

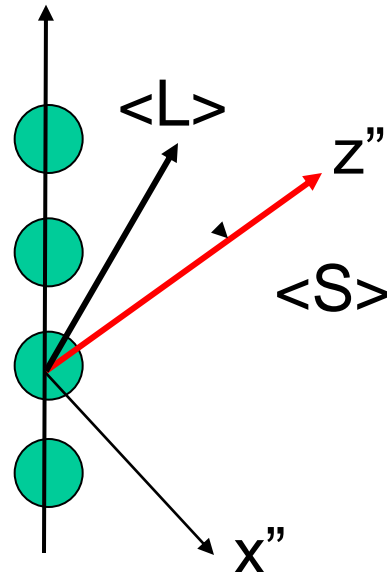
Le magnétisme du Fer du volume au fil monoatomique

Gabriel Autes ¹, Cyrille BARRETEAU ¹,
Marie Catherine Desjonquères ¹
et Daniel Spanjaard ²



¹ Service de Physique et Chimie des Surfaces et Interfaces (SPSCI)
Groupe Modélisation Surfaces Interfaces et Nanostructures (MSIN)
DRECAM, CEA-Saclay, 91191 Gif sur Yvette

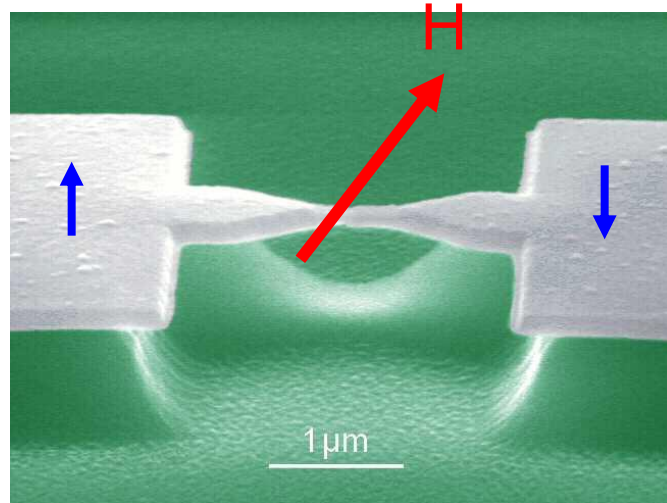
² Laboratoire de Physique des Solides (LPS)
Université Paris Sud, 91405 Orsay



Introduction

Motivation

Jonction à cassure



Matériau magnétique

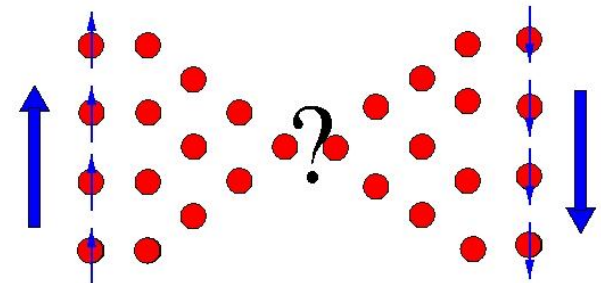
Magnétorésistance

$$R = R(\|H\|)$$

Magnétorésistance anisotrope

$$R = R(H(\theta, \varphi))$$

Magnétisme des nano-objets



MODELE DE LIAISONS FORTES

Hamiltonien

$$H = T + \sum_i V(r - R_i)$$

Base

$$|i\lambda\rangle \quad \lambda = s, p_x, p_y, p_z, d_{xy}, d_{yz}, d_{zx}, d_{x^2-y^2}, d_{3z^2-r^2}$$

$$\langle i\lambda | H | j\mu \rangle \quad i \neq j \quad (\text{intégrales de saut})$$

10 paramètres de SK

(approximation a 2 centres)

$$R_{ij} // Oz$$

$$\left\{ \begin{array}{l} ss\sigma, sp\sigma, sd\sigma, pp\sigma, pp\pi, pd\sigma, pd\pi, dd\sigma, dd\pi, dd\delta = \beta_{SK} \\ \beta_{SK} = \beta_{SK}(R) f_c(R) \end{array} \right.$$

$$\langle i\lambda | H | i\lambda \rangle \quad (\text{niveaux « atomiques »})$$

Termes intra-atomiques

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{E}_s \\ \mathcal{E}_p \\ \mathcal{E}_d \end{array} \right. \left\{ \begin{array}{l} \mathcal{E}_{i\lambda} = a_\lambda + b_\lambda \rho_i^{2/3} + c_\lambda \rho_i^{4/3} + d_\lambda \rho_i^2 \\ \rho_i = \sum_{j \neq i} \rho(R_{ij}) f_c(R_{ij}) \end{array} \right.$$

Energie totale

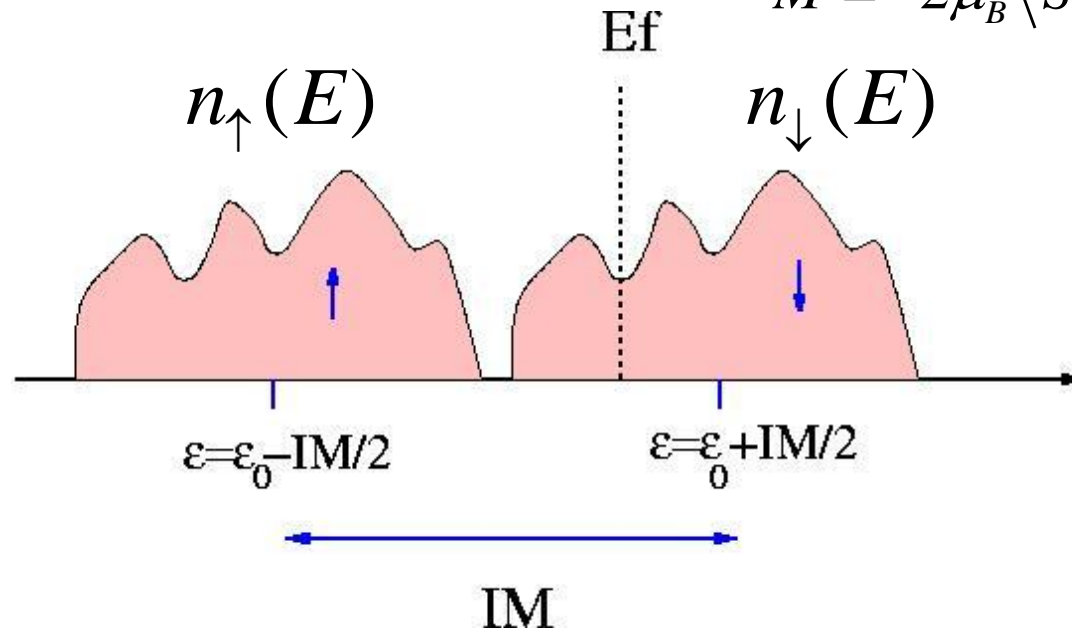
$$E_{tot} = \sum_{nocc} \mathcal{E}_n$$

MODELE DE STONER

$$\varepsilon_s = \varepsilon_s^0 - \frac{\sigma}{2} I_s M_d \quad ; \quad \varepsilon_p = \varepsilon_p^0 - \frac{\sigma}{2} I_p M_d \quad ; \quad \varepsilon_d = \varepsilon_d^0 - \frac{\sigma}{2} I_d M_d$$

$$I_s = I_p = \frac{I_d}{10}$$

$$M = -2\mu_B \langle S_z \rangle = -\mu_B \langle \sigma_z \rangle$$



CRITERE DE STONER

$$\underbrace{In_0}_{\text{Densité d'états par atome et par spin}}(E_F) > 1$$

Densité d'états par atome et par spin

CONSEQUENCES DU CRITERE DE STONER

Pour un matériau donné le critère d'apparition du magnétisme dépend de la densité d'état au niveau de Fermi

Largeur de la densité d'état

$$W \propto |\beta(R)| \sqrt{Z}$$

Magnétisme favorisé par

- Baisse de coordinence

$$\searrow Z \Rightarrow \searrow W \Rightarrow \nearrow n_0(E_F)$$

- Augmentation de la distance interatomique

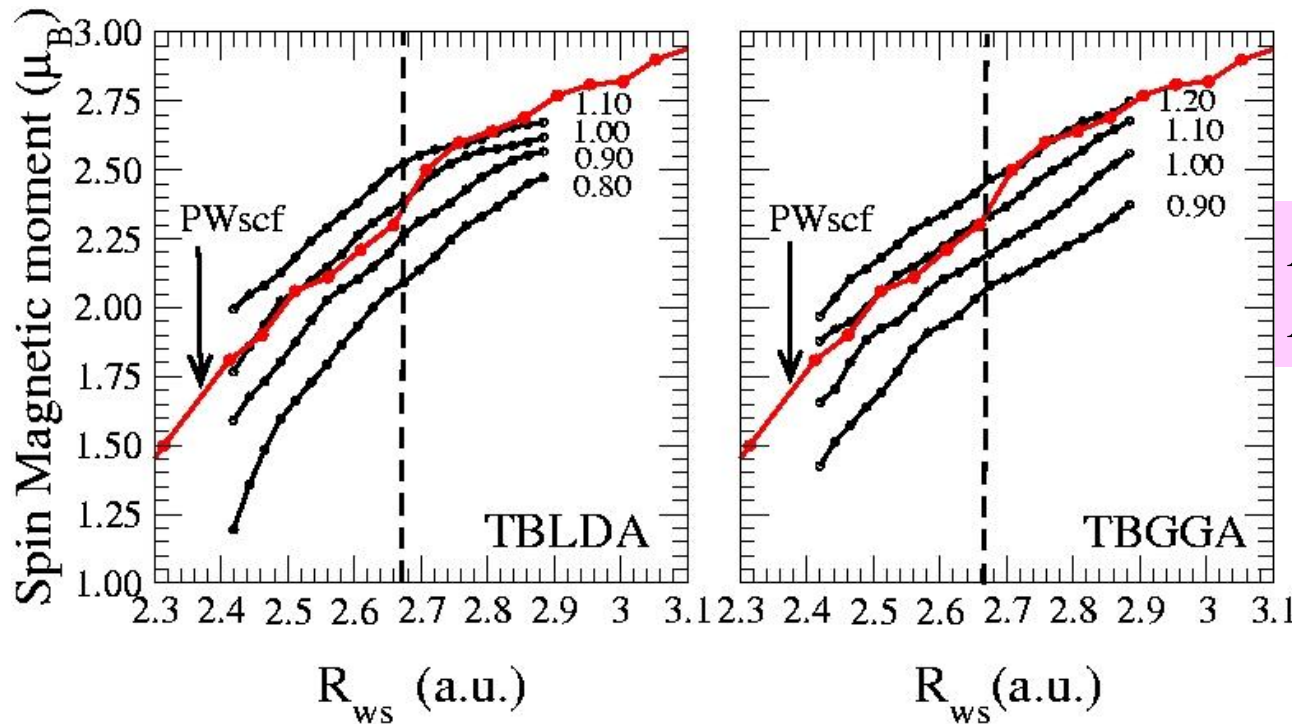
$$\nearrow R \Rightarrow \searrow |\beta(R)| \Rightarrow \searrow W \Rightarrow \nearrow n_0(E_F)$$

DETERMINATION DES PARAMETRES

Paramètres de liaisons fortes

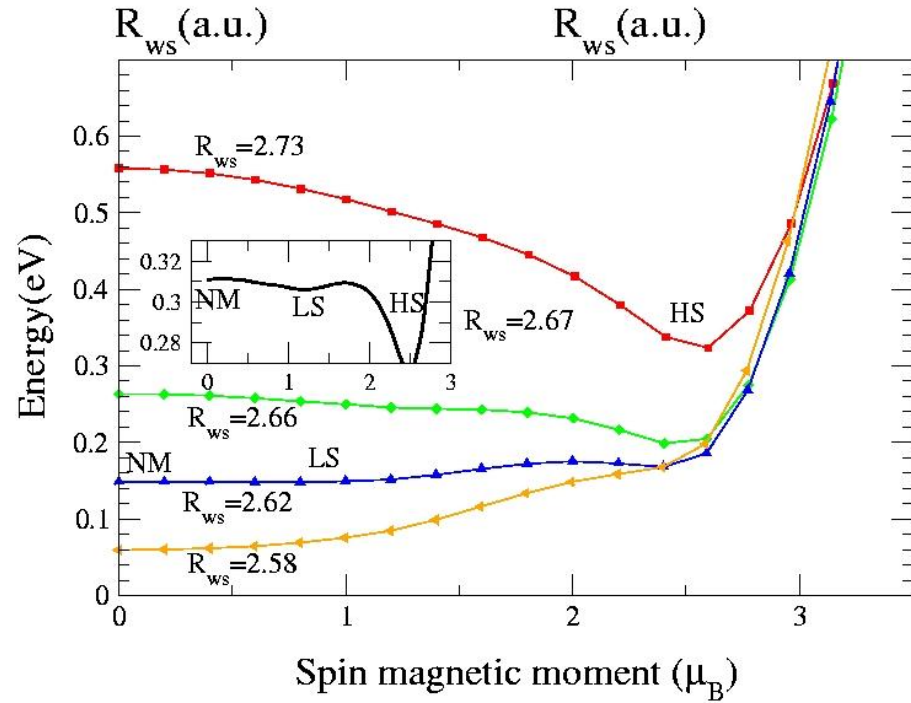
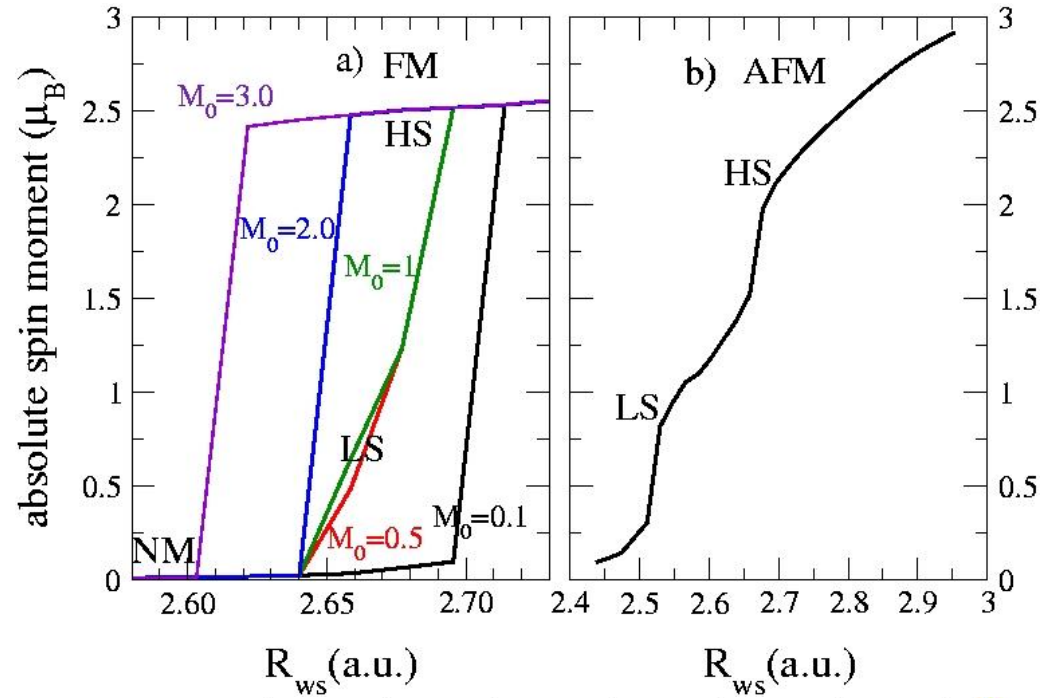
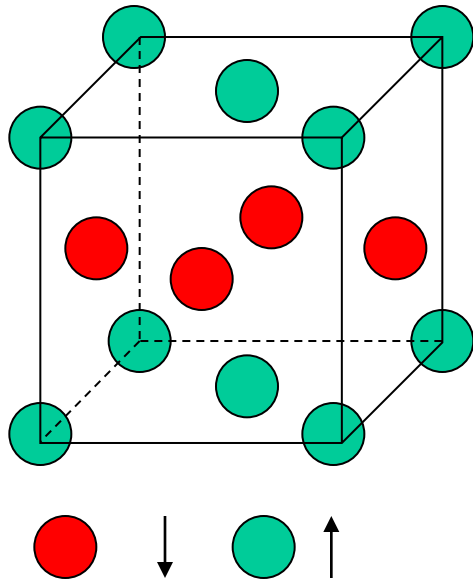
ajustement $\left\{ \begin{array}{l} \text{Structure de bandes} \\ \text{Energie totale} \end{array} \right.$ Cfc, cc, cs etc....
Plusieurs distances

Paramètre de Stoner



$I = 1.0eV$ (TBLDA)
 $I = 1.1eV$ (TBGGA)

FER CFC

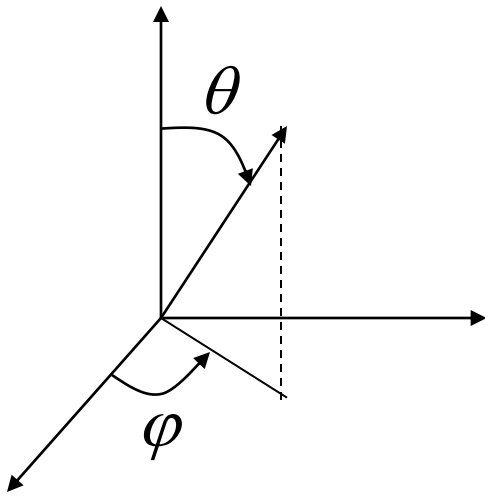


Plusieurs minima locaux

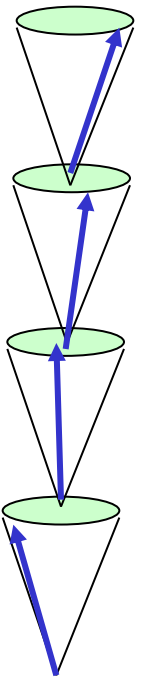
Très bon accord
avec ab-initio (Moruzzi)

FER CFC

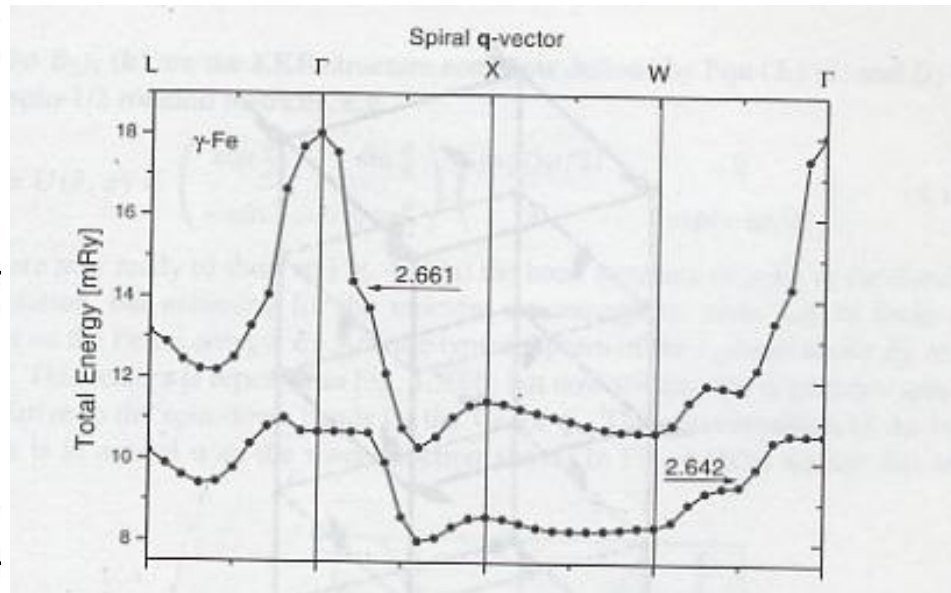
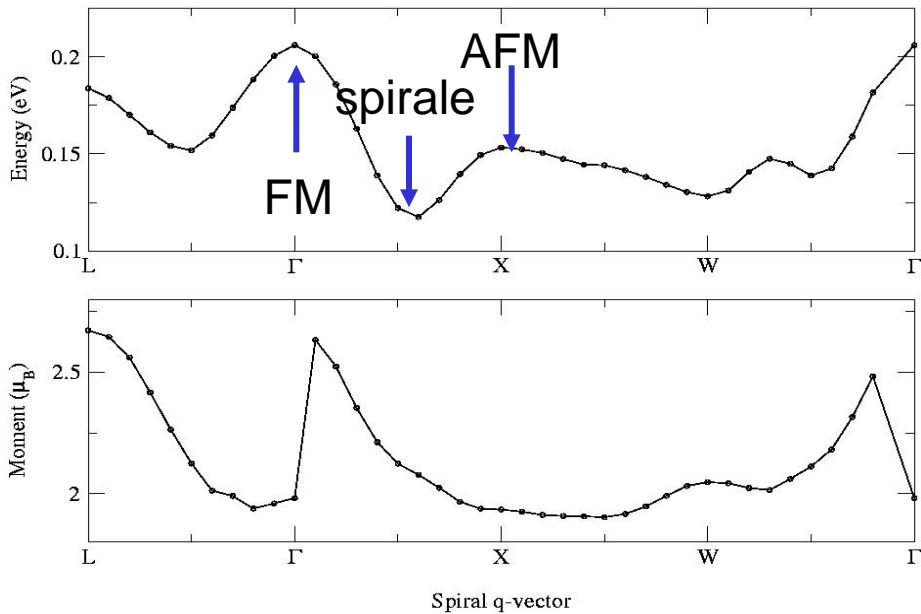
Spirales magnétiques



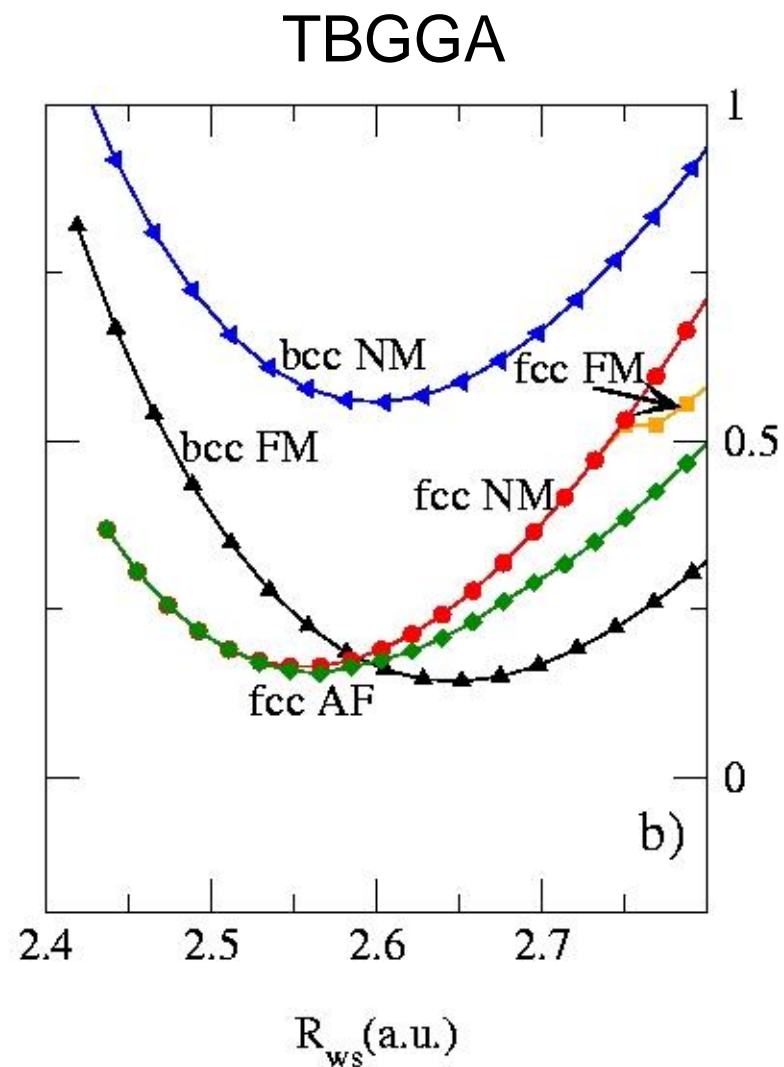
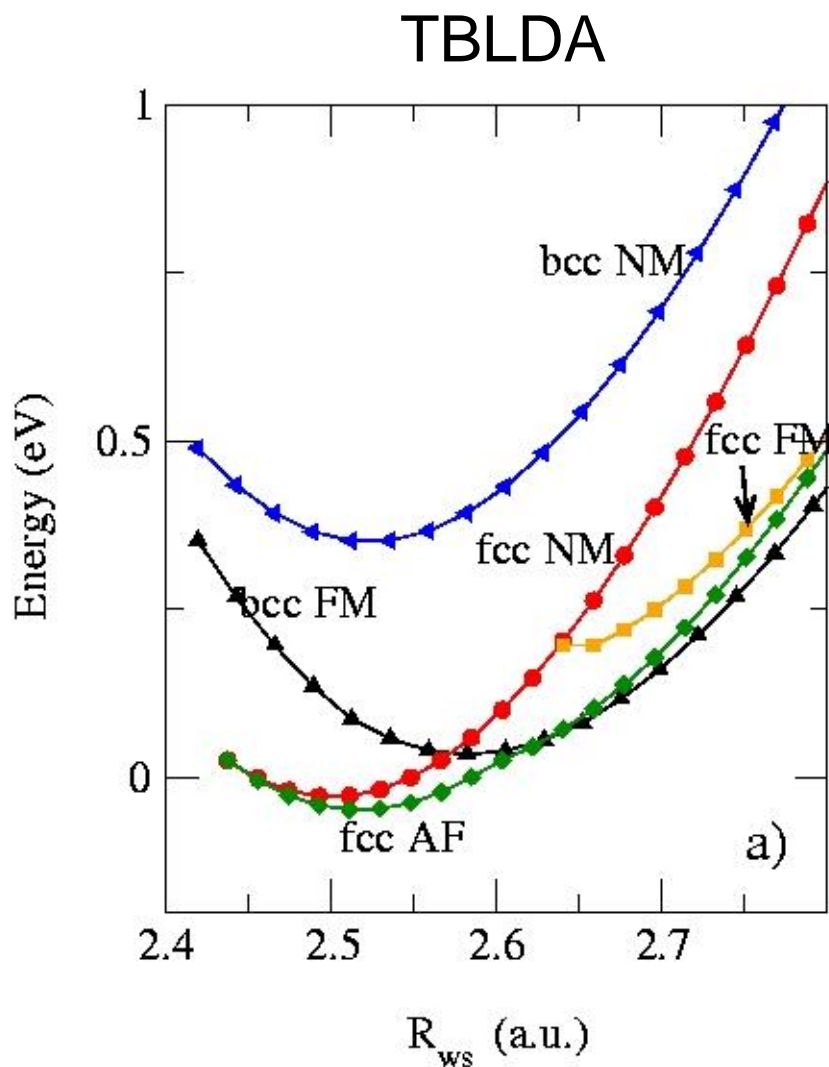
$$\vec{M}_i = |M_i| \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \varphi_i \\ \sin \theta \sin \varphi_i \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad \varphi_i = \varphi + \vec{q} \cdot \vec{R}_i$$



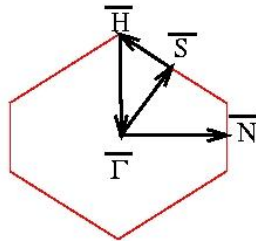
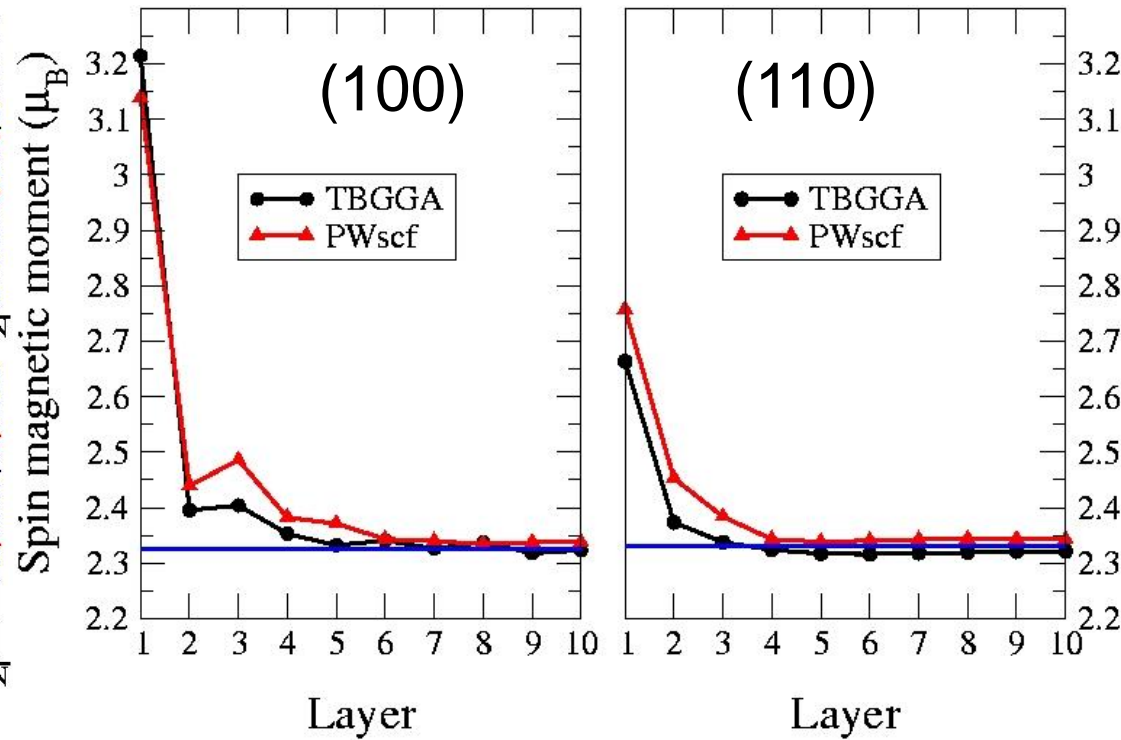
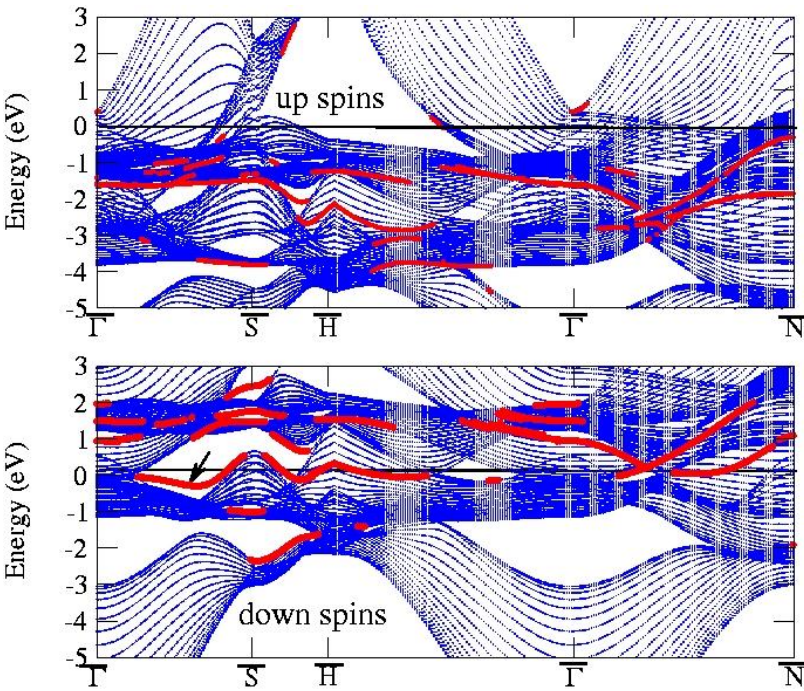
Très bon accord
avec ab-initio (Kübler)



CFC versus CC / LDA versus GGA



Surfaces (100) et (110) cubique centré

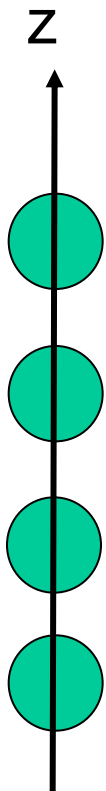


Renforcement du moment de spin à la surface: + prononcé sur (100) que sur (110).

Excellent accord avec calcul ab-initio

LE FIL DE FER

Matrice de Slater Koster spd de la chaîne linéaire

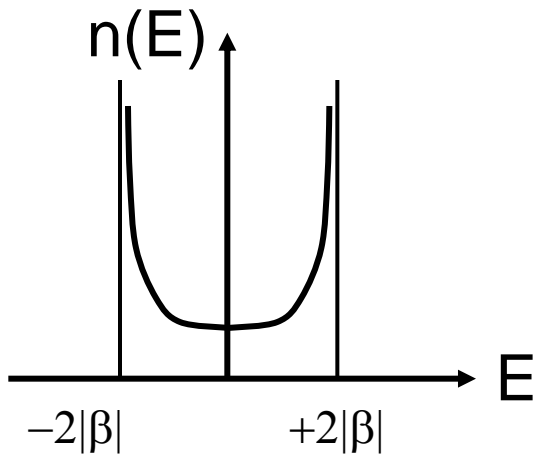
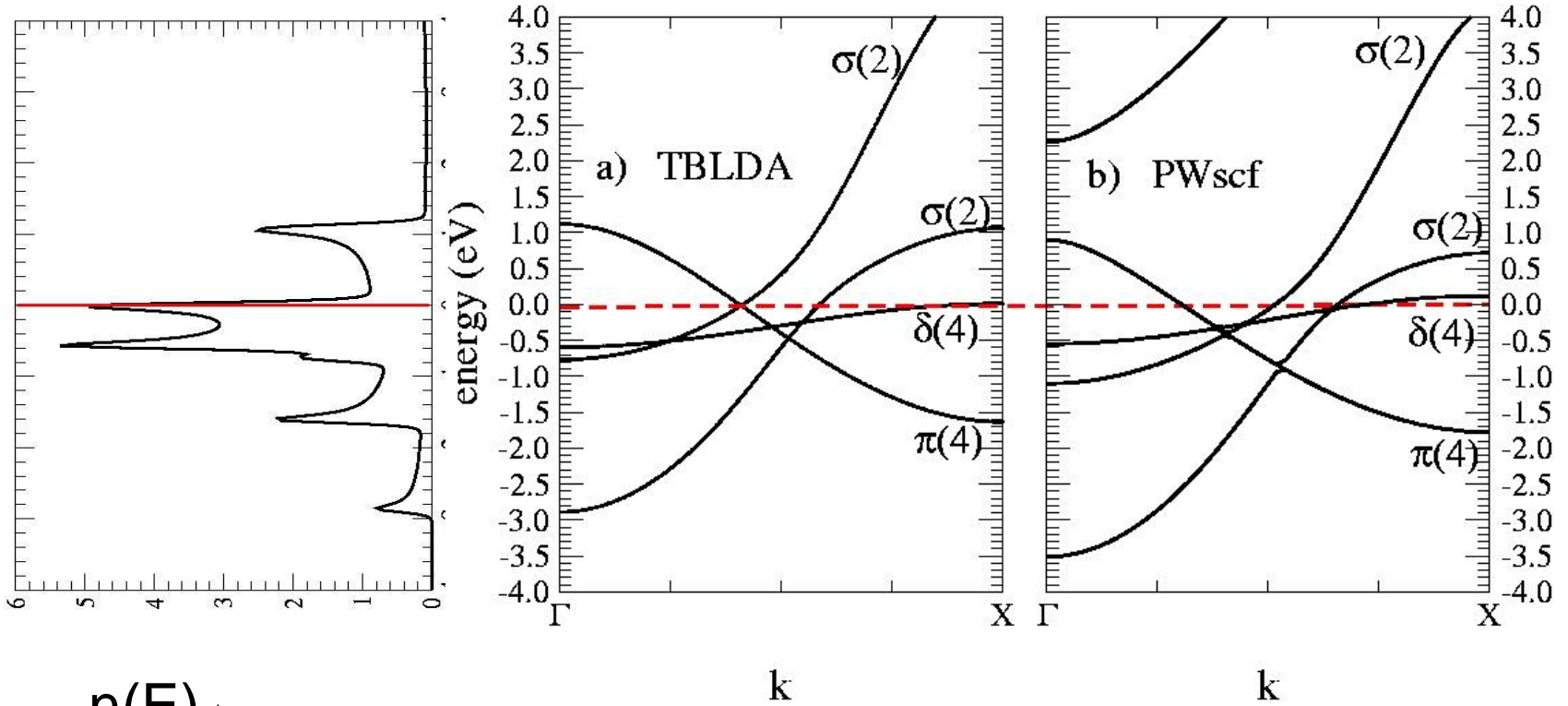


	s	p_z	$d_{3z^2-r^2}$	p_x	d_{zx}	p_y	d_{yz}	d_{xy}	$d_{x^2-y^2}$
s	$ss\sigma$	$sp\sigma$	$sd\sigma$	0	0	0	0	0	0
p_z	$-sp\sigma$	$pp\sigma$	$pd\sigma$	0	0	0	0	0	0
$d_{3z^2-r^2}$	$sd\sigma$	$-pd\sigma$	$dd\sigma$	0	0	0	0	0	0
p_x	0	0	0	$pp\pi$	$pd\pi$	0	0	0	0
d_{zx}	0	0	0	$-pd\pi$	$dd\pi$	0	0	0	0
p_y	0	0	0	0	0	$pp\pi$	$pd\pi$	0	0
d_{yz}	0	0	0	0	0	$-pd\pi$	$dd\pi$	0	0
d_{xy}	0	0	0	0	0	0	0	$dd\delta$	0
$d_{x^2-y^2}$	0	0	0	0	0	0	0	0	$dd\delta$

Orbitales p: négligeables

LE FIL DE FER

Structure de bandes de la chaîne linéaire de fer non magnétique



Singularités de Van-Hove

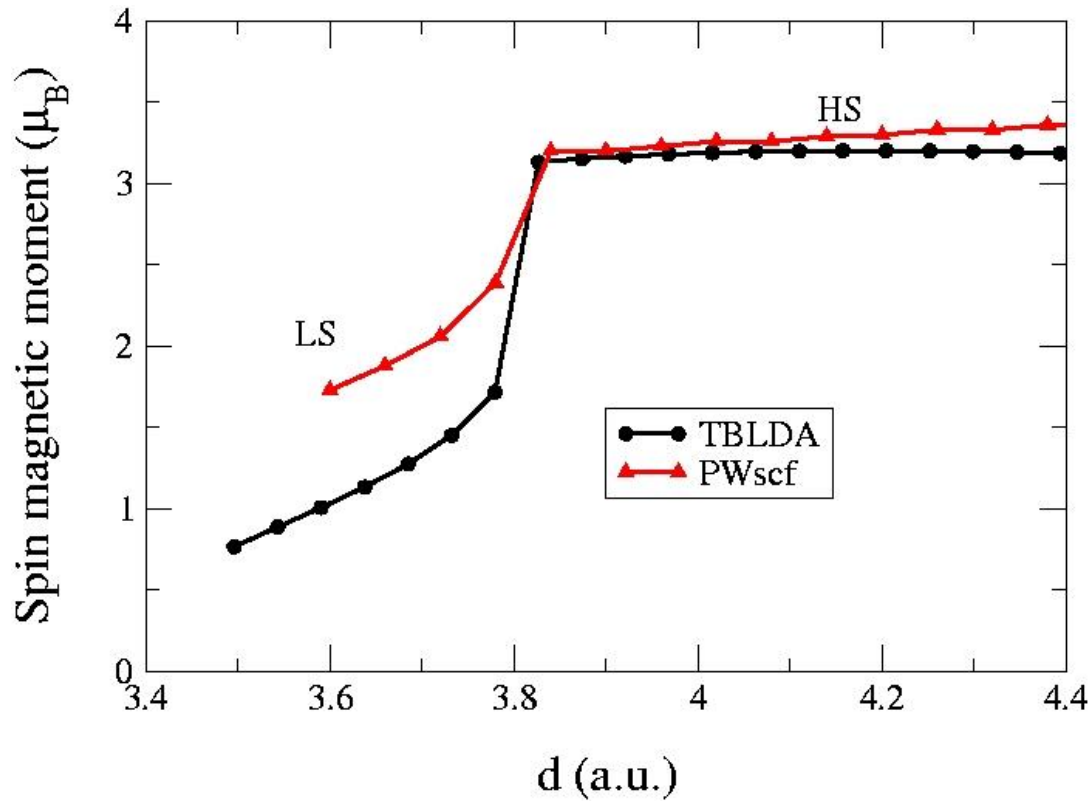
$$n_0(E) = \frac{n_0^e}{\pi \sqrt{4\beta^2 - E^2}}$$

n_0^e : nombre d'électrons par spin dans la bande

LE FIL DE FER

Magnétisme du fil

Transition LS/HS



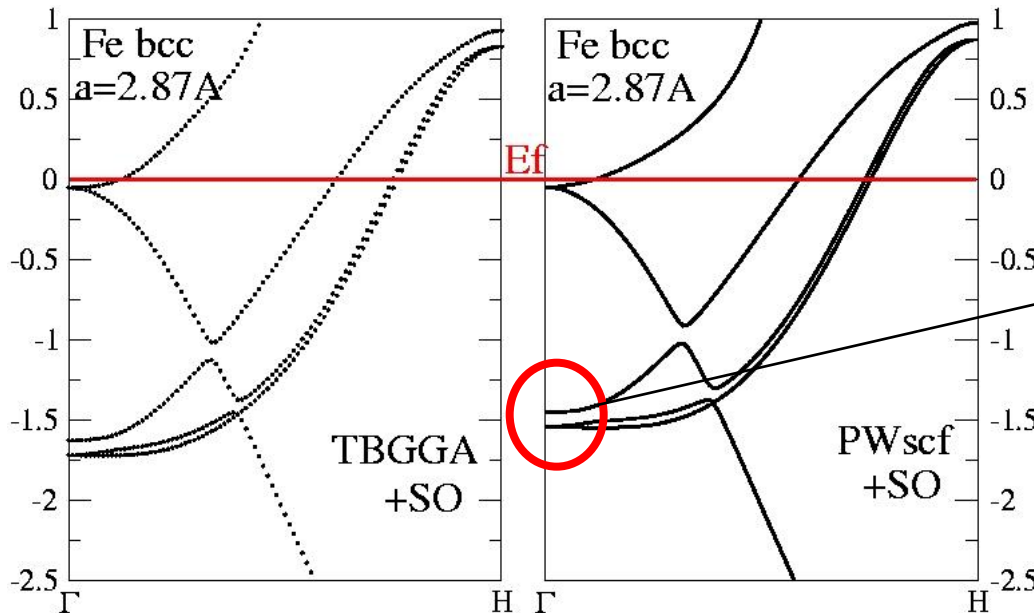
LE COUPLAGE SPIN-ORBITE

$$H_{SO} = \xi(r)\mathbf{L}\cdot\mathbf{S} \quad \xi(r) = \frac{1}{2m^2c^2} \frac{1}{r} \frac{dV}{dr}$$

$$\langle \lambda\sigma | H_{SO} | \mu\sigma' \rangle = \xi_{\lambda\mu} \langle \bar{\lambda}\sigma | \mathbf{L}\cdot\mathbf{S} | \bar{\mu}\sigma' \rangle \quad \xi_{\lambda\mu} = \int_0^{+\infty} R_\lambda(r)R_\mu(r)\xi(r)r^2 dr$$

On ne prend en compte que les orbitales d $\xi_{\lambda\mu} = \xi > 0$

Détermination du paramètre de couplage spin-orbite



$$\Gamma'_{25} \begin{cases} \rightarrow \Gamma'_{25} + \xi \\ \rightarrow \Gamma'_{25} - \xi/2 \end{cases}$$

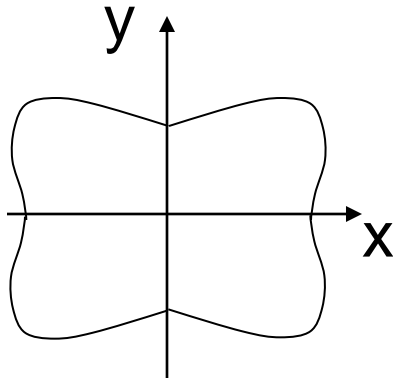
$$\xi = 0.06\text{eV}$$

LES CONSEQUENCES DU SPIN-ORBITE

$\xi \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$

Anisotropie
magnétique

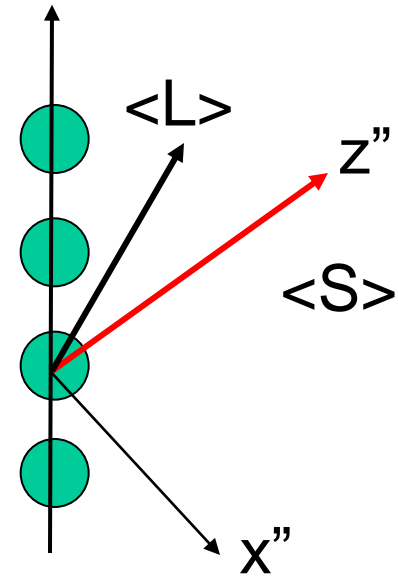
$$E(\theta, \varphi)$$



Moment
orbital

$$\vec{M}_L = -\mu_B \langle \vec{L} \rangle$$

$$\langle \mathbf{L} \rangle = \begin{pmatrix} \langle L_x \rangle \\ \langle L_y \rangle \\ \langle L_z \rangle \end{pmatrix}$$



ET LA POLARISATION ORBITALE

Le moment orbital peut exister sans couplage spin-orbite

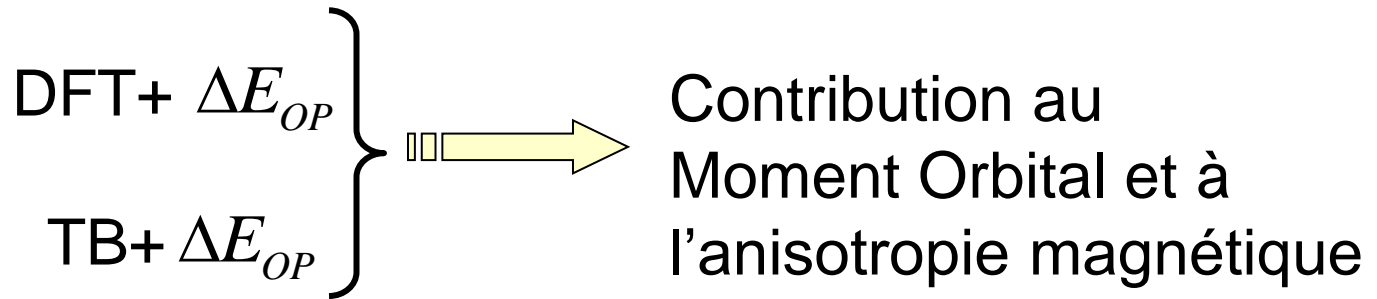
Le terme oublié

$$\Delta E_{OP} = -B \langle \vec{L} \rangle^2$$

B : paramètre de Racah

A l'origine de la seconde règle de Hund

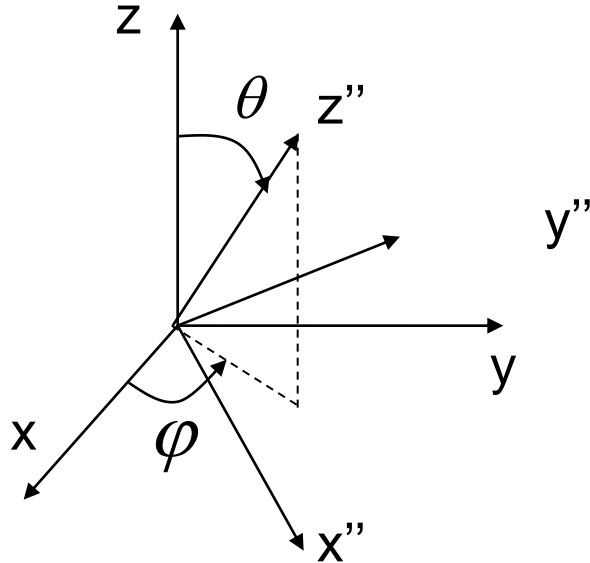
Terme absent en DFT mais présent en HF



Ce terme n'a pas été pris en compte dans nos calculs

LE MOMENT ORBITAL

$$\mathbf{L}_i = \sum_{\lambda\mu\sigma} |i\lambda\mu\rangle [\mathbf{L}_i]_{\lambda\mu} \langle i\lambda\mu|$$



$$L_z = -i\left(x\frac{\partial}{\partial y} - y\frac{\partial}{\partial x}\right)$$

$$L_z |xy\rangle = -2i |x^2 - y^2\rangle$$

$$\langle \lambda\sigma | L_z | \mu\sigma \rangle = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 2i & 0 \\ 0 & 0 & i & 0 & 0 \\ 0 & -i & 0 & 0 & 0 \\ -2i & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

$$L_{ix''} = \cos\theta \cos\varphi L_{ix} + \cos\theta \sin\varphi L_{iy} - \sin\theta L_{iz}$$

$$L_{iy''} = -\sin\varphi L_{ix} + \cos\varphi L_{iy}$$

$$L_{iz''} = \sin\theta \cos\varphi L_{ix} + \sin\theta \sin\varphi L_{iy} + \cos\theta L_{iz}$$

LE CHOIX DE LA BASE DE SPIN

2 choix possibles

- Base liée au cristal
- Base liée à l'aimantation

$|i\lambda\sigma\rangle = |i\lambda\rangle \otimes |\sigma\rangle$

- (1) $|\sigma\rangle = |\sigma\rangle_z$ Vecteur propre de σ_z
- (2) $|\sigma\rangle = |\sigma\rangle_{z''}$ Vecteur propre de $\sigma_{z''}$

Couplage spin-orbite

$$L.S = L_x\sigma_x + L_y\sigma_y + L_z\sigma_z$$

$$= L_{x''}\sigma_{x''} + L_{y''}\sigma_{y''} + L_{z''}\sigma_{z''}$$

- (1) $H_{SO} = [f(0,0)]$
- (2) $H_{SO} = [f(\theta, \varphi)]$

Potentiel de Stoner

$$-\frac{I}{2}\vec{M} \cdot \vec{\sigma} = -\frac{I}{2}(M_x\sigma_x + M_y\sigma_y + M_z\sigma_z)$$

$$= -\frac{I}{2}M_{z''}\sigma_{z''}$$

- (1) $V_{stoner} = -\frac{I}{2}|\vec{M}| \begin{pmatrix} \cos\theta & e^{-i\varphi}\sin\theta \\ e^{i\varphi}\sin\theta & -\cos\theta \end{pmatrix}$
- (2) $V_{stoner} = -\frac{I}{2}|\vec{M}| \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$

ANISOTROPIE MAGNETIQUE ET MOMENT ORBITAL

Perturbation au second ordre de l'énergie

$$E_{tot} = E_{tot}^0 + \Delta E_1 + \Delta E_2$$

$$\Delta E^{(1)} = \sum_{n\sigma \text{ occ}} \langle n\sigma | H_{SO} | n\sigma \rangle = 0 \qquad \Delta E^{(2)} = \sum_{\substack{n\sigma \text{ occ} \\ n'\sigma' \text{ unocc}}} \frac{\langle n\sigma | H_{SO} | n'\sigma' \rangle}{E_{n\sigma}^0 - E_{n'\sigma'}^0}$$

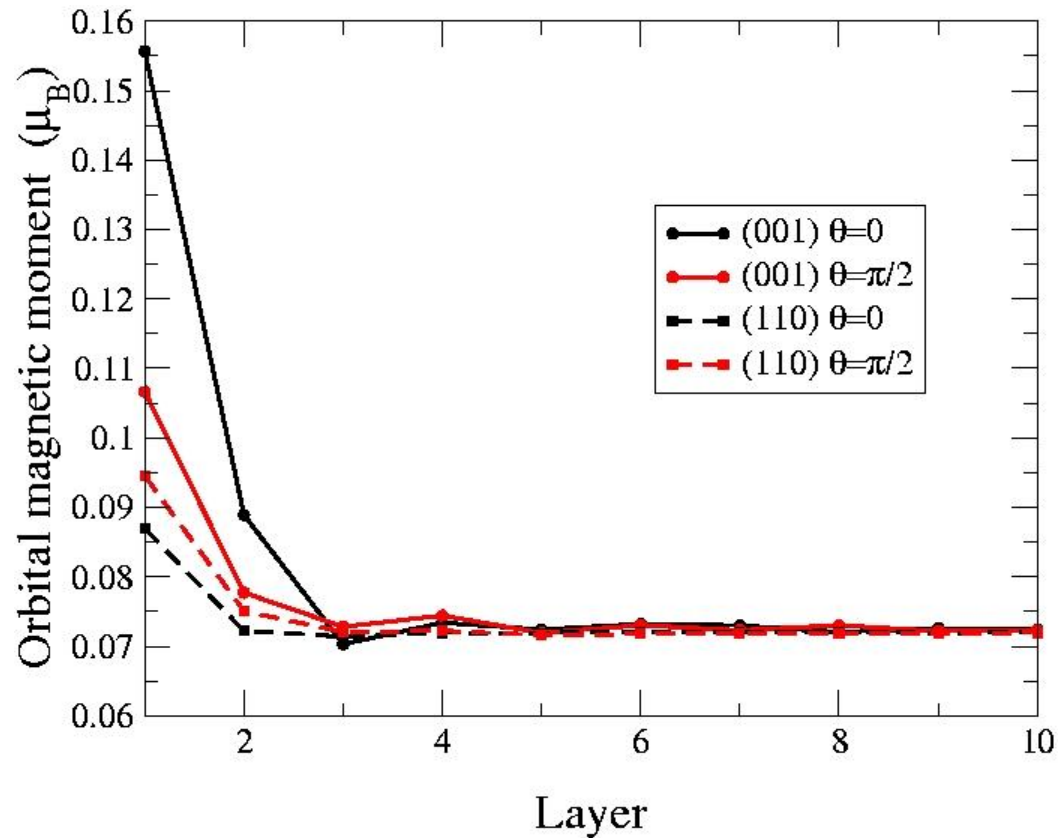
Perturbation au premier ordre du moment orbital

$$\langle \mathbf{L}_i \rangle = \sum_{\substack{n\sigma \text{ occ} \\ n'\sigma' \text{ unocc}}} \frac{\langle n\sigma | L_i | n'\sigma' \rangle \langle n'\sigma' | H_{SO} | n\sigma \rangle}{E_{n\sigma}^0 - E_{n'\sigma'}^0} + cc$$

Approximation dans le cas d'un magnétisme saturé avec un fort « splitting » d'échange

$$\Delta E_i^{(2)}(\theta, \varphi) - \Delta E_i^{(2)}(0, 0) = -\frac{\xi}{4} [L_{iz''}(\theta, \varphi) - L_{iz''}(0, 0)]$$

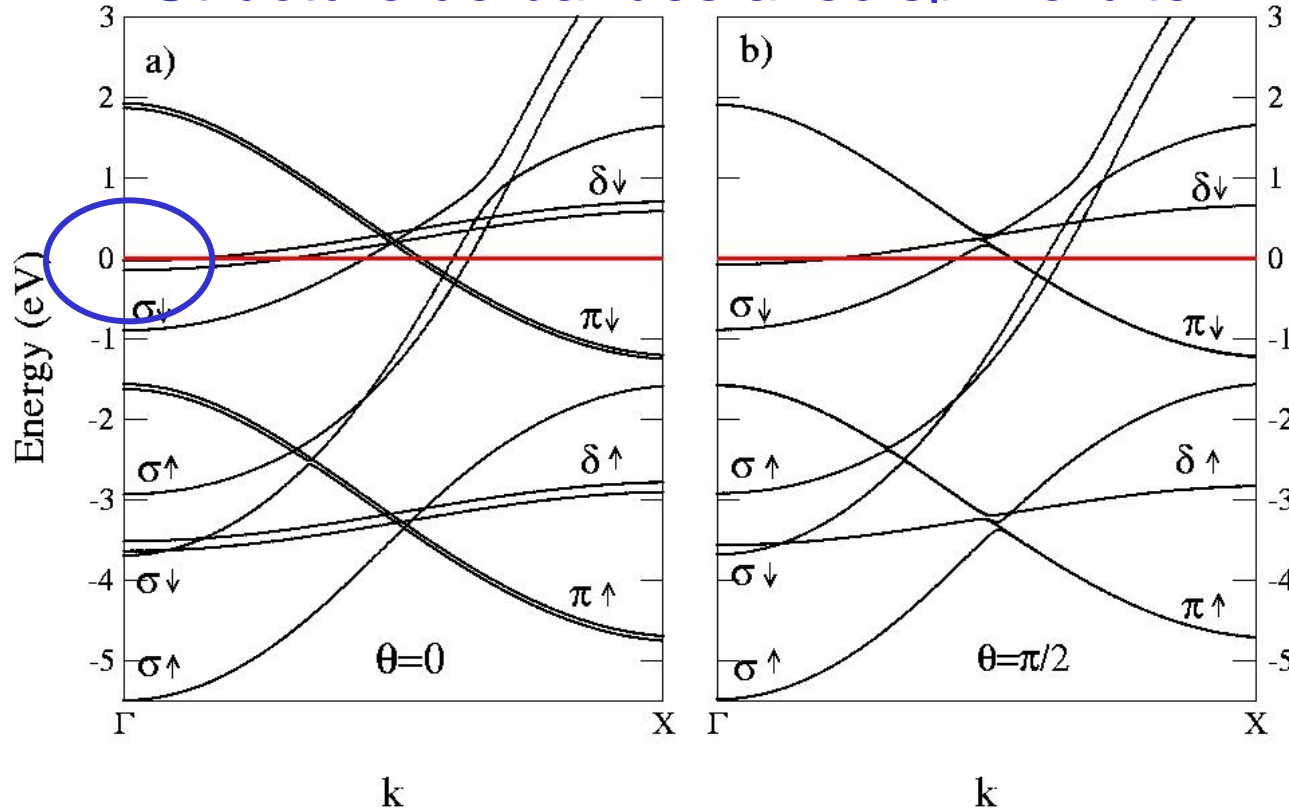
MOMENT ORBITAL DE SURFACE



Même tendance que pour le moment de spin mais convergence plus rapide vers le volume.

LE FIL DE FER

Structure de bandes avec spin-orbite



Vérification
ab-initio **OUF!**

$$\xi = 0.06 \text{ eV}$$

Analyse en perturbation

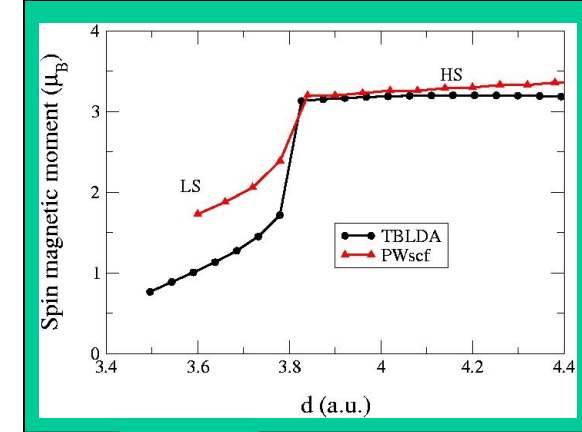
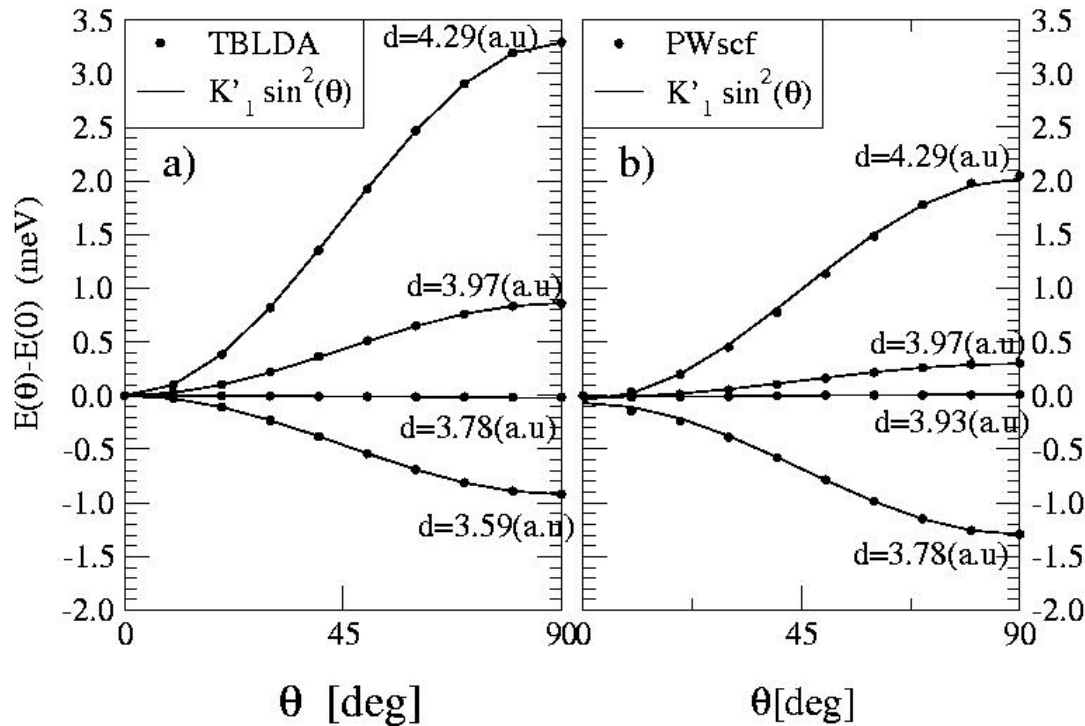
Splitting des bandes dégénérées quand $\theta=0$

$$\begin{cases} \delta \rightarrow 2\xi \\ \pi \rightarrow \xi \end{cases}$$

E_f « tangente » la bande δ $\begin{cases} \rightarrow \text{Forte anisotropie magnétique} \\ \rightarrow \text{Magnétorésistance anisotrope} \end{cases}$

LE FIL DE FER

Anisotropie magnétique



$$\Delta E = K'_1 \sin^2 \theta$$

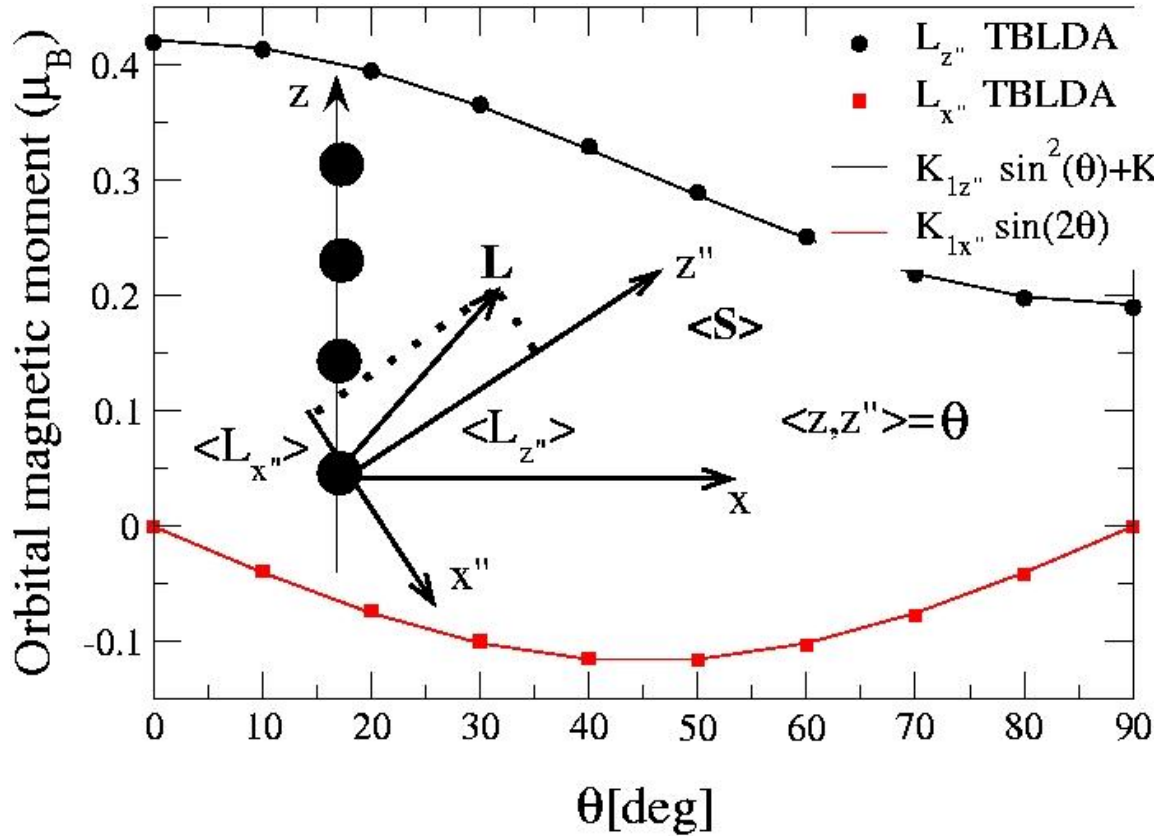
Renversement de l'anisotropie avec la distance interatomique:

← transition LS/HS

→ remplissage de la bande δ

LE FIL DE FER

Moment orbital



$$L_{z''} = K_{0z''} + K_{1z''} \sin^2 \theta$$

$$L_{x''} = K_{1x''} \sin 2\theta$$

$$\Delta L_{z''} = K_{1z''} \sin^2 \theta$$

La formule magique:

$$E(\theta) - E(0) = -\frac{\xi}{4} [L_{iz''}(\theta) - L_{iz''}(0)]$$

Très bonne pour un magnétisme saturé "fort"


fausse pour magnétisme partiel

$$\longrightarrow \Delta E = -\alpha \frac{\xi}{4} \Delta L_{z''}$$

CONCLUSION

- Modèle de liaisons fortes excellent pour décrire les propriétés magnétiques des métaux de transition.
- Magnétorésistance anisotrope du fil.
- Limite de la formule magique.

PERSPECTIVES

- Extension du modèle au calcul du transport dans un formalisme type Landauer.
- Etude de jonctions « réalistes » 
 - magnétisme
 - transport
- Propriétés vibrationnelles au niveau de la jonction