP ».
- On régle le potentiel d'échange et de corrélation est traité dans le cadre des approximations suivantes :
 - Approximation locale de densité de type « GGA ».
- Les pseudo-potentiels sont manipulés sur une grille définie dans l'espace réel et dont la finesse est déterminée par un paramètre appelé MeshCutoff. Celui-ci peut être relié à la transformée de Fourier du pseudo-potential par la relation: $\text{MeshCutoff} = 150 \text{ Ry} = (q_{\text{max}})$ de est le vecteur d'onde maximum de l'onde plane dans l'espace réciproque.

III.5 Pseudo-potentiels

Au début du travail de ce mémoire nous commençons par générer de pseudo-potentiels pour les atomes de fer et l'oxygène, magnésium, pseudo-potentiels que nous pensions capables de décrire convenablement les propriétés structurales des jonctions Fe/MgO. La génération de pseudo-potentiels utilisables dans des calculs effectués avec le code SIESTA se fait à l'aide du code ATOM (livré avec le code SIESTA).

Des pseudo-potentiels à norme conservée [52-53-54] sont utilisés sous la forme purement non-locale du formalisme de Kleinman-Bylander [55] pour décrire les états de cœur. Les principaux paramètres à prendre en compte lors de la création d'un pseudo-potentiel sont les rayons de coupure des différentes orbitales atomiques. Ces rayons de coupure ($r_c(s)$, $r_c(p)$, $r_c(d)$...) permettent de définir la frontière entre la « douceur » et la transférabilité du pseudo-potentiel. Plus r_c est grand et plus le pseudo-potentiel est « doux », inversement plus r_c est petit et plus le pseudo-potentiel est « dur ».

III.5.1 Les orbitales pseudo-atomiques :

Dans le cadre de l'utilisation de SIESTA, la fonction d'onde du système est développée sur une base localisée par une combinaison linéaire d'orbitales atomiques. En effet l'utilisation des pseudo-potentiels sous la forme présentée précédemment impose un choix de base d'orbitales de type pseudo-atomique. Les orbitales pseudo-atomiques sont strictement confinées et par conséquent nulles au-delà d'un certain rayon noté r_c . Les orbitales sont décrites suivant une méthode dérivée [56] de la méthode de séparation des orbitales de valence ou « split-valence » [57] usuelle en chimie quantique, on parle alors de bases d'orbitales multiples. Les bases standard disponibles avec le code sont les bases simples et doubles sur lesquelles peuvent se greffer des orbitales de polarisation en rajoutant à la couche de valence des fonctions de nombre quantique supérieur. La base se déplace avec l'atome central étudié, ce qui n'est pas le cas en ondes planes. Il faut alors compenser cet effet (on parle de force de Pulay) [58].

III.6 Test de convergence:

III.6.1 Le fer Fe et l'oxyde de magnésium MgO

Pour obtenir les meilleures valeurs de paramètre MeshCutoff et le nombre de K-points, on fixe la valeur de K-points égale à 15 \AA^{-1} et on varie les valeurs de MeshCutoff dans 5 à 150 Ryd, pour chaque valeur on calcule l'énergie totale de système et on trace la courbe cette dernière représente les variations de l'énergie totale du système en fonction de MeshCutoff. Cette courbe est stable dans les limites de 100 Ryd.

Pour détermination du nombre de K-points, on fixe les valeurs de MeshCutoff égale à 150 Ryd et on varie les valeurs de K-points dans 1 à 15 \AA^{-1} , pour chaque valeur on calcule l'énergie totale du système et trace la courbe, cette courbe représente les variations de l'énergie totale en fonction de K-points. On observe la stabilité de la courbe dans les limites de 15 \AA^{-1} . Les paramètres optimisés que nous allons utiliser dans notre calcul sont donnés dans le Tableau III-1.

Les rayons de coupure	Les atomes		
	Mg	O	Fe
rc(s)	2.59	1.14	2
rc(p)	2.59	1.14	2
rc(d)	2.59	1.14	2
rc(f)	2.59	1.48	2
Méthode de calcul de l'échange-corrélation de pseudo-potentiel	GGA		
K-points	15		
Energie de MeshCutoff (Ryd)	100		
Configuration électronique	Mg : $3s^2$ O : $2s^2 2p^4$ Fe : $3d^6 4s^2$		

Tableau III-1: Choix des différents paramètres inclus dans le calcul pour l'oxyde de magnésium et le fer.

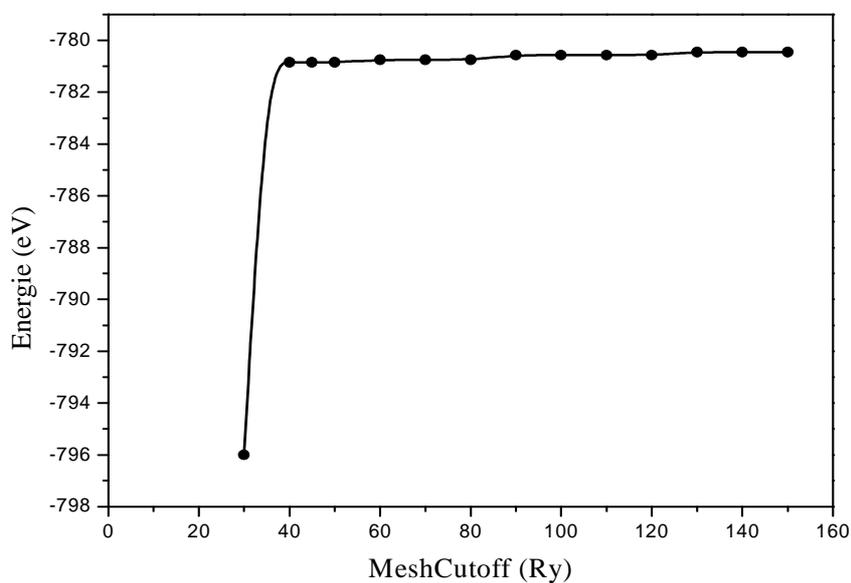


Figure III-3 : Convergence de l'énergie totale du fer en fonction de l'énergie de MeshCutoff en utilisant la GGA.

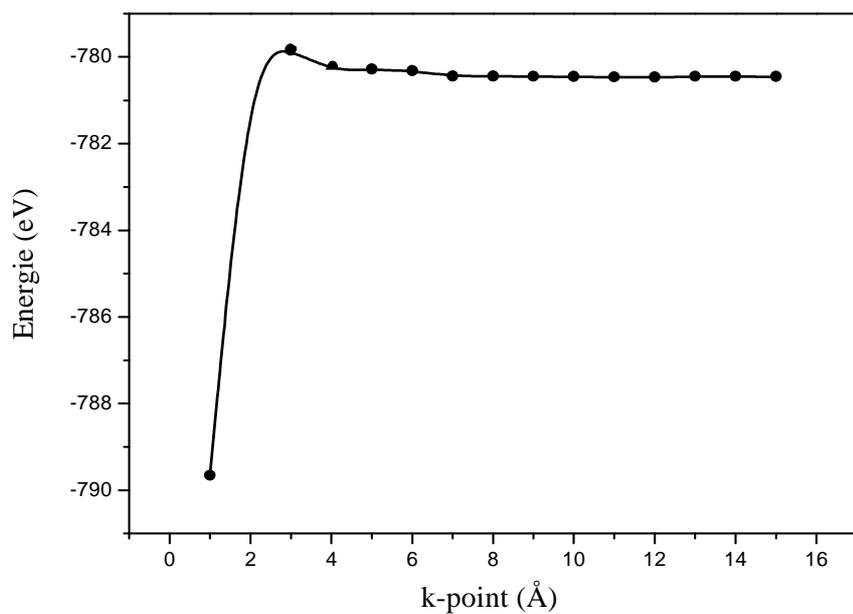


Figure III-4 : Convergence de l'énergie totale du fer en fonction du nombre de K-points dans la zone réduite de Brillouin en utilisant la GGA.

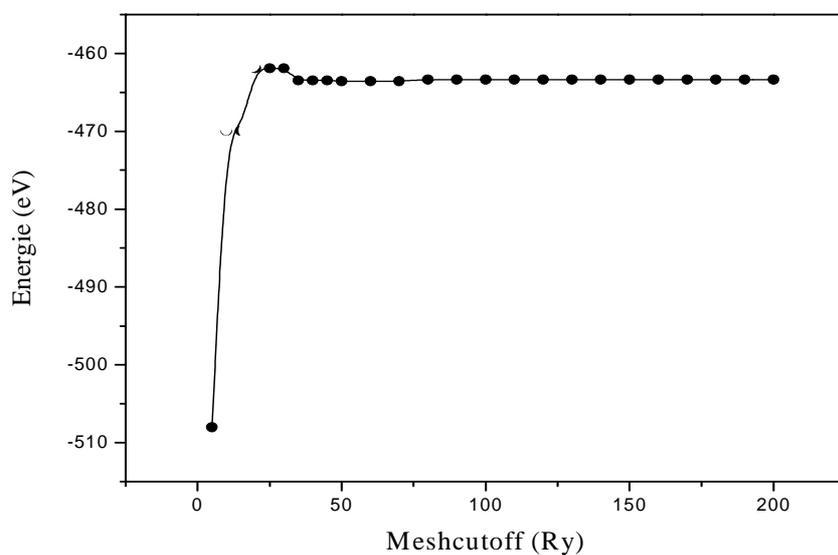


Figure III-5 : Convergence de l'énergie totale de l'oxyde de magnésium MgO en fonction de l'énergie de MeshCutoff en utilisant la GGA.

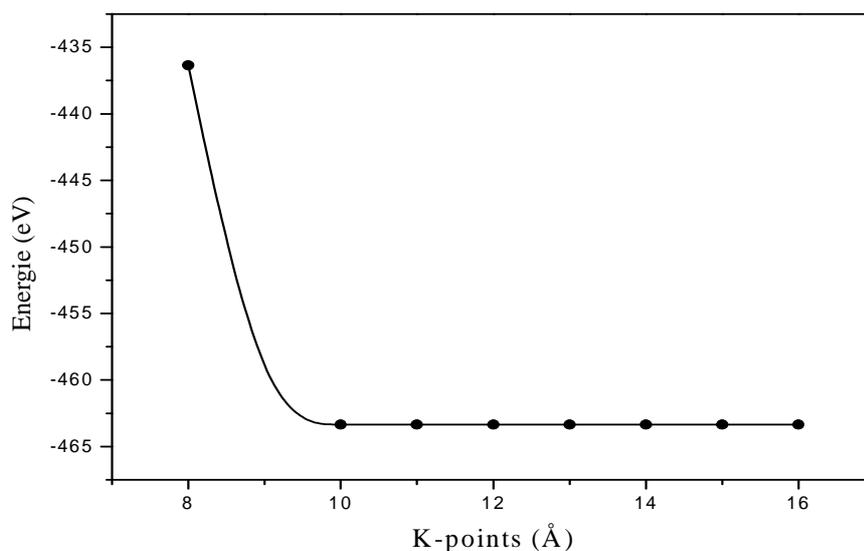


Figure III-6 : Convergence de l'énergie totale de l'oxyde de magnésium MgO en fonction du nombre de K-points dans la zone réduite de Brillouin en utilisant la GGA.

III.7 Résultats et discussions

III.7.1 Propriétés structurales

L'étude des propriétés structurales du matériau étudié est essentielle pour déterminer les paramètres de structure du matériau à l'équilibre statique à savoir les paramètres de maille.

Cette étude nous permet de prédire la phase du matériau la plus stable à travers les valeurs de l'énergie à l'état d'équilibre, les calculs sont effectués en utilisant la méthode pseudo-potentiel décrit précédemment avec l'approximation GGA.

III.7.1.1 Détermination des paramètres de maille de fer et l'oxyde de magnésium

III.7.1.1.1 Le fer (Fe)

La technique d'optimisation consiste à dilater et comprimer tout le domaine de système étudié et à calculer l'énergie totale. Nous avons représenté l'énergie totale en fonction des paramètres de maille et nous avons déterminé le paramètre de maille de fer.

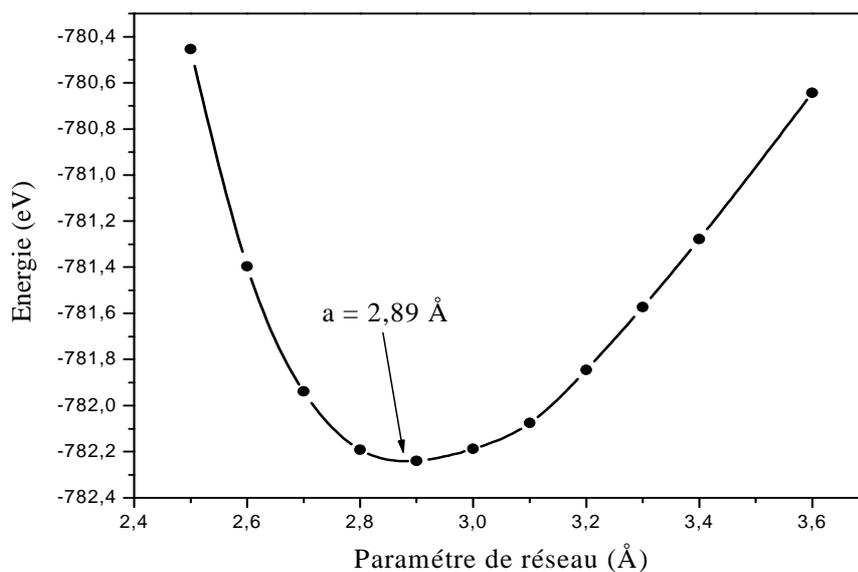


Figure III-7 : La variation de l'énergie totale de fer en fonction de paramètre de maille.

Nous donnons également dans le tableau, les paramètres de maille d'équilibre correspondant au fer, comparé à d'autres résultats. Le résultat de code SIESTA est proche de la mesure expérimentale.

	Expérimentale. [49]	Nos calculs SIESTA en utilisant GGA
Paramètre de maille du Fe (Å)	2.87	2.89

Tableau III-2 : Paramètre de maille du fer, calculé avec le code SIESTA en comparaison avec résultat expérimental.

III.7.1.1.2L'oxyde de magnésium (MgO)

Nous avons représenté l'énergie totale en fonction des paramètres de maille et déterminé le paramètre de maille de l'oxyde de magnésium. Le code SIESTA est donne une valeur proche de résultat expérimentale.

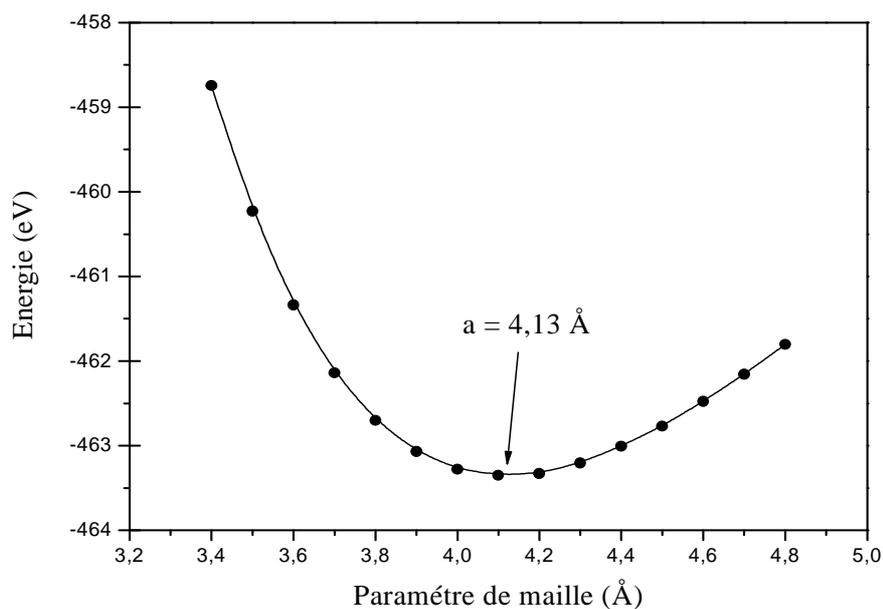


Figure III-8 : La variation de l'énergie totale de l'oxyde de magnésium MgO en fonction de paramètre de maille.

	Expérimentale. [47]	Nos calculs SIESTA en utilisant GGA
Paramètre de maille du MgO (Å)	4.12	4.13

Tableau III-3 : Paramètre de maille de l'oxyde de magnésium MgO, calculé avec le code SIESTA en comparaison avec résultat expérimental.

III.7.2 Propriétés électroniques

L'importance des propriétés électroniques d'un matériau réside dans le fait qu'elles nous permettent d'analyser et de comprendre la nature de liaisons qui se forment entre les différents éléments du matériau. Pour l'étude des propriétés électroniques de notre matériau nous avons utilisés la méthode SIESTA avec l'approximation GGA.

III.7.2.1 Structures de bandes d'énergie du MgO

Les bandes d'énergie donnent l'énergie possible d'un électron en fonction du vecteur d'onde, ces bandes sont donc représentées dans l'espace réciproque, et pour simplifier, seules les

directions de plus hautes symétries dans la première zone de Brillouin sont traitées. La structure de bande électronique du l'oxyde de magnésium en utilisant un calcul relativiste et la proche GGA est représenté dans la Figure III.9.

III.7.2.2 Densités d'état du MgO

Les conditions périodiques de Born-Von Karman limitent le nombre d'états k permis en fonction des dimensions du cristal considéré. L'espace défini par les vecteurs k associés aux vibrations permises d'un cristal fini est donc un espace discret auquel on peut associer une densité d'états $D(k)$ correspondant au nombre d'états permis par unité de volume. Pour déterminer la nature de la structure électronique des bandes, nous avons calculé les densités d'états du l'oxyde de magnésium MgO.

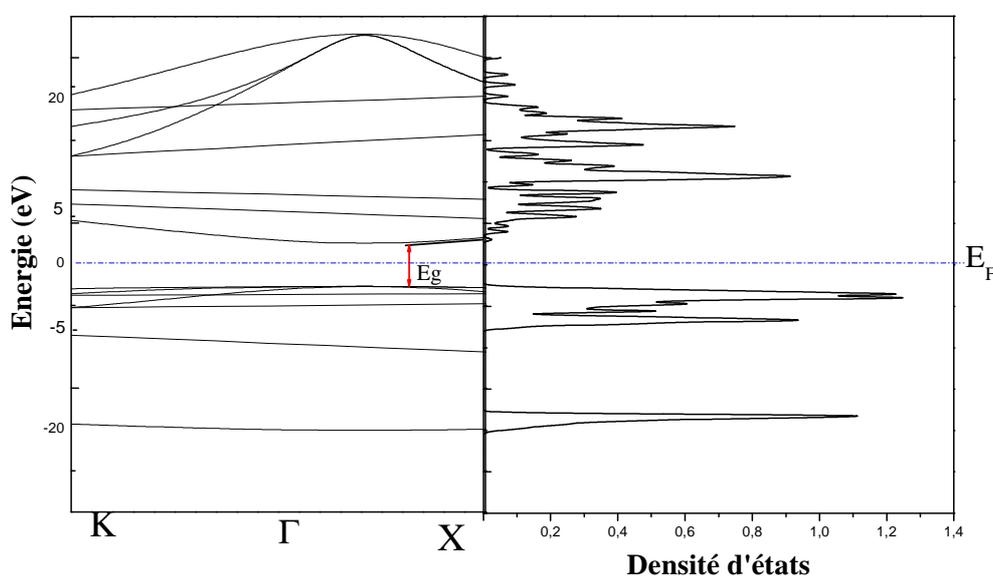


Figure III-9 : Structure de bandes et densité d'état totale de l'oxyde de magnésium MgO.

Sur la Figure III.9 à gauche, nous avons représenté la structure de bandes d'un oxyde de magnésium MgO. Dans ce cas, la largeur de la bande interdite (gap) est de 5.6 eV. En remarque que l'oxyde de magnésium est un isolant à gap direct.

III.7.2.3 Structures de bandes d'énergie du Fe

Le Fe est un élément de numéro atomique $Z=26$. Sa structure électronique est $[Ar] 3d^6 4s^2$. Les orbitales atomiques du Fe sont de type s, p et d. Ces bandes sont donc représentées dans l'espace réciproque, et pour simplifier, seules les directions de plus hautes symétries dans la première Zone de Brillouin sont traitées. La figure III.10 donne les relations de dispersion selon les axes cristallographiques principaux.

La relation de dispersion de chacune des bandes est calculée par le code SIESTA pour déterminer les structures électroniques. Ce code repose sur la théorie de la fonctionnel de la densité. Les fonctions d'ondes solutions de l'équation de Kohn-Sham sont cherchées suivant différentes méthodes.

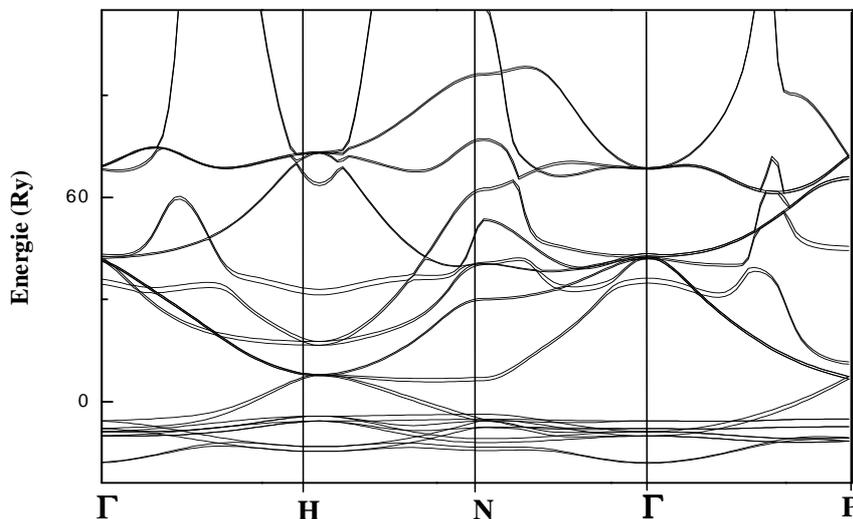


Figure III-10 : Structure de bandes du fer (Fe).

III.7.2.4 Densités d'état du Fe

Les densités d'états sont déduites des relations de dispersion trouvées pour toutes les directions possibles de l'espace réciproque. La figure suivante représente les densités d'états du spin up et spin down, en remarque une différence de la densité d'état des spins up et spin down parce le fer est matériau ferromagnétique et les spins polarisé.

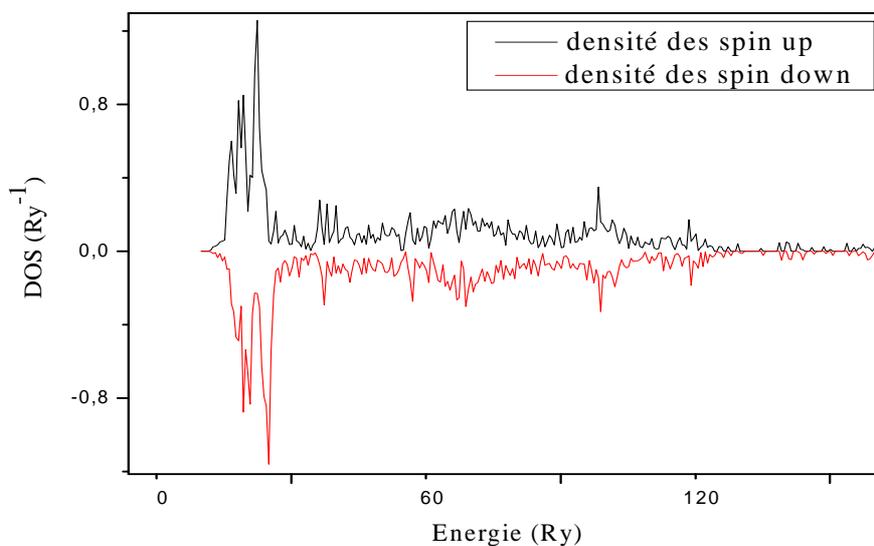


Figure III-11: La densité d'état du fer du spin up et spin down.

III.8 Mise en place de la jonction tunnel Fe / MgO

La constante de réseau de Fe en équilibre calculée dans la section précédente est utilisée pour construire la cellule d'électrode, après quoi une géométrie de la région centrale initiale est construite à partir de données expérimentales. La région centrale comprend la barrière MgO et un certain nombre de couches d'électrodes utilisées pour écranter les électrodes de la barrière. La géométrie est optimisée et la région centrale résultante est prise en sandwich entre deux électrodes pour former le système à deux sondes.

III.8.1 Définition de la géométrie de l'électrode

Dans la section III.7.1.1, la constante de réseau en équilibre de Fe a été calculé $a=2,89\text{\AA}$. Sur la base de ce résultat, la cellule d'électrode montrée à la Figure III-12 est construite. L'électrode comprend six atomes de Fe, chacun situé aux points de symétrie d'un réseau de Bravais cubique centré, et le cristal est orienté avec les surfaces (001) alignées parallèlement au plan xy.

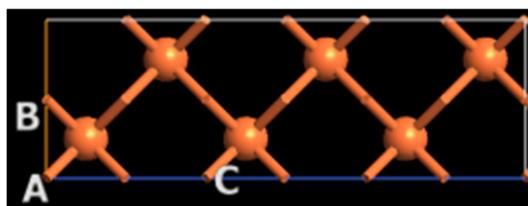


Figure III-12 : Cellule électrode utilisée pour la mise en place du système Fe / MgO. La géométrie de l'électrode est configurée en fonction de la constante de réseau équilibrée calculée de Fe.

Lors de la réalisation de calculs d'électrodes, les atomes dans une électrode n'interagissent qu'avec des atomes dans les cellules plus proches voisines (en raison des détails spécifiques du modèle [59]). Afin de permettre des interactions avec des atomes plus loin que les plus proches voisins, plusieurs atomes doivent donc être inclus dans la cellule d'électrode. Le nombre d'atomes à utiliser va augmenter le temps de calcul d'une manière considérable. Afin de minimiser se temps nous utilisons (SingleZetaPolarized) pour les orbitales de la base des atomes de Fe.

III.8.2 Définition de la géométrie initiale de la région centrale

Dans la figure III-13, la géométrie initiale de la région centrale est construite en utilisant des données expérimentales trouvées à partir de diffraction des rayons X [60]. Il comprend cinq

couches atomiques de MgO et sept couches atomiques de Fe sont incluses sur le côté gauche et droite de la barrière utilisées pour écranter les électrodes de la barrière.

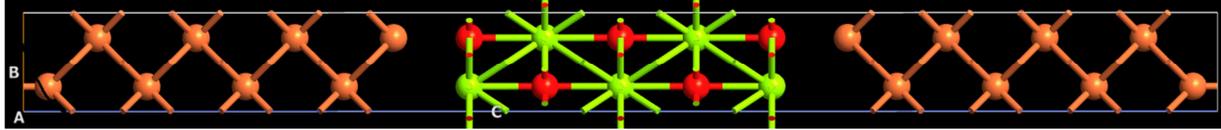


Figure III-13 : région centrale utilisée pour la mise en place du système Fe / MgO. La géométrie de la région centrale est optimisée avant utilisation

III.8.3 Optimisation de la géométrie de la région centrale

La géométrie initiale de la région centrale est optimisée en volume à l'aide de l'algorithme Quasi-Newton [61]. Les atomes de Mg et O dans la barrière et les six atomes de Fe les plus proches de ceux-ci sont autorisés à se déplacer dans la direction perpendiculaire aux interfaces, tandis que les atomes de Fe sont maintenus fixés. Les coordonnées des atomes de Fe dans le plan des interfaces sont maintenues aux valeurs d'équilibre calculée précédemment. En outre, la longueur de la cellule de la région centrale dans la direction perpendiculaire est "compressée" par rapport à la configuration initiale par étapes de 0.2231 Å, ce qui signifie que les distances entre les couches qui ne sont pas fixées diminuent de 1% à 8% par étapes de 1%.

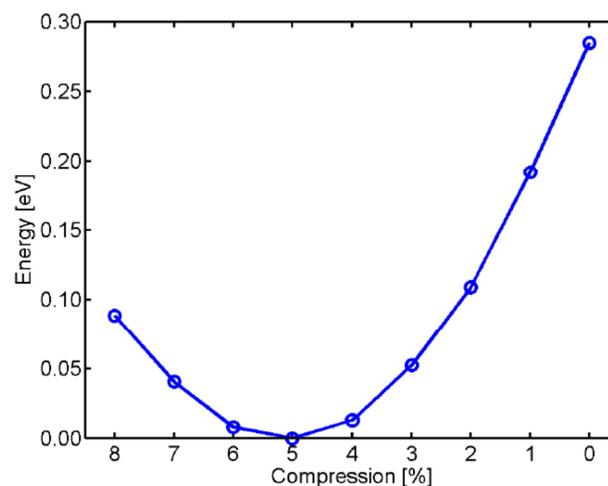


Figure III-14 : Energie après chaque étape d'optimisation pour différentes longueurs de cellules dans le système Fe / MgO.

III.8.4 Propriétés structurales de système

Les propriétés structurales résultant des optimisations sont résumées dans le tableau III-4. La distance entre les atomes Mg et O dans les couches les plus externes. Ces propriétés structurales sont comparées aux résultats de la littérature pour le système Fe/MgO dans le tableau III-4 elles sont en accord avec les résultats rapportés par Butler et al. [62], Waldron et al.[63], et Wortmann et al. [64]. On a trouvé une distance Fe-O de $2,17 \text{ \AA}$. En accord avec les deux références [62-63], nous avons trouvé un déplacement (vers les interfaces) des atomes de Mg les plus proches des interfaces de $0,07 \text{ \AA}$ par rapport aux atomes de O. Le déplacement des atomes de Mg dans la deuxième et la quatrième couche est beaucoup plus petit ($0,01 \text{ \AA}$, loin des interfaces), et il n'y a pas de déplacement dans la couche centrale. Conformément aux résultats rapportés par Butler et al. Nous avons trouvé que la distance entre les couches de Fe les plus proches des interfaces diminue d'environ 2% par rapport à la deuxième et troisième couche de Fe de la barrière, qui restent très proches de la valeur de volume.

	d_1	d_2	d_3
<i>Fe/MgO</i>	-2%	2.17 \AA	$+0.07 \text{ \AA}$

Tableau III-4: Principaux paramètres structuraux pour le système considéré dans ce travail

(voir le texte). d_1 est la distance entre les deux couches d'électrode la plus proche de la barrière donnée en variation pourcentage par rapport à la distance de volume égale à $2,795 \text{ \AA}$.

d_2 est la distance entre l'électrode la plus proche et les couches d'oxygène. d_3 est le déplacement des atomes de Mg les plus externes vers les électrodes.

III.8.5 Mécanismes de tunnels dans les jonctions de tunnel à base de MgO

Nous discutons des propriétés de transport de spin à zéro voltage de jonction magnétique tunnel qui a été configurée dans le chapitre précédent. Le système est modélisé par une barrière isolante de MgO de cinq couches intercalées entre deux électrodes de Fe ferromagnétiques. La barrière MgO a une structure cristalline de type NaCl et leurs plans (001) interfèrent avec les plans (001) des électrodes Fe, qui ont une structure cubique centrée. La direction [001] dans les électrodes est parallèle à la direction [110] dans les barrières. Le système est représenté dans la Figure III-15. Nous nous concentrons sur la compréhension qualitative de mécanisme de tunnel dans le système en mentionnant également les résultats quantitatifs des calculs de conductance et les valeurs résultantes du TMR.

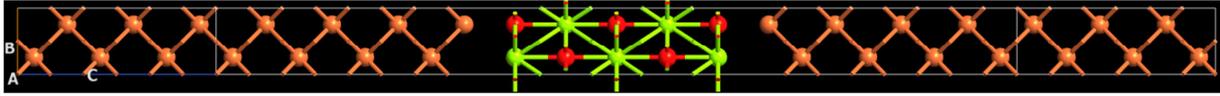


Figure III-15: Les trois jonctions tunnel magnétiques étudiées dans ce travail. Les atomes de Fe sont représentés par des sphères marron, les atomes de Co sont en violets, les atomes de Mg sont en verts et les atomes d'O sont en rouges.

Nous discutons la TMR dite « optimiste », qui est défini par $(I_P - I_{AP})/I_{AP}$, par opposition au TMR « pessimiste », qui est défini par $(I_P - I_{AP})/(I_P + I_{AP})$, Puisque la plupart des études expérimentales et numériques ont utilisés cette quantité. Le TMR "optimiste" calculé est de plusieurs milliers pour cent dans les études numériques [62], [65]. Pour des raisons historiques, le TMR "optimiste" est mesuré, calculé et discuté dans la littérature, et nous utilisons la définition conventionnelle pour nous assurer que nos résultats peuvent être comparés aux autres résultats de littérature.

III.8.6 Spin parallèle

Nous effectuerons dans la suite un calcul auto-cohérent NEGF-DFT pour le cas de polarisation de spin parallèle des atomes de fer dans les deux parties gauche et droite de la jonction. Nous calculerons également le spectre de transmission en fonction du vecteur k parallèle à la direction du transport. Les paramètres utilisés pour faire ce calcul sont :

- le potentiel exchange-correlation est SGGA pour effectuer un calcul GGA polarisé à l'aide de la fonctionnalité PBE. On a Augmenté la température des électrons à 1200 Kelvin, pour faciliter la convergence auto-cohérente. On a Utilisé une grille de point k de $7 \times 7 \times 100$ et sélectionnez la base SingleZetaPolarized pour Fe et DoubleZetaPolarized pour les atomes de Mg et O. on a choisi comme état initial un spin égale 1 (up) pour les atomes de Fe et un spin égale 0 (non polarisé) pour les atomes de Mg et O. pour le spectre de transmission: nous allons calculer le coefficient de transmission uniquement au niveau de Fermi juste dans un seul point d'énergie, pour gagner du temps.

En ce qui concerne les résultats du calcul, on a trouvé pour le coefficient de transmission du spin-up (majoritaire) $T^\uparrow(E_F) = 1.06141 \times 10^{-4}$ et le coefficient de transmission du spin-down (minorité) $T^\downarrow(E_F) = 7.21432 \times 10^{-6}$. Il ressort clairement que la transmission spin-down (minorité) est fortement supprimée, alors que le coefficient de transmission du spin-up (majoritaire) indique un effet tunnel régulier.

III.8.7 Spin anti-parallèle

Nous passons maintenant au cas de l'alignement antiparallèles des spins dans les parties de fer gauche et droite de la jonction Fe | MgO | Fe. Tous les paramètres de la configuration parallèle seront utilisés dans l'état antiparallèles en changeant le spin initial des atomes de fer sur le côté droit de la jonction à -1 (spin-down). Cela va polariser la jonction en antiparallèles.

Dans ce cas, on a trouvé que le coefficient de transmission du spin-up (majoritaire) $T^\uparrow(E_F) = 1.09042 \times 10^{-6}$ et le coefficient de transmission du spin-down (minorité) $T^\downarrow(E_F) = 1.08732 \times 10^{-6}$ qui sont identiques en raison de la symétrie du miroir du système.

En raison du spin antisymétrique, les électrons de spin-up dans l'électrode gauche et les électrons de spin-down dans l'électrode droite sont à la fois des canaux majoritaires. En raison de la symétrie miroir du dispositif, la propagation des canaux de spin-up majoritaires gauche dans les canaux minoritaires droits (le premier composant de spin du coefficient de transmission) et la propagation des canaux de spin-down majoritaires droite dans les canaux minoritaires gauche (le deuxième composant de spin du coefficient de transmission) sont identiques. Ainsi, pour les dispositifs symétriques, l'équivalence des deux canaux de spin est un paramètre important pour les calculs antisymétriques à un voltage nul.

III.8.8 Magnétorésistance tunnel

La magnétorésistance tunnel (TMR) est définie comme :

$$TMR = (G_P - G_{AP})/G_{AP}$$

Où G_P est la conductance à travers la jonction avec l'alignement de spin parallèle et G_{AP} la conductance pour l'alignement de spin antiparallèle. Les conductances peuvent être calculées à partir de leurs spectres de transmission respectifs

La conductance pour un voltage nul a été calculée pour la jonction magnétique tunnel et les résultats de nos calculs ainsi que les valeurs expérimentales du TMR sont répertoriés dans le tableau III-5. Ce tableau montre que la conductance est beaucoup plus grande dans la configuration d'aimantation parallèle que dans la configuration anti-parallèle, et que le TMR est donc très grande. Nous soulignons que la conductance dans la configuration antiparallèle, bien qu'elle est petite, et de valeur finie donc elle est mesurée régulièrement dans les expériences. Conformément à d'autres études [62], [65], les résultats numériques sont significativement plus importants que les résultats expérimentaux, ce qui est généralement

attribué à la présence de défauts dans la barrière et / ou les interfaces des systèmes expérimentaux [66].

III.8.9 Tendances de la conductance de jonction tunnel.

Une grille de k-points de 151×151 a été utilisée pour échantillonner la zone de Brillouin bidimensionnelle. La Figure III-16 montre la conductance dans le système Fe/MgO calculé en utilisant différentes résolutions de points k. La figure montre que la conductance dans la configuration parallèle converge pour un nombre assez petit de points k alors que la configuration anti-parallèle nécessite un nombre légèrement supérieur de points k. Nous estimons que l'utilisation de 151×151 k-points donne une précision numérique de 2% dans la conductance calculée.

	G_P	G_{AP}	TMR	TMR(exp)
Fe/MgO	239 mS/ μm^2	3.23 mS/ μm^2	$\approx 7300\%$	247%[67]

Tableau III-5: Conductance sous un voltage nul avec une aimantation parallèle (G_P) et anti-parallèle (G_{AP}) des électrodes ainsi que la valeur calculée du TMR pour la jonction magnétiques tunnel. Les conductances sont en unités de mS/ μm^2 et les valeurs de TMR expérimentales sont mesurées à basse température. Les dispositifs expérimentaux ont approximativement deux fois plus de couches que les systèmes décrits dans ce travail.

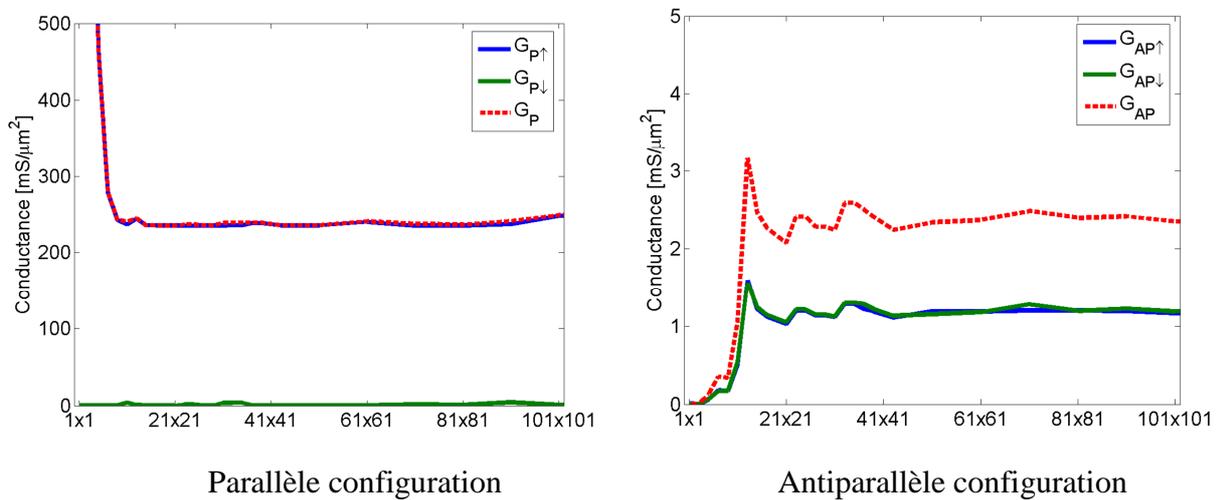


Figure III-16: la conductance pour un voltage nul dans les configurations parallèle et antiparallèles du système Fe / MgO pour différentes résolutions d'échantillonnage k points. La zone de Brillouin bidimensionnelle est échantillonnée en utilisant $N \times N$ points k, où N est le nombre de points k spécifiés.

La Figure III-16 montre que la conductance dans le canal de spin majoritaire ($G_{P\uparrow}$) dans la configuration parallèle du système Fe/MgO est beaucoup plus grande que dans le canal de spin minoritaire ($G_{P\downarrow}$). La conductance dans les deux canaux ($G_{P\uparrow}$ et $G_{P\downarrow}$) est identique dans la configuration anti-parallèle.

Les observations ci-dessous sont résumées comme suit:

- $G_P \gg G_{AP}$
- $G_{P\uparrow} \gg G_{P\downarrow}$
- $G_{AP\uparrow} \gg G_{AP\downarrow}$

Conclusion générale

Les jonctions tunnel Fe/MgO/Fe sont très étudiées car elles présentent de fortes valeurs de magnétorésistance par effet tunnel (TMR).

Dans la première partie de ce travail, nous avons décrit certains aspects de cette technologie qui est essentiellement basée sur la superposition de deux couches ferromagnétiques séparées par une couche isolante dont l'épaisseur est de l'ordre du nanomètre. Cette phénomène est appelé magnétorésistance tunnel (TMR). Nous avons aussi présenté différents modèles pour décrire le comportement magnétorésistif d'une jonction tunnel tels que le modèle des électrons libres de Fermi, le modèle de Jullière, celui de Bardeen et enfin le modèle de Slonczewski. Nous avons conclu que ces modèles prédisent des résultats assez voisins de sorte qu'à l'heure actuelle, les expériences ne permettent pas définitivement d'en écarter certains.

Le deuxième partie est consacré aux fondements de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) avec les deux approximations la densité locale (LDA) et le gradient généralisé (GGA). L'objectif principal de cette théorie est de remplacer la fonction d'onde multiélectronique par la densité électronique en tant que quantité de base pour les calculs.

Dans la troisième partie de ce travail, nous avons présentés une étude sur les propriétés structurales et électroniques des matériaux. Il a été réalisé en utilisant le code SIESTA basé sur la Théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT). Dans cette méthode de calcul les électrons de cour sont traités par des pseudo-potentiels.

Dans ce travail, nous avons décrit comment nous avons mis en place et optimisé la géométrie de la jonctions magnétique tunnel et on a étudié leur structure et leurs propriétés magnétiques.

Les résultats d'optimisation pour le système Fe / MgO sont cohérents avec ceux obtenus par Butler et al [62]. on constate que la distance entre l'atome de l'électrode de surface et l'atome de surface O est d'environ 2,17 Å. La distance entre les couches d'électrode la plus proche de la barrière est légèrement différente de celle du volume.

La conductance du tunnel (G) est calculée au niveau de fermi dans un seul point est trouvé très grande par rapport à la valeur expérimentale et ça peut être attribué à la structure

Conclusion générale

de notre jonction qui été parfaite et dépourvu de toutes impuretés. Indiquée dans le tableau III-5 ainsi que les valeurs calculées et expérimentales de la magnétorésistance tunnel (TMR).

Les observations pour la conductance dans les configurations antiparallèles parallèles sont résumées comme suit:

- $G_P \gg G_{AP}$
- $G_{P\uparrow} \gg G_{P\downarrow}$
- $G_{AP\uparrow} \gg G_{AP\downarrow}$

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Thomson, W. Proceedings of the Royal Society of London 8, 546 (1856).
- [2] Mott, N. H. Proceedings of the Royal Society A 153, 699 (1936).
- [3] Thompson, D., Romankiw, L., and Mayadas, A. IEEE Transactions on Magnetics 11,1039 (1975).
- [4] McGuire, T. R. and Potter, R. I. IEEE Transactions on Magnetics 11, 1018 (1975).
- [5] Tedrow, P. M. and Meservey, R. Physical Review Letters 26, 192 (1971).
- [6] Jullière, M. Physical Letters 54A, 225 (1975).
- [7] Jullière, « Tunneling between ferromagnetic films », Phys. Lett., 54A, p225, (1975).
- [8] A. Fert, I.A. Campbell, « Electrical resistivity of ferromagnetic nickel and iron based alloys », J. Phys. F : Metal Phys., 6, p849, (1976).
- [9] C.V. Tiusan, Thèse de Doctorat européen « Magnétisme et transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques. Utilisation du transport tunnel comme une sonde micromagnétique », Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2000).
- [10] T. Dimopoulos, Thèse de Doctorat « Transport polarisé en spin dans les jonctions tunnel magnétiques : le rôle des interfaces métal/oxyde dans le processus tunnel », Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2002).
- [11] Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunnelling barrier J. C. Slonczewski, 1989.
- [12] Bar-PRL-61 J. Bardeen, « Tunneling from a many-particle point of view », Phys. Rev. Lett., 6, p57, (1961).
- [13] Inverse Tunnel Magnetoresistance in $\text{Co}_y\text{SrTiO}_3\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$: New Ideas on Spin-Polarized Tunneling J. M. De Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J. P. Contour, R. Lyonnet, F. Montaigne, P. Seneor, et A. Vaurès Phys. Rev. Lett. 82, 4288 (1999).
- [14] M. Born et R. Oppenheimer , Zur Quantentheorie der Molekeln>, dans Annalen der Physik, 389(20),P.457-484,(1927
- [15] D.Singh, Planes waves, pseudopotentiels and the LAPW methode, (1994).
- [16] W.Kohn, Rev.Mod.Phys, 71, 1253 (1999)
- [17] P.Hohenberg and W.Kohn, Phys.Rev.B 136,B864 (1964).
- [18] Klaus Capelle, "A bird's-eye view of density-functional theory." Dans Braz.J.Phys,N 4A, 36, p.1318-1343,(2006).
- [19] J.C Slater, Phys.Rev.81, 385 (1951).

- [20] R.M.Dreizler and J.da Provincia, Density Functional Methods in Physics (plenum, new York) (1985)
- [21] E.Wingner, Phys.Rev .46, 1001 (1934).
- [22] D.M.Ceperley and B.J.Alder, Phys.Rev.Lett.45, 566(1980).
- [23] J.P.Perdew and A.Zunger, Phys.Rev.B23, 5048 (1981).
- [24] W.Kohn and L.JSham, Phys.Rev.140, A1133 (1965).
- [25] L.Hedin and B.Lundqvist, J.Phys.C 4, 2064 (1971).
- [26] J.P.Perdew and Y.Wang, Phys.Rev.B45, 13244(1992).
- [27] J.P.perdew, J.A.Chevary, S.H.Vosko, K.A.Jackson, M.R.Pederson, D.J.Singh, and C.Fiolhais, Phys.Rev.B 46,6671(1992)
- [28] J.P.Perdew, S.Burke and M.ERNzerhof, Phys.Rev.Lett.77, 3865 (1996).
- [29] A.D.Becke, Phys.Rev A,38,6,3098,1(988)
- [30] J.P.Perdew, K.Burke et Y.Wang,Phys.Rev.B,54(23),16533-16539,(1996).
- [31] C.Adamo et V.Barone,J.Chem.Phys,108,664,(1998).
- [32] J.P.Perdew et Y.Wang, Phys.Rev.B,33,12,8800-8802,(1986).
- [33] J.P.Perdew, K.Burke, et M. Ernzerhof, Phys.Rev.Lett, 77,18,3865-3868,(1996).
- [34] B.G.Johson,P.M.W.Gill and J.A.Pople,J.Chem.Phys.98,5612 (1993).
- [35] E. Artacho, Sanchez-Portal D., Ordejon, A. Garcia, and J. M. Soler. Phys. Stat. Sol. b, 215(1) : 809-817 (1999).
- [36] D. R. Hamann, M. Schluter, and C. Chiang. Phys. Rev. Lett., 43(20) : 1494-1497 (1979).
- [37] G. B. Bachelet, N. E. Christensen, Phys. Rev. B31, 879 (1985).
- [38] P. Pulay : Ab initio calculation of force constants and equilibrium geometries in polyatomic molecules. Molecular Physics, 17(2) : 197-204, 1969.
- [40] G. B. Bachelet, D. R. Hamann, and M. Schluter. Phys. Rev. B, 26(8) : 4199-4228 (1982).
- [41] N. Troullier and J. L. Martins. Phys. Rev. B, 43(3) : 1993-2006 (1991).
- [42] L. Kleinman and D. M. Bylander. Phys. Rev. Lett., 140(20) : 1425-1428 (1982).
- [43] S. Huzinaga, J. Andzelm, M. Klobukowski, E. Radzio-Andzelm, Y. Sakai, and H. Tatewaki.
- [44] F. D. Murnaghan, Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 30, 5390 (1944).
- [45] P. Dufek, P. Blaha, K. Schwarz, phys. Rev. B50, 7279 (1994).
- [46] X. Q. Shi, X. H. Zheng, Z.X. Dai, Y. Wang, Z. Zheng, J. Phys. Chem. B 109 (2005) 3334.

- [47] K. J. CHANG and M.L. COHEN Phys. Rev. B 30 4774 (1984).
- [48] A. J. COHEN and R. G. GORDON Phys. Rev. B14, 4593 (1976).
- [49] J. Callaway, C.S. Wang. Energy bands in ferromagnetic iron. Physical Review B 16, 2095 (1977)
- [50] J.P. Perdew and A. Zunger. Self-interaction correction to density functional approximation for many-electron systems. *Phys. Rev. B*, 23 : 5048-5079, 1981.
- [51] J.P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof. Generalized gradient approximation made simple. *Phys. Rev. Lett.* 77: 3865-3868, 1996.
- [52] D. R. Hamann, M. Schluter, and C. Chiang. *Phys. Rev. Lett.*, 43(20) : 1494-1497 (1979).
- [53] G. B. Bachelet, D. R. Hamann, and M. Schluter. *Phys. Rev. B*, 26(8) : 4199-4228 (1982).
- [54] N. Troullior and J. L. Martins. *Phys. Rev. B*, 43(3) : 1993-2006 (1991).
- [55] L. Kleinman and D. M. Bylander. *Phys. Rev. Lett.*, 48(20) : 1425-1428 (1982).
- [56] E. Artacho, Sánchez-Portal D., Ordejon, A. Garcia, and J. M. Soler. *Phys. Stat. Sol. b*, 215(1) : 809-817 (1999).
- [57] S. Huzinaga, J. Andzelm, M. Klobukowski, E. Radzio-Andzelm, Y. Sakai, and H. Tatewaki.
- [58] P. Pulay : Ab initio calculation of force constants and equilibrium geometries in polyatomic.
- [59] Ab initio modeling of quantum transport properties of molecular electronic devices by Jeremy Taylor, Hong Guo, and Jian Wang *Physical Review B*, Volume 63, June 2001.
- [60] Surface x-ray diffraction analysis of the MgO/Fe(001) interface: Evidence for an FeO layer by H. L. Meyerheim, R. Popescu, N. Jedrecy, M. Vedpathak, M. Sauvage Simkin, R. Pinchaux, B. Heinrich, and J. Kirschner *Physical Review B*, Volume 65, April 2002.
- [61] AtomistixToolKit — Online Manual User's manual on atomistix.com Link to online document (pdf version only).
- [62] Spin-dependent tunneling conductance of Fe-MgO-Fe sandwiches by W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren *Physical Review B*, Volume 63, January 2001.
- [63] Ab initio simulation of magnetic tunnel junctions by Derek Waldron, Lei Liu, and Hong Guo *Nanotechnology*, Volume 18, September 2007.
- [64] Ab initio calculations of interface effects in tunnelling through MgO barrier on Fe(100) by D. Wortmann, G. Bihlmayer, and S. Blügel *Journal of Physics: Condensed Matter*, Volume 16, November 2004.
- [65] Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction by J. Mathon and A. Umerski *Physical Review B*, Volume 63, May 2001]

[66] Electronic transport through Fe/MgO/Fe(100) tunnel junctions by Ivan Rungger, Alexandre Reily Rocha, Oleg Mryasov, OlleHeinonen, and Stefano Sanvito *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Volume 316, March 2007.

[67] W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren *Phys. Rev. B* **63**, 054416 – Published 8 January 2001.