

**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 :

Gourari Hadjira

Pour obtenir le diplôme de

Master

Filière : Physique

Spécialité : Physique des matériaux

Thème

*Étude ab-initio des propriétés structurales électroniques et
magnétiques des alliages quaternaires d'Heusler CoFeMnSi*

Soutenu le : 03/07/2019

Devant le jury :

Mr Riane Rabah	Grade	Professeur	Président
Mr Kadari Ahmed	Grade	Professeur	Examineur
Mr Larabi Abdelkrim	Grade	MCB	Encadreur

ANNEE UNIVERSITAIRE 2018/2019

REMERCIEMENTS

Avec l'aide de Dieu tout puissant, j'ai pu accomplir ce modeste travail. Ce travail a été réalisé au sein de la salle d'information du département de physique de la faculté des sciences et de la matière-Université Ibn khaldoun-Tiaret.

Je tiens à remercier vivement mon encadreur Pr **Abd krim larabi** maître de Conférences à l'Université de Tiaret, et lui énoncer ma gratitude, pour son soutien, son aide utile, ses indications réalistes et sa vision précise qui m'ont beaucoup aidé à réaliser ce mémoire.

Je tiens à remercier **Kadari Ahmed**, professeur à l'Université de Tiaret pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail et pour l'honneur qu'il m'a fait de présider le jury. J'adresse mes sincères remerciements et mon profond respect à Monsieur **Riane Rabah**, Professeur à l'Université de Tiaret d'avoir accepté d'examiner ce travail et me faire l'honneur de participer au jury Nos sincères remerciements vont également aux Enseignants de spécialité : **Mr Yanallah M^{me} BEN HAWA CHAHRAZADE** Et tous les Enseignants de la Faculté des sciences et de la matière, Université Ibn Khaldoun-Tiaret.

Dédicace

Je dédie ce mémoire à :

- *A mes chers parents*

- *A mes sœurs : chahinez ,zahira*

- *A mes frères : Khaled , Sohaïbe*

- *A toute ma famille.*

- *A mes amies*

- *A tous ceux qui m'ont aidé de loin où de près à réaliser ce travail.*

Hadjira

Liste des Figures

Chapitre I

<u>N° Figure</u>	<u>Titre</u>	<u>Page</u>
Figure I.1 :	Tableau périodique des éléments. Le grand nombre de matériaux Heusler peut être formé par la combinaison des différents éléments selon le schéma de couleurs	4
Figure I.2 :	Représentation schématique des différentes structures des composés Heusler	5
Figure I.3 :	structure de demi-Heusler (Half-Heusler)	6
Figure I.4 :	structures d'Heusler (Full-Heusler) : régulière	7
Figure I.5 :	Les différents types de désordre pouvant survenir dans la structure (half/full) Heusler	8
Figure I.6 :	structure d'Heusler quaternaire	9
Figure I.7 :	(a) composé demi-Heusler XYZ présente un seul sous-réseau magnétique puisque seuls les atomes sur les sites octaédriques portent un moment magnétique localisé. (b) les composés X ₂ YZ de Heusler ont deux sous-réseaux magnétiques qui peuvent se coupler ferromagnétique ou antiferromagnétique	10
Figure I.8 :	Diamagnétisme : réseau de spins	11
Figure I.9 :	Paramagnétisme : réseau de spins	11
Figure I.10 :	Ferromagnétisme : réseau de spins	12
Figure I.11 :	Antiferromagnétisme : réseau de spins	13
Figure I.12 :	Ferrimagnétisme : réseau de spins	13
Figure I.13 :	Structure de bande pour un matériau (a) ferromagnétique conventionnel et (b) semi métallique	14
Figure I.14 :	Illustration schématique de la densité des états (a) d'un métal, (b) semi-métal, (c) un métal (spin polarisé), (d) un ferromagnétique, (e) un ferromagnétique demi-métallique, et (f) un ferrimagnétique demi-métallique	16
Figure I.15 :	La courbe de Slater-Pauling pour les alliages 3d en fonction du nombre d'électrons de valence	17
Figure I.16 :	les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction géante magnétique	19
Figure I.17 :	les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction tunnel magnétique	20

Liste des Figures

Chapitre II

N° Figure	Titre	Page
Figure II.1 :	Le cycle self-consistent dans le calcul de la fonctionnelle de densité	34
Figure II.2 :	Potentiel «Muffin-Tin»	35

Chapitre III

N° Figure	Titre	Page
Figure III.1 :	Les différentes structures cristallines des alliages quaternaires Full-Heusler	41
Figure III.2	La variation de l'énergie en fonction du volume dans les deux cas : magnétique et non magnétiques des composés CoFeMnSi dans ces trois types	45
Figure III.3	La variation de l'énergie en fonction du volume entre les trois types dans le cas magnétique (spin polarisé) des composés CoFeMnSi	46
Figure III.4	Les structures de bandes pour les spins majoritaires et les spins minoritaires de l'alliage CoFeMnSi	47
Figure III.5	Les densités d'états totales et partielles du composé CoFeMnSi	49

Liste des Tableaux

Chapitre I

<u>N° Tableau</u>	<u>Titre</u>	<u>Page</u>
Tableau I.1 :	Différents type d'occupations des sites non équivalents dans la structure de type C1b	6

Chapitre III

<u>N° Tableau</u>	<u>Titre</u>	<u>Page</u>
Tableau III.1 :	Les valeurs des RMT pour différents atomes	42
Tableau III.2 :	Les valeurs de paramètre de maille a (Å), le module de compressibilité B (GPa) et sa dérivé B' , ainsi que l'énergie minimale $E(\text{Ry})$	44
Tableau III.3 :	les moments magnétique total, interstitiel et local, le calcul des spin-polarisation (P) et la température de Curie (TC)	51

Table des matières

Introduction Générale :	1
Références :	3
Chapitre I :	4
Les Alliages d’Heusler et Le Magnétisme	4
I. Introduction	4
I.1. Alliages Heusler	4
I.1.1. Les alliages demi-Heusler (Half-Heusler)	5
I.1.2. Les alliages Heusler (Full-Heusler)	6
I.1.3. Les alliages Heusler quaternaires	8
I.2. Le Magnétisme et les alliages de Heusler	9
I.3. Classification des comportements magnétiques	10
I.3.1. Le comportement diamagnétique	10
I.3.2. Le comportement paramagnétique	11
I.3.3. Le comportement ferromagnétique	12
I.3.4. Le comportement antiferromagnétique	13
I.3.5. Le comportement ferrimagnétique	13
I.4. Semi-métallicité des alliages Heusler	14
I.5. Le ferromagnétisme semi-métallique	15
I.6. Le comportement de Slater-Pauling	16
I.7. Les applications	18
I.7.1. La magnétorésistance GMR	19
I.7.2. La magnétorésistance TMR	20
Références	22
Chapitre II :	25
Théorie et méthode de calculs	25
II. Théorie et méthode de calculs	26
II.1. Théorie de la Fonctionnelle de Densité (DFT)	26
II.1.1. Introduction	26
II.1.2. L’équation de Schrödinger	26
II.1.3. L’approximation de Born-Oppenheimer	27
II.1.4. Théorèmes de Hohenberg et Kohn	28
II.1.5. Les équations de Kohn et Sham	29

Table des matières

II.1.6.	L'approximation de la densité locale (LDA)	31
II.1.7.	L'approximation de la densité de spin locale (LSDA)	31
II.1.8.	L'approximation du gradient généralisé (GGA)	32
II.1.9.	Résolution des équations de Kohn et Sham	33
II.2.	La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW)	34
II.2.1.	Méthode des ondes planes augmentées (APW)	34
II.2.2.	Méthode linéaire des ondes planes augmentées (LAPW)	35
II.3.	Le code Wien2k	36
	Références:	38
	Chapitre III :	40
	Résultats et discussion	40
III.	Résultats et discussion	40
III.1.	Introduction	40
III.2.	La structure cristalline de composé CoFeMnSi	40
III.3.	Détail de calcul	41
III.4.	Etude des propriétés structurales de composé CoFeMnSi	42
III.4.1.	Détermination des paramètres structurales	42
III.4.2.	La stabilité structurale d'un matériau CoFeMnSi	44
III.4.2.1.	La stabilité entre les deux cas (spin polarisé et spin non polarisé) pour chaque type	44
III.4.2.2.	La stabilité entre les trois types de composé CoFeMnSi	45
III.5.	Propriétés électroniques	46
III.5.1.	La structure de bande	47
III.5.2.	Densité d'état	48
III.6.	Les propriétés magnétiques :	50
	Référence	52
	Conclusion Générale	53

Introduction Générale

Introduction Générale :

Toujours l'homme cherche à améliorer ces conditions de vie en créant, à partir de son environnement, des outils. La science des matériaux joue un rôle très important dans ces recherches, et elle lui permet de calculer et de prédire les propriétés physiques et chimiques de systèmes atomique et moléculaire. Actuellement, la nouvelle technologie cherche sa matière première dans le tableau périodique des éléments, en se basant sur la loi naturelle qui affirme que la combinaison de deux matériaux différents ne présente pas une combinaison de leurs propriétés mais donne plutôt naissance à des caractéristiques nouvelles propres à l'alliage.

La physique du solide est considérée comme une branche riche et diverse et une partie indissociable du développement technologique et industriel. L'étude des propriétés des matériaux est le premier important but de la physique du solide. Avant d'employer les matériaux (solides) dans l'industrie, il faut s'assurer de la qualité de leurs propriétés structurales, électroniques, magnétique...etc.

L'objectif de ce travail est une contribution par une étude théorique pour déterminer des propriétés structurales, électroniques, magnétique des alliages quaternaires d'Heusler CoFeMnSi , La formule générale de cette famille est XX'YZ ou X_2YZ , X, X' et Y sont des métaux de transitions, et Z un élément du groupe principale. Ce sont des composés quaternaire de Heusler cristallisant dans le type LiMgPdSb -type avec une symétrie de $F-43m$, avec une structure cristalline CFC. Ces derniers forment une catégorie particulière des composés intermétalliques nommés d'après Fridich Heusler [1], qui en 1903 a rapporté que le Cu_2MnAl est un matériau ferromagnétique alors que ses constituants élémentaires ne sont pas ferromagnétiques. Depuis la prédiction de la semi-métallicité, par de Groot et al. en 1983 [2], de l'alliage NiMnSb , l'intérêt scientifique des alliages Heusler a été renouvelé et ces matériaux ont commencé à susciter des intérêts à la fois théorique et expérimental considérables. En plus de NiMnSb , plusieurs autres alliages Heusler ont été prédits, par des calculs ab-initio, comme des semi-métaux (100% de taux de polarisation en spin), en raison de leurs hautes températures de Curie [3]. Dans cette nouvelle technologie de mémoire magnétique le système est constitué d'un circuit magnétique (racetrack memory), où un courant polarisé en spin déplace par « transfert de spin » (spintorque) une succession de parois de domaine qui sont écrits et lus à l'aide d'une tête magnétorésistive (GMR ou TMR).

Introduction Générale

Récemment, une nouvelle classe de matériaux a attiré beaucoup d'attention en raison de leurs applications en spintronique, qui sont appelés ferromagnétiques demi-métalliques (HMF). Les matériaux demi-métalliques ($P=1$) montrent des propriétés de conduction complètement différentes entre spins minoritaires et spins majoritaires. Ils présentent ainsi une propriété métallique pour une direction de spin (densité d'état non-nulle au niveau de Fermi) et une propriété semi-conductrice ou même isolante pour l'autre direction de spin et par conséquent un taux de polarisation en spin de 100%.

Les méthodes ab-initio qui sont devenues aujourd'hui un outil de base pour le calcul des propriétés électroniques et structurales des systèmes les plus complexes, Les méthodes Ab-initio (méthode de premier principe) : utilisant seulement les constantes atomiques comme données pour la résolution L'équation de Schrödinger. La puissance des calculs ab-initio a pour origine le formalisme de la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT) et ses deux approximations de l'énergie d'échange et de corrélation : l'approximation de la densité locale (LDA) et l'approximation du gradient généralisé (GGA). Le formalisme de base de la DFT est basé sur le théorème de Hohenberg et Kohn (1964), qui repose sur la considération que l'énergie totale d'un système est une fonctionnelle de la densité électronique.

La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est l'une des méthodes quantiques les plus couramment employées dans les domaines de la physique du solide et de la chimie quantique pour la détermination des grandeurs physiques et quantiques d'un système (et particulièrement les systèmes contenant un grand nombre d'électrons), telles que sa structure électronique, son énergie d'ionisation ... etc. C'est une méthode dite de premier principe. En effet, elle repose sur les fondements de la mécanique quantique et ne fait intervenir qu'un nombre limité de données d'entrées. Pour un système donné à plusieurs corps, elle permet de résoudre l'équation de Schrödinger sans l'introduction de paramètres ajustés par l'expérience.

Ce travail que nous présentons est composé de trois chapitres, l'organisation de ces chapitres est comme suit :

- Dans le premier chapitre on présente quelques rappels sur le magnétisme et des informations générales sur la famille d'alliage étudié dans ce travail, les alliages de Heusler avec un exemple d'application.

Introduction Générale

- le deuxième chapitre concerne le fondement théorique, il présente les méthodes qui reposent sur certain nombre d'approximations, ainsi que la formulation de la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT), les théorèmes de Hohenberg et Kohn, les équations de Kohn et Sham, le calcul de l'énergie d'échange-corrélation ainsi que ces différentes approximations telles que la LDA, la GGA et le principe de la méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FPLAPW).
- Dans Le troisième chapitre, nous présentons et discutons les résultats de nos calculs concernant les propriétés structurales, électroniques, magnétiques respectivement de ces alliages.

Enfin, nous terminons notre travail par une conclusion générale et perspective. Nous évoquerons les prolongements possibles et les développements qui pourraient être envisagés sur la base de cette étude.

Références :

- [1] F. Heusler, W. Starck, E. Haupt, Verh DPG 5 220 (1903).
- [2] R. A. de Groot and F. M. Mueller, —New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets,|| Phys. Rev. Lett., vol. 50, no. 25, pp. 2024–2027, Jun (1983).
- [3] H.Tuzcuoglu. Corrélation entre les propriétés structurales et magnétiques des couches minces et nanostructures de Co_2FeAl . Thèse de doctorat : Spécialité Physique. Université Paris Nord-Paris XIII (2014).

Chapitre I :

Les Alliages d'Heusler et Le Magnétisme

I. Introduction

En 1903, Fritz Heusler a découvert qu'un alliage avec une formule de type Cu_2MnAl se comporte comme un matériau ferromagnétique, sans avoir aucun élément ferromagnétique comme Fe, Co, Ni et Gd. Ainsi, ce composé connu comme alliage Heusler a été démontré pour former l'antiphase thermique limitée, qui peut être utilisé pour les matériaux à mémoire et réfrigération magnétique. Les alliages Heusler ont ensuite attiré plus d'attention de la communauté spintronique depuis la première prédiction de la semi- métallicité sur un semi Heusler NiMnSb par Groot et al en 1983 [1]. Les alliages Heusler sont donc connus pour être l'un des meilleurs ferromagnétiques semi-métalliques dans le but d'atteindre 100% de spin polarisation à température ambiante en raison de leur haute température de curie et de grands moments magnétiques intrinsèques. Afin de mettre en œuvre les alliages Heusler en « spintronique », la semi-métallicité doit être maintenue sous sa forme de film mince. Cela nécessite de surmonter les défis majeurs tels que la formation de la phase entièrement ordonnée et le désordre atomique sur les surfaces [2].

I.1. Alliages Heusler

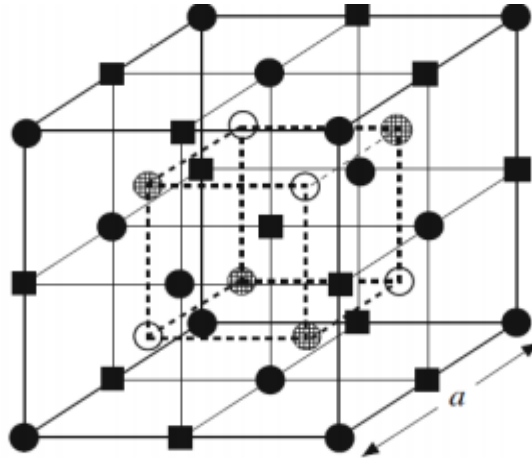
X_2YZ Heusler compounds

H																	He	
2.20																		
Li	Be											B	C	N	O	F	Ne	
0.98	1.57											2.04	2.55	3.04	3.44	3.98		
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar	
0.93	1.31											1.61	1.90	2.19	2.58	3.16		
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr	
0.82	1.00	1.36	1.54	1.63	1.66	1.55	1.83	1.88	1.91	1.90	1.65	1.81	2.01	2.18	2.55	2.96	3.00	
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe	
0.82	0.95	1.22	1.33	1.60	2.16	1.90	2.20	2.28	2.20	1.93	1.69	1.78	1.96	2.05	2.10	2.66	2.60	
Cs	Ba	Hf		Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn	
0.79	0.89	1.30		1.50	1.70	1.90	2.20	2.20	2.20	2.40	1.90	1.80	1.80	1.90	2.00	2.20		
Fr	Ra																	
0.70	0.90																	
		La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu		
		1.10	1.12	1.13	1.14	1.13	1.17	1.20	1.20	1.10	1.22	1.23	1.24	1.25	1.10	1.27		
		Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr		
		1.10	1.30	1.50	1.70	1.30	1.28	1.13	1.28	1.30	1.30	1.30	1.30	1.30	1.30	1.30		

Figure I.1 : Tableau périodique des éléments. Le grand nombre de matériaux Heusler peut être formé par la combinaison des différents éléments selon le schéma de couleurs [3].

La figure I.1 représente une vue d'ensemble des combinaisons possibles d'éléments formant ces matériaux.

Les combinaisons possibles des éléments pouvant formés ces matériaux peuvent être regroupés dans la figure I.2. En effet, un grand nombre d'alliage Heusler peut être formé par la combinaison des différents éléments selon le schéma de couleurs.



	●	○	■	⊗
	A	B	C	D
Semi-Heusler ($C1_b$) : XYZ	X	Y		Z
Full-Heusler ($L2_1$) : X_2YZ	X	Y	X	Z
Heusler quaternaire : $(XX')YZ$	X	Y	X'	Z
Heusler inverse (XA) : X_2YZ	X	X	Y	Z

Figure I.2 : Représentation schématique des différentes structures des composés Heusler [2].

I.1.1. Les alliages demi-Heusler (Half-Heusler)

Défini par la formule chimique XYZ avec une stœchiométrie (1 :1 :1) ; dans le cas général, ces alliages peuvent être compris comme des composés constitués de deux parties, une partie covalente et l'autre partie ionique. Les atomes X et Y ont un caractère cationique distinct, alors que Z peut être considéré comme l'équivalent anionique [4, 5, 6].

Les éléments X et Y peuvent être des éléments d'un groupe principal, des métaux de transition ou des éléments des terres rares. L'élément Z est un élément d'un groupe principal qu'il est plus électro-négatif comme le Ge, Sn, Sb.

Les alliages demi-Heusler se cristallisent dans une structure cubique non-centrosymétrique (groupe spatial numéro 216, F-43m, $C1_b$) [4] où deux éléments forment une structure NaCl et le troisième occupe quatre sites tétraédrique du réseau (1/4,1/4,1/4).

Chapitre I : Les Alliages d'Heusler et Le Magnétisme

Ce type de structure peut être caractérisé par l'interpénétration de trois sous-réseaux cubique à faces centrées, dont chacun est occupée par les atomes X, Y et Z [7], ce cas de figure caractérise ce type de structure. Les positions de Wyckoff sont 4a (0, 0, 0), 4b (1/2,1/2,1/2), et 4c (1/4, 1/4, 1/4).

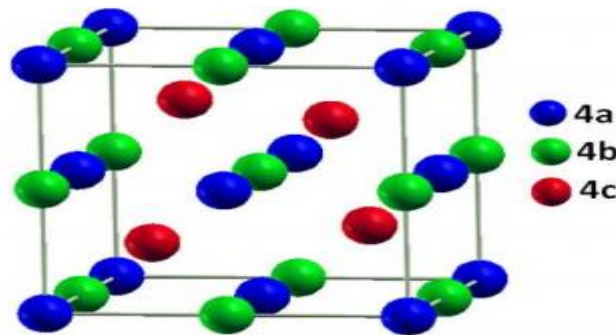


Figure I.3 : structure de demi-Heusler (Half-Heusler).

On trouve, trois arrangements atomiques différents et possibles dans ce type de structure comme indiquant dans le tableau suivant :

	4a	4b	4c
I	X	Y	Z
II	Z	X	Y
III	Y	Z	X

Tableau I.1 : Différents type d'occupations des sites non équivalents dans la structure de type C1b.

I.1.2. Les alliages Heusler (Full-Heusler)

Ce type est connu par sa formule générale X_2YZ avec une stœchiométrie (2 :1 :1), où X et Y sont souvent des métaux de transition et Z est un élément non magnétique du groupe III, IV ou V dans le tableau périodique. Dans des cas rarissimes, l'élément Y peut être remplacé soit par un élément des terres rares, soit par un métal alcalino-terreux.

Ces composés se cristallisent dans la structure cubique dans le groupe d'espace cubique $Fm\bar{3}m$ (groupe d'espace N° 225) [4], avec un prototype Cu_2MnAl noté souvent (L21) Dans ce prototype les atomes X occupent les sites tétraédriques (1/4, 1/4, 1/4), les atomes Y se trouvent au niveau des sites octaédriques (1/2,1/2,1/2) et les atomes Z sont placés au sommet (0, 0, 0) et au centres des faces.

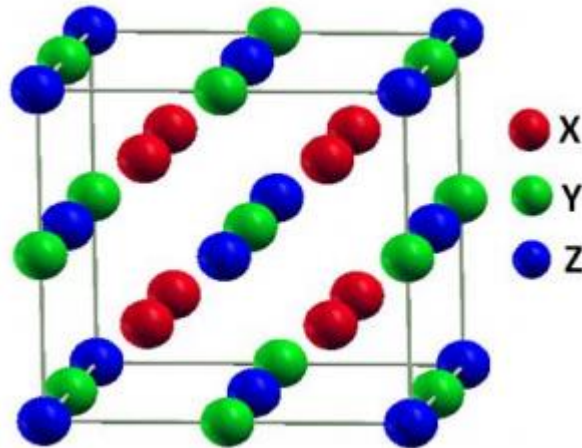


Figure I.4 : structures d'Heusler (Full-Heusler).

Type des phases structurales des alliages Full-Heusler

Généralement les atomes dans les alliages d'Heusler peuvent s'arranger sous plusieurs phases cristallographiques en fonction de l'ordre des atomes au sein de la maille cristalline où on distingue [4,5] :

- ♣ La phase L21 de type Cu_2MnAl qui a été expliqué précédemment, où tous les atomes sont parfaitement ordonnés.
- ♣ La phase B2 de type CsCl , où les sites correspondants aux atomes Y et Z sont occupés d'une manière aléatoire par ces deux atomes.
- ♣ La phase C1 de type CaF_2 , les sites correspondants aux atomes X et Z sont occupés d'une manière aléatoire par ces deux atomes.
- ♣ La phase B32 a de type NaTl où les atomes X qui occupent le réseau cfc, sont mélangés avec les atomes Y, alors que les atomes X sur les sites tétraédriques sont mélangés avec les atomes Z.
- ♣ La phase DO3 de type BF_3 , les atomes X et Y ou les atomes X et Z sont distribués de façon aléatoire.
- ♣ La phase A2 de type W (tungstène) où tous les sites atomiques sont occupés par hasard par les trois types d'atomes.

Les six phases sont représentées sur la figure suivante :

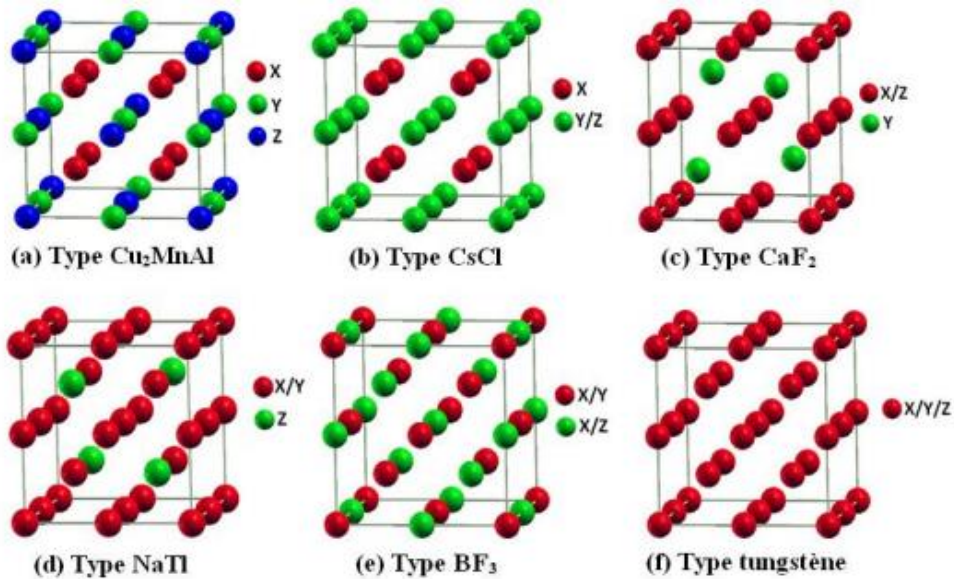


Figure I.5 : Les différents types de désordre pouvant survenir dans la structure (half/full) Heusler : (a) désordre de type Cu_2MnAl , (b) désordre de type CsCl , (c) désordre de type CaF_2 , (d) désordre de type BF_3 , (e) désordre de type NaCl et (f) désordre de type tungstène.

I.1.3. Les alliages Heusler quaternaires

Il existe une autre famille pour les alliages d'Heusler, c'est le cas de composés Heusler quaternaires où il y a quatre atomes de nature chimique différentes, leur formule générale est $\text{XX}'\text{YZ}$, où X et X' sont situés dans les positions 4a et 4d, respectivement, l'élément Y est placé sur les positions 4b tandis que l'élément Z est placé sur les positions 4c. Cette structure présente le prototype LiMgPbSb connu par la phase Y (groupe d'espace N° 216).

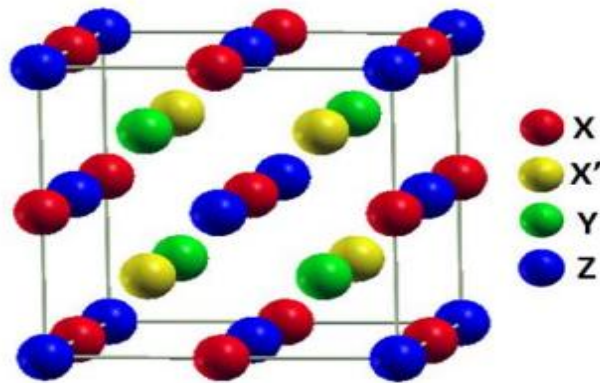


Figure I.6 : structure d'Heusler quaternaire.

I.2. Le Magnétisme et les alliages de Heusler

Les alliages de Heusler ont attiré la communauté scientifique en 1903, lorsque F. Heusler trouva ferromagnétique [8,9]. Cependant, il a fallu trois décennies jusqu'à ce que la structure cristalline a été déterminée comme structure cubique à face centrée [10,11]. Malheureusement, ils sont tombés dans l'oubli dans les décennies suivantes, et seuls quelques rapports sur la synthèse de nouveaux composés Heusler ont été publiés dans les années 1970 [12]. Il a fallu attendre la prédiction du ferromagnétisme semi-métallique dans MnNiSb par de Groot et al [1]. [13] et dans Co₂MnSn par Kübler et al. [14] en 1983, pour que les matériaux Heusler retrouvent un intérêt scientifique.

Les matériaux XYZ présentent un sous-réseau magnétique puisque seuls les atomes sur les sites octaédriques peuvent transporter un moment magnétique, comme indiqué sur la figure I.7.

Dans les composés Heusler X₂YZ la situation est complètement différente à cause des deux atomes X qui occupent les sites tétraédriques, ce qui permet une interaction magnétique entre les atomes X et la formation d'un second sous-réseau magnétique plus délocalisé (Figure I.7). En raison de ces deux sous-réseaux magnétiques différents, les composés Heusler X₂YZ peuvent montrer toutes sortes de phénomènes magnétiques, aujourd'hui plusieurs types sont connus tel que ferromagnétisme, ferrimagnétisme et ferromagnétisme semi-métallique.

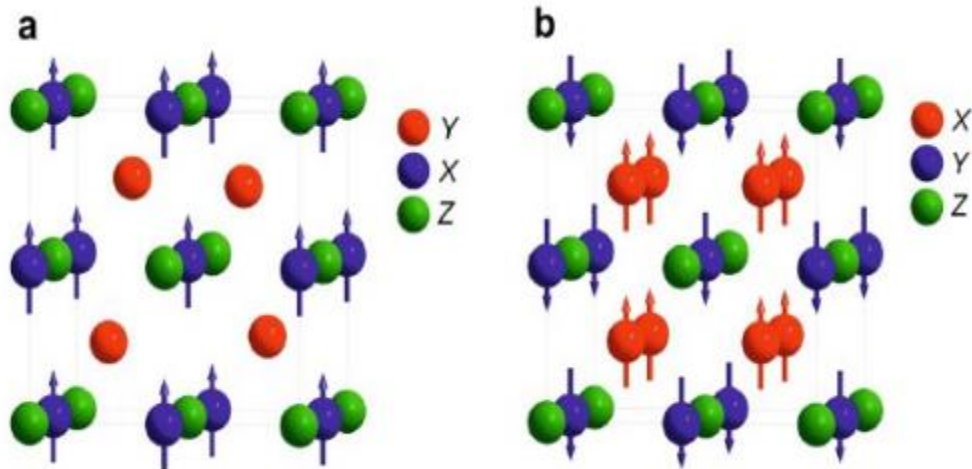


Figure I.7 : (a) composé demi-Heusler XYZ présente un seul sous-réseau magnétique puisque seuls les atomes sur les sites octaédriques portent un moment magnétique localisé. (b) les composés X₂YZ de Heusler ont deux sous-réseaux magnétiques qui peuvent se coupler ferromagnétique ou antiferromagnétique [13].

I.3. Classification des comportements magnétiques

On sait que l'atome est constitué d'un noyau autour duquel des électrons tournent, et d'après la loi d'Ampère [15,16], ce mouvement crée un moment magnétique appelé « moment orbital ». En parallèle, l'électron fait un mouvement de rotation sur lui-même en provoquant un autre moment magnétique dit « moment de spin » [17], ces deux moments magnétiques se composent pour donner le moment magnétique atomique qui est l'origine du magnétisme [18].

I.3.1. Le comportement diamagnétique

Le diamagnétisme correspond aux atomes non magnétiques comme le cuivre et le silicium où tous les électrons sont appariés, donc ils ne disposent pas de moments magnétiques permanents. L'origine de ce phénomène est dû à la déformation des orbitales atomiques de manière que la circulation des électrons crée une très faible aimantation qui s'oppose au champ d'excitation, cette aimantation disparaît lorsque le champ n'est plus appliqué.

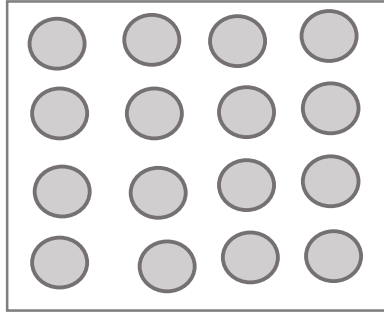


Figure I.8 : Diamagnétisme : réseau de spins.

Le phénomène du diamagnétisme apparaît dans toute la matière atomique, mais il est masqué par les effets du paramagnétisme ou du ferromagnétisme lorsque ceux-ci coexistent avec lui dans le matériau [19, 20].

I.3.2. Le comportement paramagnétique

Les matériaux paramagnétiques comportent des atomes magnétiques qui possèdent un moment magnétique permanent où il y a des électrons non-appariés (métaux de transition,... etc.), le moment magnétique atomique n'est pas nul mais les moments de l'ensemble des atomes est nul.

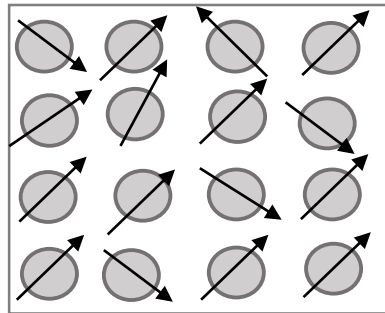


Figure I.9 : Paramagnétisme : réseau de spins.

Ces moments n'interagissent pratiquement pas entre eux, et peuvent même s'orienter librement dans n'importe quelle direction.

Sous l'effet du champ magnétique appliqué, ces moments magnétiques élémentaires d'origine spin et orbital, tendent à s'aligner en même sens que le champ extérieur [21], ce qui augmente l'intensité du champ à l'intérieur du matériau.

Le paramagnétisme est déterminé par les propriétés des atomes individuels. L'effet diamagnétisme existe, mais il est couvert par l'effet dominant du paramagnétisme.

I.3.3. Le comportement ferromagnétique

Ces matériaux sont aussi composés d'atomes ayant des moments magnétiques permanents identiques mais orientés de façon parallèle ce qui résulte une aimantation globale non nulle en absence du champ. Ceci est dû aux interactions d'échange positives entre atomes voisins. L'origine de ce comportement ne peut être interprétée de façon classique, et ne peut être décrit que dans le cadre de la théorie quantique [22].

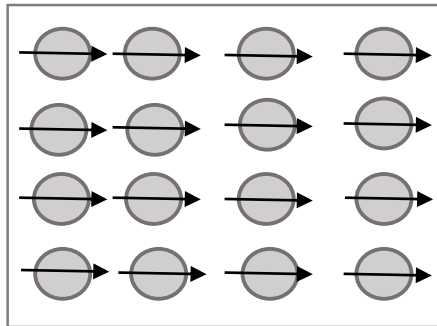


Figure I.10 : Ferromagnétisme : réseau de spins.

-A l'échelle macroscopique et en absence du champ magnétique extérieur, un corps ferromagnétique possède une aimantation nulle, ceci résulte du fait que le milieu se désorganise spontanément en régions connus par les domaines de Weiss dans lesquels existe l'aimantation à saturation, cet arrangement permet de diminuer l'énergie totale du système, car les aimantations des différents domaines ont des directions aléatoires, de sorte que leur résultante est statistiquement nulle. Ces domaines sont séparés par des parois, dites parois de Bloch dans lesquelles l'aimantation tourne d'un domaine à l'autre. Le procédé de l'aimantation est de convertir l'échantillon à partir d'un état multi-domaine à un seul domaine magnétisé dans la même direction que le champ appliqué [23,24].

-On distingue deux types de matériaux ferromagnétiques [25] :

♣ **Les ferromagnétiques doux** : dans cette catégorie les moments magnétiques d'un matériau s'alignent facilement sous l'effet du champ extérieur leur cycle d'hystérésis est étroit, car leur champ coercitif est faible.

♣ **Les ferromagnétiques durs** : dans ce type le matériau nécessite un champ d'excitation important pour aligner son aimantation, il est caractérisé par des cycles d'hystérésis larges et par des champs coercitifs élevés. Ils sont souvent utilisés pour faire des aimants permanents.

I.3.4. Le comportement antiferromagnétique

Ces matériaux composés d'atomes ont des moments magnétiques permanents identiques mais orientés de façon antiparallèle en deux sous-réseaux d'aimantations égales et opposées, ce qui résulte une aimantation globale nulle en absence du champ et ceci est dû aux interactions d'échange négatives entre atomes voisins.

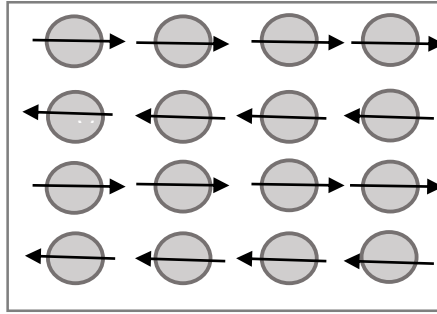


Figure I.11 : Antiferromagnétisme : réseau de spins.

Un assez grand nombre d'oxydes, de chlorures et autres composés des métaux de transition sont antiferromagnétiques.

I.3.5. Le comportement ferrimagnétique

Les matériaux ferrimagnétiques sont également composés de deux sous-réseaux de nature différente où le moment total de chaque sous-réseau est différent.

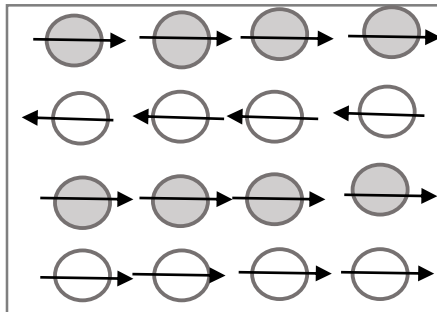


Figure I.12 : Ferrimagnétisme : réseau de spins.

Les ferrimagnétiques sont en général des isolants. Les ferrites font parties des matériaux ferrimagnétiques, ils sont spécialement utilisés en électronique à haute fréquence en raison de leur forte résistivité [26].

I.4. Semi-métallicité des alliages Heusler

Terme de semi-métallicité a été introduit pour la première fois par Groot et al [1] en s'intéressant au calcul de la structure de bande d'alliages semi-Heusler NiMnSb [1]. Les matériaux ferromagnétiques conventionnels présentent une densité d'état électronique ($N(E_F)$) au niveau de Fermi pour les électrons de spin majoritaires (up : $N^\uparrow(E_F)$) et de spin minoritaires (down : $N^\downarrow(E_F)$). La polarisation P en spin, qui mesure l'asymétrie en spin, peut se définir par l'expression [27] :

$$P = \frac{P^\uparrow(E_F) - P^\downarrow(E_F)}{P^\uparrow(E_F) + P^\downarrow(E_F)} \quad (I. 1)$$

Pour ($P=1$), les matériaux semi-métalliques montrent des propriétés de conduction complètement différentes entre spins minoritaires et spins majoritaires. Ils présentent ainsi une propriété métallique pour une direction de spin (densité d'état non-nulle au niveau de Fermi) et une propriété semi-conductrice ou même isolante pour l'autre direction de spin par conséquent, un taux de polarisation en spin de 100% (voir Figure I.13).

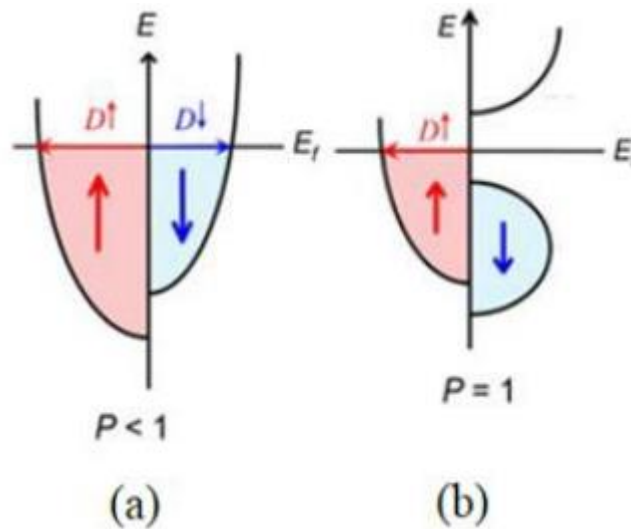


Figure I.13 Structure de bande pour un matériau (a) ferromagnétique conventionnel et (b) semi métallique.

Cependant, un grand nombre de composés, tels que les alliages Heusler, CrO₂ [28] ou le graphène [29] sont considérés comme étant des semi-métaux, depuis l'étude de Groot [1] et grâce aux propriétés de conduction, les matériaux semi-métalliques peuvent potentiellement posséder une

polarisation en spin de 100%, tout en envisageant de forts effets magnétorésistifs (magnétorésistance tunnel et magnétorésistance géante).

La structure électronique joue alors un rôle important dans la détermination des propriétés magnétiques et de semi-métallicité des alliages Heusler. Après les premières études des alliages Heusler, dans les années 70, les premières indications de semi-métallicité sont menées sur les couches de Co_2MnAl et de Co_2MnSn par Kübler [30] et de Co_2MnSi , Co_2MnGe par Ishida [31]. Le composé Co_2FeSi [32], [33] Orésente aussi, expérimentalement et théoriquement, un comportement semi-métallique.

I.5. Le ferromagnétisme semi-métallique

La fonctionnalité ferromagnétisme demi-métallique présente une asymétrie entre les états de spin up et de spin down au niveau de la structure de bandes énergétiques, ce qui résulte des propriétés de conduction totalement différentes entre les spins minoritaires et les spins majoritaires. Plus précisément, la demi-métallicité s'agit d'un état de la matière où certains matériaux comme les composés d'Heusler montrent des propriétés métalliques pour une direction de spin, tandis qu'ils présentent des propriétés semi-conductrice ou même isolante dans l'autre orientation de spin. Ceci donne lieu à des polarisations des électrons de conduction au niveau de Fermi qui peuvent atteindre les 100%, envisageant alors de forts effets magnétorésistifs (magnétorésistance tunnel et magnétorésistance géante). La classification citée ci-dessus donne les différents types de ferromagnétisme demi-métallique [4].

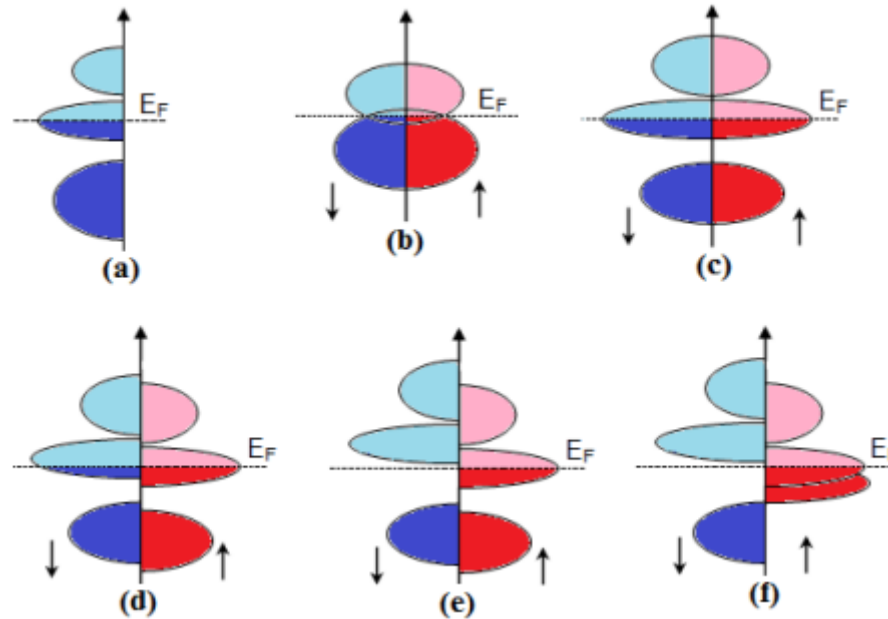


Figure I.14 : Illustration schématique de la densité des états (a) d'un métal, (b) semi-métal, (c) un métal (spin polarisé), (d) un ferromagnétique, (e) un ferromagnétique demi-métallique, et (f) un ferrimagnétique demi-métallique [4].

Cette figure donne une représentation simplifiée de la densité d'états (DOS) de : **(a)** un métal avec une densité d'états au niveau de Fermi, **(b)** un semi-métal avec un petit chevauchement (1%), **(c)** un métal (spin polarisé) où les deux états sont identiques dans les deux directions de spin Up et Down et tous sont aussi occupés, **(d)** la DOS d'un composé ferromagnétique, dans lequel les états majoritaires et les états minoritaires sont décalés les uns par rapport aux autres, conduisant à une aimantation mesurable, **(e)** un demi-métal ferromagnétique (HMF) qui joue un rôle d'un métal pour une orientation de spin et comme un isolant pour l'autre orientation de spin, enfin **(f)** le cas d'un demi-métal ferrimagnétique [4].

I.6. Le comportement de Slater-Pauling

Les alliages Heusler sont aussi des composés intermétalliques à base de métaux de transition et ils présentent plutôt un magnétisme localisé par rapport à un caractère itinéraire. L'explication de l'origine du magnétisme de ces alliages est très compliquée mais leurs moments magnétiques varient selon le nombre d'électrons de valence (N_v) et de la structure cristalline. Ce comportement est appelé Slater-Pauling [34-35-36].

Chapitre I : Les Alliages d'Heusler et Le Magnétisme

Le moment magnétique d'un métal peut être estimé à partir du nombre d'électrons de valence d'après Slater et Pauling [37-38].

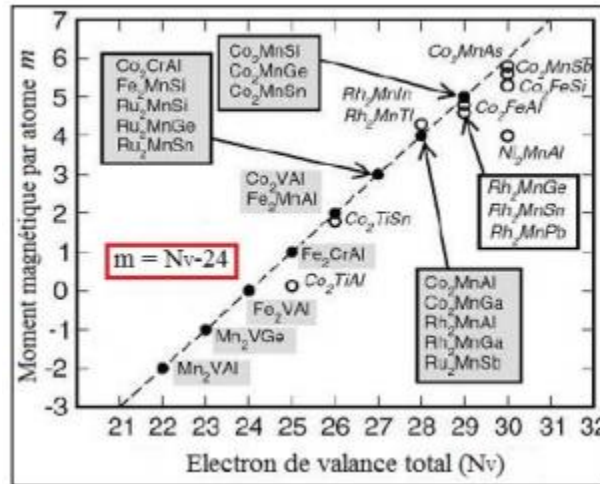


Figure I.15 : La courbe de Slater-Pauling pour les alliages 3d en fonction du nombre d'électrons de valence [39].

Slater et Pauling ont découvert que le moment magnétique d'un métal 3d peut être estimé à partir du nombre d'électrons de valence. La figure I.15 présente le moment magnétique total en fonction du nombre d'électrons de valence (comportement Slater Pauling). Cette courbe contient de deux parties : la partie positive ($+\mu_B/1e$) et la partie négative ($-\mu_B/1e$). Les alliages se plaçant sur la courbe négative présentent un magnétisme itinérant tandis que les composants se situant sur la courbe positive montrent plutôt un magnétisme localisé. Le moment magnétique par atome est assumé être donné par la relation [40] :

$$m \approx Nv - 6 \tag{I.2}$$

Où Nv est le nombre d'électrons de valence

Comme présenté plus haut, les alliages Heusler à base de cobalt montrent huit états d'orbitales mineures contenues dans la maille. Il existe un état doublement dégénéré de plus basse énergie e_g , un état triplement dégénéré de plus basse énergie t_{2g} et un état triplement dégénéré de plus haute énergie t_{1u} en dessous du niveau de Fermi. À côté des états d, il y a un état s et trois états p qui ne sont pas comptés dans la structure du gap. Finalement, nous avons douze états mineurs occupés par maille. Le moment magnétique total est donné par le nombre d'électrons majoritaires en excès (N_{maj}) par rapport aux électrons mineurs (N_{min}) [41] :

$$m = N_{maj} - N_{min} \quad (I.3)$$

Le nombre d'électrons de valence par maille est déterminé par :

$$N_V = N_{maj} + N_{min} \quad (I.4)$$

Et le moment magnétique total devient :

$$m = N_V - 24 \quad (I.5)$$

Cette relation est dite règle de Slater-Pauling généralisée, équivalente au comportement Slater-Pauling pour les alliages binaires des métaux de transition [42]. Puisque les alliages Heusler à base de cobalt possèdent un nombre de valence entier, cette règle est utilisée pour déterminer leurs moments magnétiques [43], [44].

La figure I.15 montre que le moment magnétique des alliages Heusler est également contrôlé par l'atome Z. Par exemple le Si, qui a 4 électrons de valence, possède un moment magnétique plus élevé par rapport aux composés Heusler équivalents contenant Al comme élément Z. Cet effet provient de l'accroissance du nombre d'électrons d'associés à l'atome Z. Comme indiqué plus haut, les changements structuraux des alliages Heusler peuvent avoir un effet important sur leurs propriétés magnétiques. Tous les échanges atomiques peuvent changer l'hybridation locale des orbitales. Les moments magnétiques provenant des électrons de valence localisés au niveau des orbitales d peuvent être affectés par cet échange interatomique.

Le changement de paramètre de maille peut nous servir à décrire le niveau de désordre structural. Par exemple, l'alliage Co_2FeSi présente un moment magnétique de $6 \mu_B/\text{f.u.}$ pour la phase L21 [45]. Dans le cas de l'échange entre les atomes Co et Fe, le moment magnétique est réduit à $5.5 \mu_B/\text{f.u.}$, par contre lors d'un échange entre Co et Si, le désordre conduit à une augmentation du moment magnétique à $6.05 \mu_B/\text{f.u.}$

I.7. Les applications

Tout d'abord commencer en 1988, année de la découverte de la magnétorésistance géante par les équipes d'Albert Fert [46] et de Peter Grunberg [47], et pour laquelle le prix Nobel de Physique 2007 leur a été attribué. Cet effet était observé dans une structure composée des multicouches ferromagnétiques et il est réellement le point de départ de la spintronique qui peut se décrire comme une électronique qui contrôle non seulement la charge, mais aussi le spin des électrons, simultanément

afin de traiter et sauvegarder les informations. Le concept général de la spintronique est de placer des matériaux ferromagnétiques sur le trajet des électrons et d'utiliser l'influence du spin sur la mobilité des électrons dans ces matériaux. Cette influence, d'abord suggérée par Mott en 1936 [48], a été ensuite démontrée expérimentalement et décrite théoriquement à la fin des années 60 [49, 50].

Aujourd'hui la spintronique possède des applications importantes, les plus répandues étant la lecture des disques durs par la magnétorésistance géante (GMR), la magnétorésistance tunnel (TMR : Tunnel Magneto Résistance) et l'écriture des mémoires magnétiques (MRAM : Magnetoresistive Random Access Mémoires) dans nos ordinateurs.

I.7.1. La magnétorésistance GMR

La magnétorésistance géante a été mise en évidence expérimentalement en 1988 dans des empilements de couches de fer et de chrome [51,52]. Il se manifeste par une variation de la résistivité électrique du système en fonction des orientations des différentes aimantations de chaque couche, de multicouches métalliques. Les couches ferromagnétiques sont séparées par des couches conductrices non magnétiques comme le Fe et le Cr [53,54], l'une de ces deux couches ferromagnétiques doit être capable de s'orienter facilement avec un champ appliqué d'intensité faible, cette dernière est appelée douce, tandis que la deuxième couche ferromagnétique doit garder une aimantation indépendante de la première couche [52-54].

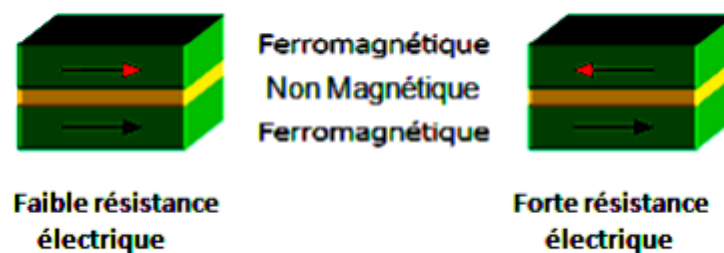


Figure I.16 : les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction géante magnétique.

En effet, deux configurations possibles concernant ce type d'empilement, dans la configuration avec des couches à magnétisation parallèle où la direction de l'aimantation est identique dans les deux couches magnétiques, les électrons de spin majoritaire traversent la structure facilement sans subir

d'évènement de diffusion, cela impliquant un état de basse résistance, tandis que les électrons de spin minoritaire sont plus fortement diffusés dans la configuration antiparallèle, les électrons sont tous diffusés et donc la résistance de la structure est plus élevée [54].

I.7.2. La magnétorésistance TMR

Un autre phénomène a été décrit pour la première fois par l'observation du Jullière en 1975, dans une jonction de type métal/isolant/métal en Fe/Ge/Co [55], ce dernier observe un signal de magnétorésistance tunnel de 14 % à basse température, et pour de très faibles tensions appliquées où les deux électrodes sont de nature ferromagnétique [55,56]. Pour rendre compte de ce phénomène, Jullière a développé un modèle basé sur deux hypothèses en s'inspirant du travail de ses prédécesseurs, dans première qu'il y a une conservation du spin des électrons pendant le transport tunnel. Tandis que la deuxième, explique que la conductance dépend, pour chaque configuration magnétique, directement de la densité d'états électroniques des électrodes et le courant tunnel dans chaque canal est proportionnel au produit des densités d'état au niveau de Fermi dans les deux électrodes pour la direction de spin correspondante [56].

Une jonction tunnel magnétique est une hétéro structure formée d'une fine couche isolante de quelques nanomètres d'épaisseur, typiquement du MgO ou de l'Al₂O₃ prise en sandwich entre deux couches métalliques magnétiques et considérée comme une barrière qui autorise le transport électronique par effet tunnel [56].

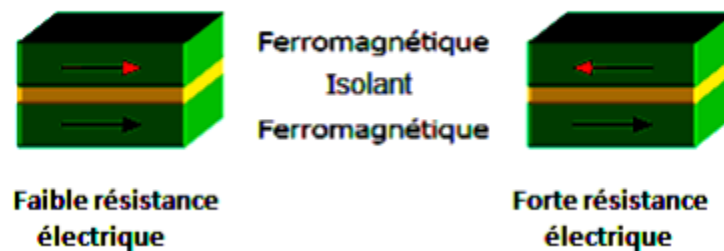


Figure I.17 : les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction tunnel magnétique.

Les couches ferromagnétiques peuvent avoir leurs aimantations, soit dans une configuration parallèle où il existe une forte densité d'états dans les deux électrodes pour les électrons d'un des deux canaux alors que la résistance est faible, soit dans une configuration antiparallèle où le courant tunnel

Chapitre I : Les Alliages d'Heusler et Le Magnétisme

est limité par la densité d'états la plus basse donc la résistance est élevée. Plus quantitativement, on peut écrire le courant total comme la somme des courants des deux directions de spin.

Si un matériau présentait, à l'énergie de Fermi, une densité électronique nulle pour un type de spin et non nulle pour l'autre (matériau demi métallique), la TMR serait théoriquement infinie et le courant serait polarisé à 100%. Les matériaux qui ont été prédits comme étant demi métalliques les plus connus sont Fe_3O_4 , le CrO_2 ou les alliages Heusler. Ces derniers ont suscité un grand intérêt ces dernières années. Même si des TMR élevées ont été observées dans des MTJ avec des électrodes d'alliage Heusler.

Une valeur infinie de la TMR est prédite, dont la polarisation en spin théorique au niveau de Fermi est de 100 % concernant des matériaux demi-métalliques.

Références

- [1] R. A. de Groot and F. M. Mueller, —New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets, *Phys. Rev. Lett.*, vol. 50, no. 25, pp. 2024–2027, Jun. (1983)
- [2] C. Felser, H. Atsufumi. Heusler Alloys Properties, Growth, Applications. Springer Series in Materials Science 222 (2016).
- [3] A. Hirohata, M. Kikuchi, N. Tezuka, K. Inomata, J. Claydon, Y. Xu, and G. Vanderlaan, —Heusler alloy/semiconductor hybrid structures, *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, vol. 10, no. 2, pp. 93–107, Apr. (2006).
- [4] H. ABBASSA, « Contribution à l'étude des propriétés physico-chimiques des alliages d'Heusler », Université de Mostaganem, Thèse (2015).
- [5] H. ZENASNI, « Etude théorique des propriétés magnétique électronique et structurales des alliages Heusler », Université de Tlemcen, Thèse (2013).
- [6] S. Sakurada, N. Shutoh, *Appl Phys Lett* vol.86, pp 082105, (2005).
- [7] P. J. Webster, K. R. A. Ziebeck, *Landolt-Börnstein - groupe III condensed matter*, vol. 19C. Berlin : Springer; vol.19 ,pp. 75-184, (1988).
- [8] M. Ziese and M. J. Thornton (ed) *Spin Electronics* (Berlin : Springer) (2001).
- [9] C Chappert, A Fert and F N van Dau *Nature Mater*. Vol.6, pp.813, (2007).
- [10] N F Mott *Proc. Phys. Soc.* vol. 47, pp.571, (1935).
- [11] S. Brooks, J.M Williams, *Phys. Stat Sol A* vol.32, pp.413, (1975).
- [12] P.J Webster, *J Phys Chem Solids* vol.32, pp 1221, (1971).
- [13] J. Kübler, A.R. Williams, C.B. Sommers, *Phys Rev B* vol.28, pp.1745, (1983).
- [14] C.M. Fang, G.A. de Wjjs, R.A. de Groot, *J Appl Phys* vol.91, pp.8340, (2002).
- [15] J. Thurin, « Electricité générale », 2ème édition, Eyrolles, Paris, (1974).
- [16] C. Kittel, « Physique de l'état solide », Dunod, Paris, (1983).
- [17] D. M. Pozar, « Microwave Engineering », 3ème édition, John Wiley et Sons Inc, USA, (2005).
- [18] G. Goudet, « L'électricité et la matière », du traité d'électricité, Masson, Paris, Vol.3, (1975).
- [19] E. Borody, « Electromagnétisme théorie et applications », Presse de l'université du Québec.
- [20] O. HERNANDEZ, « Elaboration et étude des propriétés physiques de couches minces monocristallines d'alliage de Heusler à faible amortissement magnétique pour composants hyperfréquences », Université Toulouse, France, Thèse (2013).
- [21] J. Thurin, « Electricité générale », 2ème édition, Eyrolles, Paris (1974).
- [22] H. Gie, J. P. Sarmant : *Electromagnétisme volume 2 Technique et documentation*, Lavoisier.

- [23] B. D. Cullity and C. D. Graham, « Introduction to magnetic materials », 2ème édition, John Wiley et Sons, Inc, USA, (2009).
- [24] L. Thourel, « Dispositifs à ferrites pour micro-ondes », Masson, Paris, (1969).
- [25] M. Bihane, « Contribution à l'étude des dispositifs planaires micro-ondes à ferrites pour des applications en télécommunications », thèse de magistère, Université Abou Bakr Belkaid, Tlemcen, (2006).
- [26] A. MANSRI, « Processus d'aimantation dans les matériaux doux à base de fer Représentation des Pertes en régime dynamique », Université Bourdj Badji Mokhtare, Thèse (2014).
- [27] M. Hehn, F. Montaigne, and A. Schuhl, —Magnétorésistance géante et électronique de spin. || Techniques de l'Ingénieur l'expertise technique et scientifique de référence, 10- Nov-(2002).
- [28] J. M. D. Coey and M. Venkatesan, —Half-metallic ferromagnétisme : Example of CrO₂ (invited), || J. Appl. Phys., vol. 91, no. 10, p. 8345, (2002).
- [29] Y.-W. Son, M. L. Cohen, and S. G. Louie, —Half-metallic graphene nanoribbons, || Nature, vol. 444, no. 7117, pp. 347–349, Nov. (2006).
- [30] J. Kübler, A. William, and C. Sommers, —Formation and coupling of magnetic moments in Heusler alloys, || Phys. Rev. B, vol. 28, no. 4, pp. 1745–1755, Aug. (1983).
- [31] S. Ishida, T. Masaki, S. Fujii, and S. Asano, —Theoretical search for half-metallic films of Co₂MnZ (Z= Si, Ge), || Phys. B Condens. Matter, vol. 245, no. 1, pp. 1–8, Jan. (1998).
- [32] K. Inomata, S. Okamura, A. Miyazaki, M. Kikuchi, N. Tezuka, M. Wojcik, and E. Jedryka, —Structural and magnetic properties and tunnel magnetoresistance for Co₂ (Cr,Fe)Al and Co₂FeSi full-Heusler alloys, || J. Phys. Appl. Phys., vol. 39, no. 5, pp. 816–823, Mar. (2006).
- [33] Z. Gercsi and K. Hono, —Ab initio predictions for the effect of disorder and quaternary alloying on the half-metallic properties of selected Co₂Fe-based Heusler alloys, || J. Phys. Condens. Matter, vol. 19, no. 32, p. 326216, Aug. (2007).
- [34] I. Galanakis, P. Dederichs, and N. Papanikolaou, —Slater-Pauling behavior and origin of the half-metallicity of the full-Heusler alloys, || Phys. Rev. B, vol. 66, no. 17, Nov. (2002).
- [35] J. Slater, —The Ferromagnetism of Nickel, || Phys. Rev., vol. 49, no. 7, pp. 537–545, Apr. (1936).
- [36] L. Pauling, —The Nature of the Interatomic Forces in Metals, || Phys. Rev., vol. 54, no. 11, pp. 899–904, Dec. (1938).
- [37] J.C. Slater, Phys Rev 49,537, (1936).
- [38] L. Pauling, Phys Rev 54, 899, (1938).
- [39] I. Galanakis, P. Dederichs, and N. Papanikolaou, “Slater-Pauling behavior and origin of the half-metallicity of the full-Heusler alloys,” Phys. Rev. B, vol. 66, no. 17, Nov, (2002).

- [40] S. Wurmehl, G. Fecher, H. Kandpal, V. Ksenofontov, C. Felser, H.-J. Lin, and J. Morais, "Geometric, electronic, and magnetic structure of Co_2FeSi : Curie temperature and magnetic moment measurements and calculations," *Phys. Rev. B*, vol. 72, no. 18, Nov.(2005).
- [41] S. Trudel, O. Gaier, J. Hamrle, and B. Hillebrands, "Magnetic anisotropy, exchange and damping in cobalt-based full-Heusler compounds : an experimental review," *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 19, p. 193001, May(2010).
- [42] J. Kübler, A. William, and C. Sommers, "Formation and coupling of magnetic moments in Heusler alloys," *Phys. Rev. B*, vol. 28, no. 4, pp. 1745–1755, Aug.(1983).
- [43] J. Kübler, "First principle theory of metallic magnetism," *Phys. BC*, vol. 127, no. 1–3, pp. 257–263, Dec. (1984).
- [44] H. Kandpal, G. Fecher, C. Felser, and G. Schönhense, "Correlation in the transitionmetal-based Heusler compounds Co_2MnSi and Co_2FeSi ," *Phys. Rev. B*, vol. 73, no. 9, Mar. (2006).
- [45] M.N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen van Dau, F. Petroff, P. Etienne, *Phys Rev Lett* vol.61, pp.2472, (1988).
- [46] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers, *Phys Rev Lett* vol.57, pp. 2442,(1986).
- [47] N. F. Mott, *Prac Roy. Soc. A*vol.153, pp.699, (1936).
- [48] A. fert et I. A. Campbelle, *Phys. Rev. Lett.* Vol.21, pp. 1190, (1968) *J. physique* 32 (1978), C1 46, *J. phys. F*.vol.6, pp.849, (1976).
- [49] B. Loegel , F. Gautier, *J. phys. Chem. Sol.* Vol.32, pp.2723, (1971).
- [50] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* Vol.61, pp.2472-2475, (1988).
- [51] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn, *Phys. Rev. B* vol.39, pp.4828-4830, (1989).
- [52] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and D. Mauri, *Phys. Rev. B* vol.43, pp.1297-1300, (1991).
- [53] A. Barthélémy, A. Fert, F. Petroff, « Giant Magnetoresistance in Magnetic Multilayers », *Handbook of Magnetic Materials*, Vol.12, p.1, Elsevier, (1999).
- [54] J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M Wong, R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* Vol.74, pp.3273, (1995).
- [55] J.M. De Teresa, A.Barthélémy, A.Fert, J.P. Contour, F. Montaigne, P.Seneor, *Science* 286, 507, (1999).
- [56] M. Jullière, *Phys. Lett.* Vol.54A, pp.225-226, (1975).

Chapitre II :

Théorie et méthode de calculs

II. Théorie et méthode de calculs

II.1. Théorie de la Fonctionnelle de Densité (DFT)

II.1.1. Introduction

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

Dans un système qui possède quelques atomes avec chaque atome possède quelques électrons, il est possible de résoudre l'équation de Schrödinger, mais lorsqu'on parle d'une échelle plus grande, ce calcul devient très compliqué et a mené les scientifiques à revoir le problème quantique à N particules [1].

La théorie de la fonctionnelle de la densité (Density Functional Theory, DFT) est utilisée comme un outil mathématique pour la résolution de ce problème à plusieurs corps, elle fut introduite au milieu des années soixante par Hohenberg et Kohn [2], Kohn et Sham [3,4]. Selon la DFT, il est possible de décrire les propriétés de l'état fondamental d'un solide à partir de sa densité électronique[5].

La théorie de la fonctionnelle de la densité devient plus vite une des méthodes les plus largement utilisées dans les calculs ab-initio de la structure d'atomes, de molécules, de cristaux et de surfaces [6].

II.1.2. L'équation de Schrödinger

L'équation de Schrödinger est l'équation fondamentale de la physique quantique, au même titre que le principe fondamental de la dynamique pour la physique classique. Elle exprime la conservation de l'énergie en termes quantiques. L'équation de Schrödinger est donnée par cette équation :

$$H\Psi = E\Psi \quad (II.1)$$

$$H_{Total} = T_n + V_{n-n} + V_{n-e} + V_{e-e} + T_e \quad (II.2)$$

H : Opérateur Hamiltonien exact du cristal qui résulte de la présence des forces électrostatique d'interaction : répulsion ou attraction suivant la charge des particules (noyaux, électrons).

$$\Psi(r_1 + r_2 \dots \dots \dots + r_N) = \Psi_1(r_1) \Psi_2(r_2) \dots \dots \dots \Psi_N(r_N) \quad (II.3)$$

Ψ : représente la fonction d'onde totale du système.

T_n et T_e : représentent respectivement l'énergie cinétique des noyaux et l'énergie cinétique des électrons.

$$T_n = - \sum_K^M \frac{\hbar^2}{2m_k} \nabla_i^2; T_e = - \sum_i^N \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_i^2 \quad (II.4)$$

V_{ee} : l'énergie potentielle répulsive entre les électrons.

$$V_{ee} = \sum_{i<j} U(\vec{r}_i, \vec{r}_j) = \sum_{i<j} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \quad (II.5)$$

V_{ne} : L'énergie d'attraction électrons-noyaux.

$$V_{ne} = - \sum_{i<k} \frac{Z_k e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_k|} \quad (II.6)$$

V_{nn} : L'énergie potentielle d'interaction entre les noyaux.

$$V_{nn} = \sum_{i<j} U(\vec{R}_i, \vec{R}_j) = \sum_{i<j} \frac{Z_i Z_j e^2}{|\vec{R}_i - \vec{R}_j|} \quad (II.7)$$

Sous cette forme l'équation est trop complexe pour pouvoir résoudre le problème à N corps exactement, et afin de trouver des solutions acceptables, on a besoin de faire des approximations. La première approximation qui peut être introduite est l'approximation de Born-Oppenheimer [7].

II.1.3. L'approximation de Born-Oppenheimer

Puisque la masse du noyau est très lourde devant celles des électrons, l'approximation de Born-Oppenheimer [8] propose de considérer la position des noyaux atomiques comme fixe, ce qui résulte

la négligence du mouvement des noyaux par rapport à celui des électrons autrement dit, On néglige leurs énergies cinétiques et ne prend en compte que celui des électrons dans le réseau rigide périodique des potentiels nucléaires. Dans cette approximation l'énergie potentielle noyaux-noyaux devient une constante, l'hamiltonien devient alors :

$$\hat{H} = T_e + V_{n-e} + V_{e-e} \quad (II.8)$$

Le problème est maintenant purement électronique et néglige les vibrations du réseau, ce qui donne à cette approximation le nom adiabatique. Cependant, le problème est plus simple que l'original, mais toujours difficile à résoudre [7].

II.1.4. Théorèmes de Hohenberg et Kohn

La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est fondée sur les deux théorèmes de Hohenberg et Kohn qui sont relatifs à tout système d'électrons (fermions) dans un champ externe $V_{ext}(r)$ tel que celui induit par les noyaux. Ces théorèmes sont les suivants [2,4] :

Théorème 1 : « Pour un système d'électrons en interaction, le potentiel externe $V_{ext}(r)$ est uniquement déterminé, à une constante près, par la densité électronique de l'état fondamental $\rho_0(r)$. Toutes les propriétés du système sont déterminées par la densité électronique de l'état fondamental $\rho_0(r)$ ».

Théorème 2 : « L'énergie totale du système peut alors s'écrire comme une fonctionnelle de la densité électronique, $E = E[\rho(r)]$, et le minimum de l'énergie totale du système correspond à la densité exacte de l'état fondamental $\rho(r) = \rho_0(r)$ (principe variationnel). Les autres propriétés de l'état fondamental sont aussi des fonctions de cette densité électronique de l'état fondamental ».

$$E(\rho_0) = \min E(\rho) \quad (II.9)$$

ρ_0 : la densité de l'état fondamental.

La fonctionnelle de l'énergie totale de l'état fondamental s'écrit comme suit :

$$E[\rho(r)] = F[\rho(r)] + \int V_{ext}(r)\rho(r)d^3r \quad (II.10)$$

La fonctionnelle $F[\rho]$ est valable pour n'importe quel système à plusieurs électrons. Si la fonctionnelle $F[\rho]$ est connue, alors il est facile d'utiliser le principe variationnel pour déterminer l'énergie totale et la densité électronique de l'état fondamental pour un potentiel extérieur donné. Mais malheureusement, les théorèmes de Hohenberg et Kohn ne donnent aucune indication concernant la forme de $F[\rho]$ [7]. Il est alors nécessaire de trouver des approximations suffisamment permettant de traiter ce problème [5].

II.1.5. Les équations de Kohn et Sham

L'approche de Kohn et Sham (publiée en 1965) [3,4] propose de remplacer un système (gaz d'électrons) en interaction qui est impossible de le résoudre par un autre équivalent fictif où les particules évoluent dans un potentiel effectif (ces particules n'interagissent pas). Ce nouveau système a la même densité $\rho(r)$ que le système réel (en interaction).

Ce concept crée le fondement de calculs ab-initio par la théorie de la fonctionnelle de la densité pour le système interactif qui peut être exprimée par :

$$F[\rho(r)] = T_0[\rho(r)] + E_H[\rho(r)] + E_{xc}[\rho(r)] + V_{ext}[\rho(r)] \quad (II.11)$$

Avec :

$T_0[\rho(r)]$ est l'énergie cinétique du système sans interaction.

$E_H[\rho(r)]$ indique le terme de Hartree (interaction coulombienne classique entre les électrons).

$E_{xc}[\rho(r)]$ une fonctionnelle dite "énergie d'échange et de corrélation" décrivant l'interaction inter-électronique.

$V_{ext}[\rho(r)]$ terme qui inclut l'interaction coulombienne des électrons avec les noyaux et celle des noyaux entre eux.

L'intérêt de la formulation induit par Kohn et Sham, est qu'on peut définir un hamiltonien mono-électronique et écrire les équations de Kohn et Sham mono-électronique qui peuvent être résolues analytiquement [9].

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V_s(\vec{r}) \right] \Phi_i(\vec{r}) = E_i \Phi_i(\vec{r}) \quad (\text{II. 12})$$

Où V_s est le potentiel externe ressenti par les électrons.

L'équation de Schrödinger à résoudre dans le cadre de l'approche de Kohn et Sham est de la forme[4] :

$$\hat{H}_{KS} \Phi_i(\vec{r}) = \varepsilon_i \Phi_i(\vec{r}) \quad (\text{II. 13})$$

Avec $\phi_i(\vec{r})$ est la fonction d'onde à une particule et ε_i est l'énergie d'une particule.

Les particules fictives subissent un potentiel effectif qui est défini par la sommation de trois potentiels :

$$\tilde{V}_{\text{eff}}(\vec{r}) = \tilde{V}_{\text{ext}}(\vec{r}) + \tilde{V}_H(\vec{r}) + \tilde{V}_{XC}(\vec{r}) \quad (\text{II. 14})$$

Les deux termes \tilde{V}_H et \tilde{V}_{XC} s'expriment en fonction de la densité électronique par les relations suivantes [4, 10, 11]

$$\begin{cases} \tilde{V}_H = e^2 \int \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r' \\ \tilde{V}_{xc} = \frac{\delta E_{XC}[\rho]}{\delta \rho(\vec{r})} \end{cases} \quad (\text{II. 15})$$

La densité d'électrons est donnée par la somme de tous les états occupés [12] :

$$\rho(\vec{r}) = \sum_{occ} \Phi_i^*(\vec{r}) \Phi_i(\vec{r}) \quad (\text{II. 16})$$

Le problème qui se pose pour les équations de Kohn et Sham, est que la résolution de ces équations reste impossible puisque la forme analytique du potentiel V_{xc} est inconnue, ce qui conduit à introduire certaines approximations [7].

II.1.6. L'approximation de la densité locale (LDA)

En 1965, Kohn et Sham [13] proposent l'approximation de la densité locale (LDA), où ils supposaient que la variation de la densité électronique est suffisamment lente pour qu'elle soit celle d'un gaz localement homogène avec une énergie donnée par :

$$E_{XC}^{LDA}[\rho(\vec{r})] = \int \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc}^{hom}[\rho(\vec{r})] d^3\vec{r} \quad (\text{II. 17})$$

En supposant que l'énergie d'échange-corrélation par électron dans le gaz réel (à priori inhomogène), $\varepsilon_{xc}(\rho)$, soit égale à l'énergie d'échange-corrélation par électron dans le gaz homogène de même densité $\rho(r)$, $\varepsilon(\rho) \varepsilon_{xc}^{hom}$ alors l'énergie totale d'échange-corrélation du gaz réel vaut [14, 15].

Pour l'énergie de corrélation, des valeurs sont disponibles via les calculs de Monté Carlo quantiques établi par Ceperley et Alder dont les résultats peuvent être interpolés afin d'obtenir une forme analytique. Il existe de nombreux paras métrisations telles que celles de Hedin-Lundqvist, Perdew-Zugner ou Volko-Wilkes-Nusair. L'approximation LDA est insuffisante dans certains cas, à savoir la sous- estimation de l'énergie totale dans le cas des structures Fe (cfc) et Fe (hcp), ajouté à cela une mauvaise description des liaisons faibles. Trouver la fonction $\rho(r)$ n'est pas trivial. Ce travail fait l'objet de nombreuses études qui déterminent les valeurs de ce que l'on appelle la fonctionnelle d'échange et corrélation. Les premières évaluations précises ont été faites en 1980 par D. Ceperley et B.J. Alder [14] ; et par Hedin-lindqvist (1972) [14]. D'autres travaux tels [15] ou [16] précisent, modifient ou corrigent légèrement ces valeurs. Mais les résultats obtenus en utilisant l'une ou l'autre fonctionnelle sont sensiblement équivalents.

II.1.7. L'approximation de la densité de spin locale (LSDA)

Pour l'étude des systèmes magnétiques, l'effet du spin doit être pris en compte, alors le potentiel d'échange et de corrélation dépend expressément des densités électroniques $n\uparrow(r)$ et $n\downarrow(r)$ et les équations de Kohn et Sham peuvent être réécrites de façon indépendante pour les deux orientations du spin. L'approximation qui tient en considération ces effets, est connue sous le nom LSDA (Local Spin Density Approximation).

Dans l'Approximation LSDA, l'énergie d'échange et corrélation est une fonctionnelle des deux densités de spin haut et bas, décrit par la formule [4, 17] :

$$E_{XC}^{LSDA}[\rho_{\uparrow}(\vec{r}), \rho_{\downarrow}(\vec{r})] = \int \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc}^{hom}[\rho_{\uparrow}(\vec{r}), \rho_{\downarrow}(\vec{r})] d^3 \vec{r} \quad (\text{II. 18})$$

$\{\varepsilon_{xc}^{hom}[\rho_{\uparrow}(\vec{r}), \rho_{\downarrow}(\vec{r})]\}$ est l'énergie d'échange et de corrélation par particule d'un gaz d'électrons homogène.

L'approximation LSDA sous-estime les valeurs de gap dans le cas des matériaux fortement corrélés.

II.1.8. L'approximation du gradient généralisé (GGA)

Le problème qui se pose pour un système d'électron réel, est que les densités de charge ne sont pas toujours homogènes, elles varient localement, et sachant que l'approximation de la densité locale n'était pas capable de résoudre ce problème car leurs calculs basés sur une fonctionnelle d'échange et de corrélation définie pour un gaz homogène d'électrons et transformée à des cas réels où le potentiel $V_{xc}(r)$ ne dépend qu'à la densité locale et ne prend pas en compte les variations locales de cette densité [5]. Cela nécessite l'introduction des termes en gradient dans l'expression de l'énergie d'échange et de corrélation afin de traiter le problème d'inhomogénéité de la densité électronique. Cette approximation est connue sous le nom GGA (Generalized Gradient Approximation) qui repose sur l'idée qui consiste à tenir en compte les variations locales de la densité, le terme E_{xc} dans ce cas s'écrit en fonction de la densité électronique et son gradient est sous la forme [4] :

$$E_{XC}^{GGA}[\rho(\vec{r})] = \int \rho(\vec{r}) f_{xc}[\rho(\vec{r}), \nabla\rho(\vec{r})] d^3 \vec{r} \quad (\text{II. 19})$$

Où $f_{xc}[\rho(\vec{r}), \nabla\rho(\vec{r})]$ est une fonction de la densité locale et du gradient de la densité.

Il existe plusieurs paramétrisations de la fonction en GGA [18-19], qui dépendent du choix de l'étude (propriétés structurales et électroniques, structure de bande, ...etc.). La fonctionnelle la plus utilisée par les physiciens est celle proposée par Perdew, Burke et Ernzerhof (notée PBE) [4, 20].

II.1.9. Résolution des équations de Kohn et Sham

La résolution des équations de Kohn et Sham se fait d'une manière itérative et d'après le deuxième théorème de Hohenberg et Kohn (principe variationnel). L'énergie minimale totale du système correspond à la densité exacte de l'état fondamental, l'équation utilisée dans ce calcul est celle définie en (II.11) avec l'injection du terme de l'itération $(i+1)$ ième .

$$\rho_{\text{entrée}}^{i+1} = (1 - \alpha)\rho_{\text{entrée}}^i + \alpha\rho_{\text{sortie}}^i \quad (\text{II. 20})$$

i représente la i ème itération et α un paramètre de mixage.

En utilisant un cycle d'itérations auto-cohérent illustré par l'organigramme de la figure on commence d'abord par une superposition pour construire la densité cristalline initiale $\rho_{\text{entrée}}(r)$ qui est utilisée par la suite pour le calcul du potentiel $V(r)$ qui va être utilisé pour la résolution des équations de Kohn et Sham, et puis la détermination de l'énergie de Fermi. À la fin, une nouvelle densité de sortie doit être engendrée et éprouvée suivant des critères de convergence. Si cette densité obéit à ces conditions, le calcul s'arrête, sinon les densités de sortie et d'entrée sont mélangées suivant l'équation (II.20) et le processus refait toutes les étapes précédentes jusqu'à une convergence désirée [4].

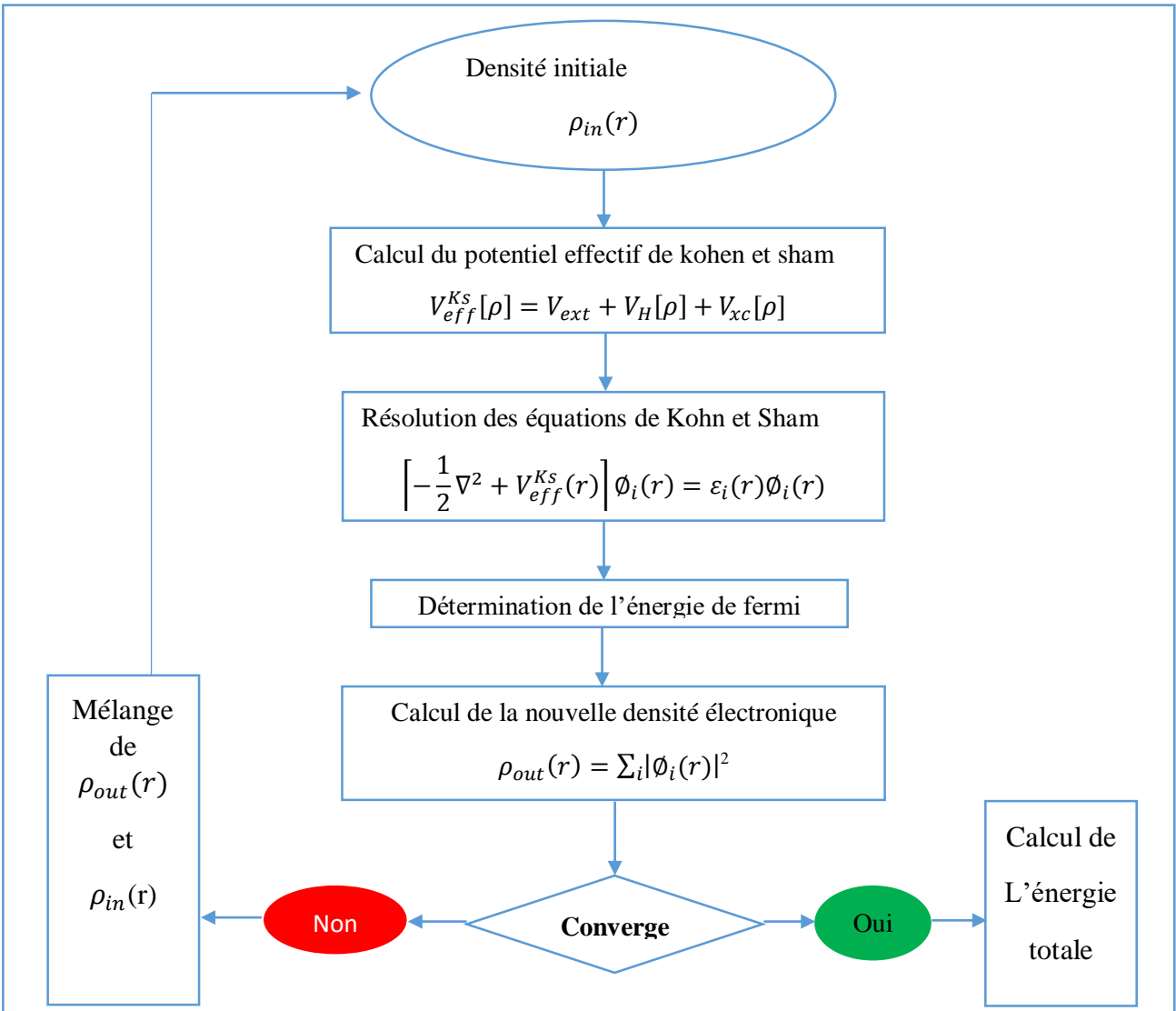


Figure II.1 : Le cycle self-consistent dans le calcul de la fonctionnelle de densité [4].

II.2. La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW)

II.2.1. Méthode des ondes planes augmentées (APW)

En 1937 Slater expose la méthode APW (Augmented Plane Wave) dans son article [21]. Il a introduit des ondes planes augmentées (APW) comme des fonctions de base pour résoudre les équations à un électron, qui correspondent aujourd'hui aux équations de Kohn Sham.

Dans le schéma de l'APW, Slater considère que l'espace est divisé en deux régions :

- La première est la région de cœur au voisinage du noyau atomique, le potentiel et les fonctions d'onde sont de la forme «Muffin-Tin » (MT) présentant une symétrie sphérique à l'intérieur de la sphère MT de rayon $R\alpha$. les solutions de l'équation de Schrödinger dans cette zone sont radiales.
- Le deuxième décrit la région entre les atomes (interstitielle) avec l'expansion de base d'ondes planes. La solution est une onde plane pour un potentiel constant.

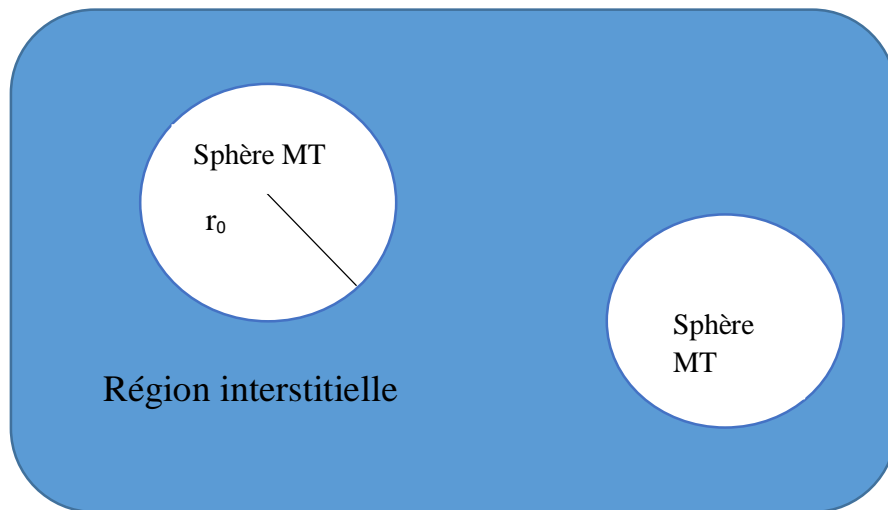


Figure II.2 : Potentiel «Muffin-Tin».

II.2.2. Méthode linéaire des ondes planes augmentées (LAPW)

La méthode « Full Potential Linearized Augmented Plane Wave (FP-LAPW) » développée par l'équipe de Schwarz, [22] est basée sur la résolution auto-cohérente des équations de Kohn-Sham dans deux régions arbitrairement définies de la maille élémentaire.

En citant quelques privilèges de la méthode LAPW par rapport à la méthode APW, on note :

- Dans la méthode LAPW, les énergies des bandes au point k sont obtenues avec une seule diagonalisation ce qui réduit le temps de calcul. Alors que dans la méthode APW, il est nécessaire de calculer l'énergie pour chaque bande.
- La convergence est devenue plus rapide dans LAPW en comparaison avec la méthode APW.

Cette méthode permet la considération d'un potentiel réaliste (FP = Full Potential) qui ne se restreint pas à la composante sphérique. Contrairement aux méthodes utilisant des pseudopotentiels, les électrons de cœur sont intégrés dans le calcul. On obtient ainsi une description correcte des fonctions d'onde près du noyau. C'est la méthode la plus précise mais elle est lourde en temps de calcul.

Cette méthode est complémente dans le code WIEN2K. Développé par BLAHA et SCHWARZ depuis 1990 à l'institut de chimie des matériaux de vienne.

II.3. Le code Wien2k

Historiquement, Wien2k a été développé par Peter Blaha et Karlheinz Schwartz de l'institut de Chimie des matériaux d'Université Technique de Vienne (Autriche). Ce code a été distribué pour la première fois en 1990. Les versions suivantes ont été WIEN93, WIEN97, WIEN2K.

Une application réussie de la méthode FP-LAPW est le programme Wien, un code développé par Blaha, Schwartz et Luitz [24]. Il a été appliqué succès pour le gradient du champ électrique [22], les systèmes supraconducteurs à haute température, les minéraux, les surfaces des métaux de transition [23], les oxydes non ferromagnétiques [24] et même les molécules [25].

Wien2k consiste en différents programmes indépendants qui sont liés par le CSHEL SCRIPT. L'usage des différents programmes Les principaux programmes nécessaires pour faire le calcul auto-cohérent sont :

- NN : C'est un programme qui donne les distances entre les plus proches voisins, qui aide à déterminer le rayon atomique de la sphère.
- LSTART : Un programme qui génère les densités atomiques et détermine comment les différentes orbitales sont traitées dans le calcul de la structure de bande, comme des états du cœur avec ou sans orbitales locales.
- SYMMETRY : Il génère les opérations de symétrie du groupe spatial, détermine le groupe ponctuel des sites atomiques individuels, génère l'expansion LM pour les harmoniques du réseau et détermine les matrices de rotation locale.
- KGEN : Il génère une maille k dans la zone de Brillouin.

CHAPITRE II : Théorie et méthode de calculs

- DSTART : Il génère une densité de départ pour le cycle SCF par la superposition des densités atomiques générées dans LSTART.

Alors un cycle self consistant est initialisé et répété jusqu'à ce que le critère de convergence soit vérifié. Ce cycle s'inscrit dans les étapes suivantes :

- LAPW0 : Génère le potentiel à partir de la densité.
- LAPW1 : Calcul les bandes de valence, les valeurs propres et les vecteurs propres.
- LAPW2 : Calcul les densités de valence.
- LCORE : Calcul les états du cœur et les densités.
- MIXER : Mélange la densité d'entrée et de sortie.

Références:

- [1] K. Kaddar, « Etude des Propriétés physiques des matériaux $\text{Co}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrSn}$ par les Méthodes de premier principe », Université Mohamed Boudiaf, Oran, Thèse Magister (2015).
- [2] P. Hohenberg and W. Kohn, Phys. Rev. 136, 864, B (1964).
- [3] W. Kohn, L. J. Sham, Phys. Rev. 140, 1133, A (1965).
- [4] H. ABBASSA, « Contribution à l'étude des propriétés physico-chimiques des alliages d'Heusler », Université de Mostaganem, Thèse (2015).
- [5] R. Arras, « Structure électronique au voisinage des défauts de la magnétite et des interfaces $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{MgO}(001)$ », Université Toulouse III-Paul Sabatier, Thèse Doctorat, (2010).
- [6] H. ZENASNI, « Etude théorique des propriétés magnétique électroniques et structurales des alliages Heusler », Université de Tlemcen, Thèse (2013).
- [7] I. ABDELLAOUI, « Etude du magnétisme dans les oxydes métalliques : TiO_2 et HfO_2 », Université Abou Bekr Belkaid, Tlemcen, Mémoire de Magister, (2011).
- [8] M. Born, J. R. Oppenheimer, Ann. Phys.87, 457, (1927).
- [9] A. BOUDALI, « Etude des propriétés structurales élastiques électroniques et optiques des pérovskites cubiques LaAlO_3 et XTiO_3 ($X= \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Pb}$) », Université d'Oran, Thèse doctorat, (2011).
- [10] M. C. Payne, M. P. Teter and D. C. Allan, T. A. Arias and J. D. Joannopoulos 'Iterative minimisation techniques for iterative ab-initio total-energy calculations : molecular dynamics and conjugate gradients' Rev. Mod. Phys. 64, 1045, (1992).
- [11] R. M. Martin, « Electronic structure – Basic Theory and Practical Methods » Cambridge University Press .624, (2004).
- [12] D. Singh, Planewaves, Pseudopotentials, and LAPW Method, Kluwer Academic (1994).
- [13] D. Singh, Phys. Rev. B 43, 6388, (1991).
- [14] P. Blaha, K. Schwarz, and J. Luitz, WIEN97. Technical University, Vienna, (1997).
- [15] P. Blaha and K. Schwarz, Hyperf. Interact. 52, 153 (1989).

CHAPITRE II : Théorie et méthode de calculs

- [16] P. Dufek, P. Blaha and K. Schwarz, Phys. Rev. Lett. 75, 3545 (1995).
- [17] S. H. Vosko, L. Wilk, M. Nusair. Accurate spin-dependent electron liquid correlation energies for local spin density calculations: a crystal analysis. Can. J. Phys, 58(8), 1200-1211, (1980).
- [18] J. P. Pedrew, J. A. Chevary, S. H. Vosko, K. A. Jackson, M. R. Pederson, D. J. Singh, C. Fiolhais. Atoms, molecules, solids, and surfaces : Application of the generalized gradient approximation for exchange and correlation. Phys. Rev, B, 46(11) ,6671-6687, (1992).
- [19] A. D. Becke, « Density function exchange energy approximation with correct asymptotic behavior ». Phys. Rev. A, 38(6), 3098-3100, (1988).
- [20] J. P. Pedrew, K. Burke and M. Ernzerhof. Generalized Gradient Approximation Made Simple. Phys. Rev, Lett. 77 (18), 3865-3868, (1996).
- [21] J. C. Slater, Phys. Rev. 51, 846, (1937).
- [22] P. Dufek, P. Blaha and K. Schwarz, Phys. Rev. Lett. 75, 3545 (1995).
- [23] K. Schwarz, C. Ambrosch-Draxl, and P. Blaha, Phys. Rev. B 42, 2051 (1990).
- [24] B. Winkler, P. Blaha and K. Schwarz, Am. Mineralogist 81, 545 (1996).
- [25] B. Kohler, P. Ruggerone, S. Wilke, and M. Scheffler, Phys. Rev. Lett. 74, 1387 (1995).

Chapitre III :

Résultats et discussion

III. Résultats et discussion

III.1. Introduction

À l'égard des développements récents dans la physique de la matière condensée, beaucoup d'efforts ont été déployés afin d'obtenir des bons résultats pour une meilleure compréhension du comportement des matériaux. Et pour cela, la simulation joue un rôle très important dans les études des propriétés des matériaux, son intérêt est de minimiser les dépenses des expériences coûteuses, dangereuses ou même inaccessibles au laboratoire, et elle permet aussi de modéliser les phénomènes difficiles ou impossibles à réaliser expérimentalement [1]. Parmi ces méthodes de simulation, on a utilisé la méthode FPLAPW [2, 3, 4] implémentée dans le code Wien2k [5].

Dans ce mémoire notre choix est tombé sur le « **CoFeMnSi** » : un matériau appartenant à la famille des Heusler quaternaires, connu pour son caractère semi-métallique et qui prend de plus en plus d'ampleur dans les futures industries et en particulier leurs applications en spintronique dont les dispositifs combinent les avantages des matériaux magnétiques et des semi-conducteurs pour être multilatéraux, rapides, et non volatiles.

Notre travail est basé sur des calculs ab-initio des propriétés structurales, électroniques, et magnétiques. Celles-ci nous permettent une bonne compréhension de ce type de matériau.

III.2. La structure cristalline de composé **CoFeMnSi**

Un matériau **CoFeMnSi**. Cristallisent dans une structure CFC avec que le groupe d'espace F-43m (216), en fixant le Si, on va ensuite jouer sur les positions des atomes restants, cela nous permet d'obtenir une structure avec différents arrangements. Composé ayant trois types pour les positions des atomes :

-la phase **LiMgPbSb** noté y-type avec le groupe d'espace N° 216 (F-43m) la cellule unitaire est occupée par les positions Wyckoff suivantes :

$$\text{Co}=(\frac{1}{2},\frac{1}{2},\frac{1}{2}), \text{Fe}=(0, 0, 0), \text{Mn}=(\frac{1}{4},\frac{1}{4},\frac{1}{4}), \text{Si}=(\frac{3}{4},\frac{3}{4},\frac{3}{4})$$

-La phase **Cu₂MnAl** noté L21-type avec le groupe d'espace N° 216 (F-43m) la cellule unitaire est occupée par les positions Wyckoff suivantes :

$$\text{Co}=(0,0,0), \text{Fe}=(\frac{1}{2},\frac{1}{2},\frac{1}{2}), \text{Mn}=(\frac{1}{4},\frac{1}{4},\frac{1}{4}), \text{Si}=(\frac{3}{4},\frac{3}{4},\frac{3}{4}).$$

-La phase **Hg₂CuTi** noté x-type avec le groupe d'espace N° 216 (F-43m) dans cette phase les éléments Fe et Mn changent entre eux leurs sites et la cellule unitaire aura les positions Wyckoff suivantes :

Co= (0,0,0) , Fe= (1/4,1/4,1/4) , Mn= (1/2,1/2,1/2) , Si= (3/4,3/4,3/4).

La représentation de les structures cristalline de composé CoFeMnSi est schématisé dans la figure (III.1).

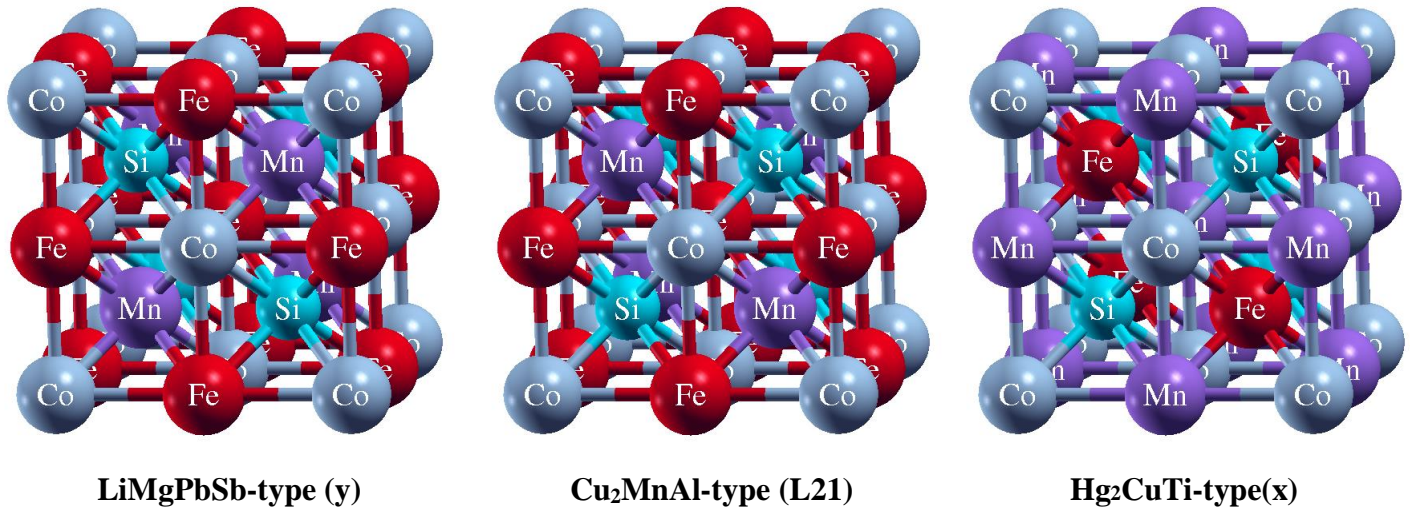


Figure III.1 : Les différentes structures cristallines des alliages quaternaires Full-Heusler.

III.3. Détail de calcul

Dans ce travail, les calculs ont été effectués en utilisant le code Wien2k [4], qui est une implémentation de la méthode des ondes planes augmentées linéarisées à potentiel total FPLAPW dans le cadre de la DFT [6], ainsi le potentiel d'échange et de corrélation est décrit par l'approximation du gradient généralisé (GGA) paramétrée par Perdew, Burke, et Ernzerhof [7].

Les fonctions d'onde, les densités électroniques et le potentiel sont développés en combinaison harmoniques sphériques autour des sites atomiques c'est-à-dire dans les sphères Muffin-tin avec un cutoff (rayon de coupure) $L_{\max}=12$, et en série de Fourier dans la région interstitielle avec un cutoff (rayon de coupure) = $R_{mt}^{min} * K_{max}$.

RK_{\max} représente le produit du plus petit rayon de sphère atomique RMT multiplié par le plus grand vecteur K_{\max} (de l'expansion des ondes planes de la fonction d'onde). Il détermine ainsi la

taille de l'ensemble de base (nombre de PW), c'est-à-dire la précision, mais aussi la quantité de temps d'ordinateur nécessaire.

La première étape dans ce genre de calcul consiste à préciser les valeurs des paramètres importants qui influent sur le temps et la précision du calcul :

- Les rayons Muffin-tin (R_{mt}), donnés en unités atomiques (u.a.m). Les valeurs utilisées pour (Co,Fe,Mn,Si) représentent un bon choix pour notre calcul (voir tableau III.1).

Elément	Co	Fe	Mn	Si
R_{MT} (u.a.m)	2.22	2.22	2.22	2.08

Tableau III.1 : Les valeurs des RMT pour différents atomes.

- Le paramètre de coupure $R \cdot K_{max} (R_{mt}^{min} * K_{max}) = 9$, avec R_{mt}^{min} est le plus petit rayon de la sphère MT et K_{max} la norme du plus grand vecteur d'onde utilisé pour le développement en ondes planes des fonctions propres.
- La valeur de $G_{max} = 12$, G_{max} est la norme du plus grand vecteur d'onde utilisé pour le développement en ondes planes de la densité de charges.
- Le nombre de k-points considéré dans la zone irréductible de Brillouin. L'intégration de la zone de Brillouin est réalisée avec (3000) k-points basés sur un maillage de $14 \times 14 \times 14$.

Le processus des itérations self-consistant est répété jusqu'à l'énergie de convergence inférieure ou égale à la valeur de 10^{-4} Ry, l'énergie de séparation des états de cœur et des états de valence est basée sur -6.0 Ry.

III.4. Etude des propriétés structurales de composé CoFeMnSi

III.4.1. Détermination des paramètres structurales

Pour déterminer le paramètre de la maille d'équilibre et pour trouver comment l'énergie totale varie en fonction de ce paramètre, nous avons effectué des optimisations structurales sur l'alliage CoFeMnSi pour deux états (spin polarisé et spin non polarisé).

Le calcul a été effectué avec l'approximation GGA. L'optimisation structurale s'effectue en minimisant l'énergie totale en fonction du volume V . Le cycle d'optimisation est reproduit jusqu'à ce que la convergence soit atteinte. Le volume de maille V_0 , le module de compressibilité B et sa dérivé

Chapitre III : Résultats et discussion

B' , ainsi que l'énergie minimale E_0 à l'équilibre sont évalués en ajustant la courbe de variation de l'énergie totale en fonction du volume obtenue à l'équation de **Murnaghan [8]** donnée par :

$$E(V) = E_0 + \frac{B}{B'(B' + 1)} \left[V \left(\frac{V_0}{V} \right)^{B'} - V_0 \right] + \frac{B}{B'} (V - V_0) \quad (\text{III. 1})$$

E_0 : représente l'énergie de l'état fondamental correspondant au volume V_0 .

Et V_0 : est le volume de l'état fondamental. il est déterminé par le minimum de la courbe (V).

Le paramètre du réseau à l'équilibre a_0 est calculé à partir de V_0 .

B : le module de compressibilité est déterminé par l'équation suivante :

$$B = V \frac{\partial^2 E}{\partial V^2} \quad (\text{III. 2})$$

B' : la dérivée du module de compressibilité :

$$B' = \frac{\partial B}{\partial P} \quad (\text{III. 3})$$

Les propriétés structurales pour ces types de matériau sont données dans le Tableau (III.2) ainsi que des résultats trouvés par d'autres travaux. Les résultats calculés pour CoFeMnSi sont en assez bon accord avec celles trouvés par des études théorique et expérimentale.

Les valeurs de l'optimisation sont représentées dans le tableau III.2 :

Le minimum d'énergie le plus bas est apparait dans le cas spin polarisé avec ses trois types.

^a Expt.Réf [9][10]

CoFeMnSi		a(A°)	B ₀ (Gpa)	B'	E ₀ (Ry)
LiMgPbSb-type	Spin polarisé	5.6154	248.5233	1.5262	-8230.068077
	Spin non polarisé	5.5658	244.9788	3.0163	-8229.976391
Cu ₂ MnAl-type	Spin polarisé	5.6154	248.5047	1.5040	-8230.068078
	Spin non polarisé	5.5661	245.6416	2.5556	-8229.976397
Hg ₂ CuTi-type	Spin polarisé	5.6219 ^a	244.1354 ^a	-0.1039	-8230.043402
	Spin non polarisé	5.5597	252.1704	3.0941	-8229.991399
Other calc*	Spin polarisé	5.6094 ^a	232.71 ^a	4.58 ^a	-8230.06932 ^a
	Spin non polarisé	5,610 ^a	231 ^a		-8230,06630 ^a

Tableau. III .2 : Les valeurs de paramètre de maille a (A °), le module de compressibilité B(GPa) et sa dérivé B', ainsi que l'énergie minimale E(Ry).

III.4.2. La stabilité structurale d'un matériau CoFeMnSi

III.4.2.1. La stabilité entre les deux cas (spin polarisé et spin non polarisé) pour chaque type

Dans le but de déterminer la nature de cet alliage, s'il est spin polarisé ou spin non polarisé pour chaque type, on trace la variation de l'énergie en fonction de volume de composé CoFeMnSi dans la figure III.2. Les résultats obtenus (figure III.2), confirment que la phase la plus stabilité est la phase magnétique pour les trois types.

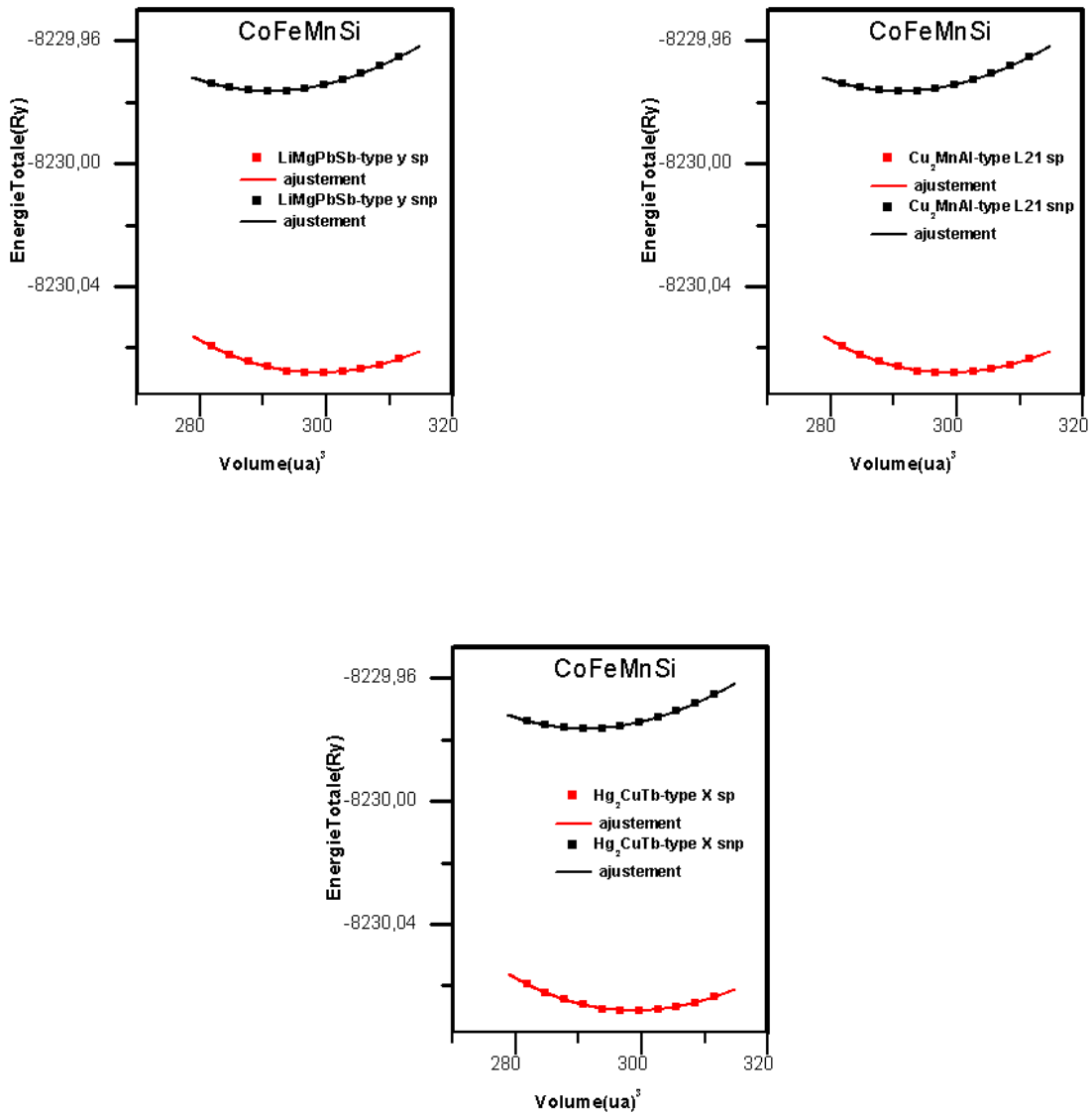


Figure III.2 : La variation de l'énergie en fonction du volume dans les deux cas : spin polarisé et non spin polarisé des composés CoFeMnSi dans ces trois types.

III.4.2.2. La stabilité entre les trois types de composé CoFeMnSi

Afin de déterminer le type le plus stable parmi les trois types ferromagnétiques (spin polarisé), on trace la variation de l'énergie du système en fonction du volume dans la phase magnétique (spin polarisé) pour les trois types (figure. III.3).

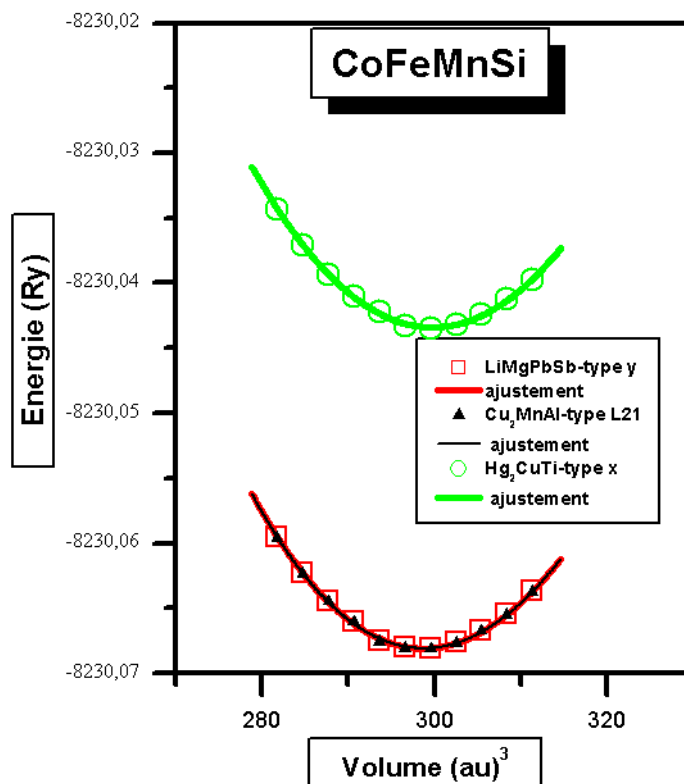


Figure III.3 : La variation de l'énergie en fonction du volume entre les trois types dans le cas magnétique (spin polarisé) des composés CoFeMnSi.

On remarque que les courbes **LiMgPbSb-type (Y)** et **Cu₂MnAl-type (L21)** sont presque identiques (figure III.3). Alors, pour savoir lequel est le plus stable nous utilisons donc le tableau III.2. Après comparaison les énergies minimales obtenues paramètre l'optimisation, nous constatons que la structure Cu₂MnAl-type (L21) dans la phase dans magnétique (spin polarisé) est le plus stable.

III.5. 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 des liaisons qui se forment entre les différents éléments de ce matériau. Pour les systèmes magnétiques, les calculs à spins polarisés sont effectués en utilisant le concept des électrons spin-up et spin-down séparément. Ces propriétés comprennent la structure de bande, la densité d'états et les propriétés magnétiques.

III.5.1. La structure de bande

La théorie des bandes est un modèle quantique en physique des solides qui détermine les valeurs possibles que peuvent prendre les électrons d'un solide à l'intérieur de celui-ci de façon générale. Ces électrons n'ont pas la possibilité d'avoir que des valeurs énergétiques comprises dans certains intervalles lesquels sont séparés par des bandes d'énergie interdites. Cette modélisation conduit à parler de bandes d'énergie ou de structure des bandes.

En utilisant l'approche GGA, Les structures des bandes de notre composé sont relatives pour les deux cas de spin-up et de spin-down, Afin de déterminer la valeur de gap dans la figure III.4 la représentation ci jointe dessous permet de comprendre le comportement du matériau étudié.

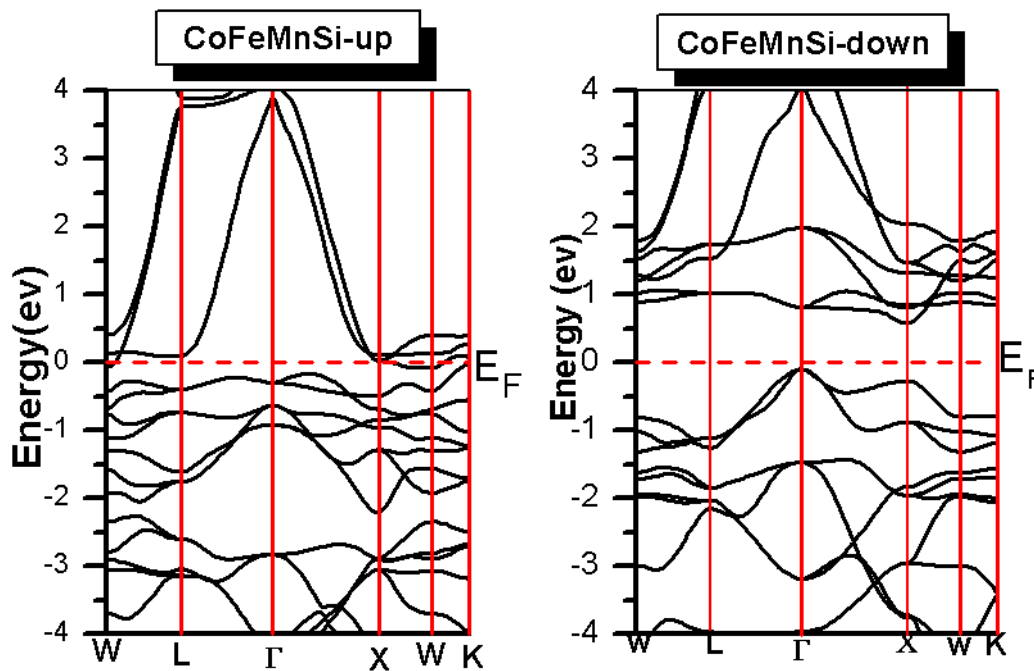


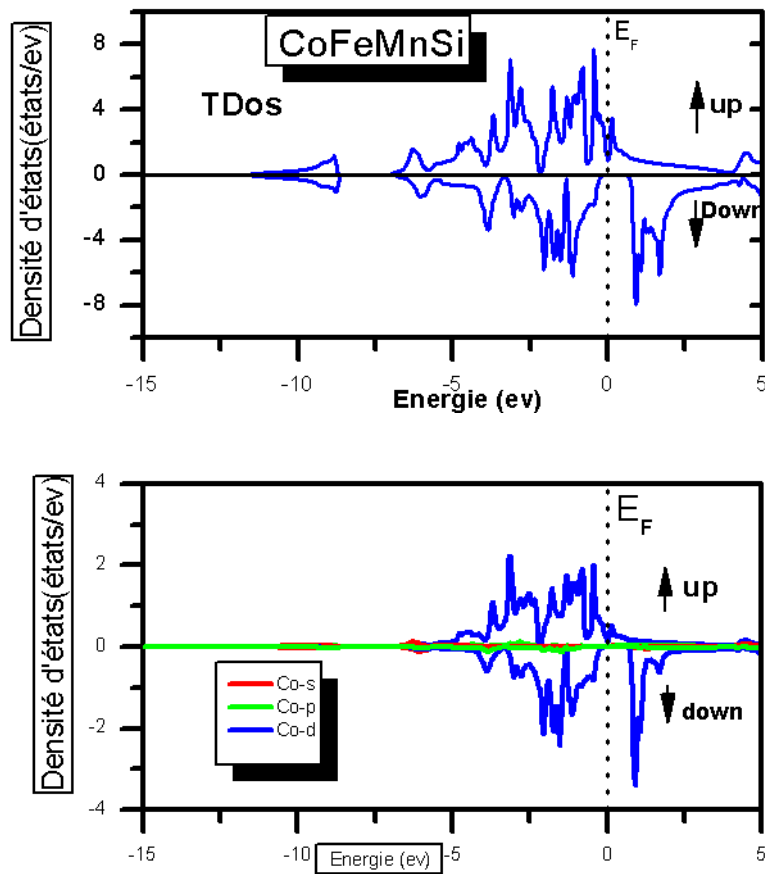
Figure III-4 : Les structures de bandes pour les spins majoritaires et les spins minoritaires de l'alliage CoFeMnSi.

à partir des bandes résolues en spin, on peut voir que le spin majoritaires (spin-up) présente une nature métallique au niveau de Fermi, cela est expliqué par l'absence de la bande interdite autour de celui-ci, et qui provient du chevauchement entre les bandes d'énergie, ce qui indique un caractère métallique, alors que le spin minoritaire (spin-down) montre un comportement semi-conducteur avec

une bande interdite indirecte au haut point de symétrie Γ et minimaux point de symétrie X . Présentent un comportement **semi-métallique**.

III.5.2. Densité d'état

Pour comprendre la nature de la structure électronique de CoFeMnSi, nous avons étudié au paramètre de maille d'équilibre les densités d'états totale (TDOS) et partielle (PDOS), polarisées en spin. En utilisant la GGA, la (figure III.5) représente la DOS totale et partielle pour CoFeMnSi avec les contributions des états, Dans toutes les figures, les énergies sont rapportées au niveau de Fermi E_F . Le niveau de Fermi sépare la bande de valence BV de la bande de conduction BC.



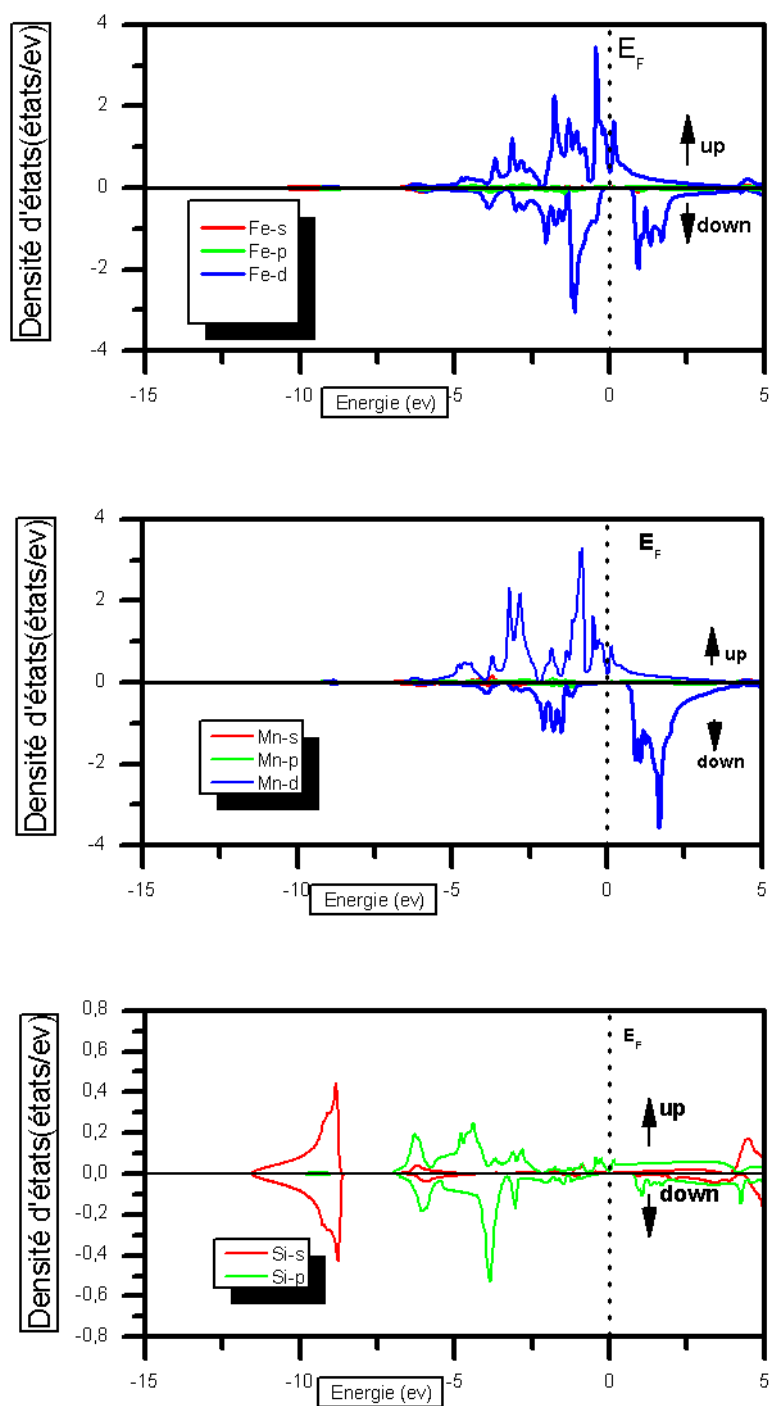


Figure III-5 : Les densités d'états totales et partielles du composé CoFeMnSi.

On voit qu'il y a un gap d'énergie dans les états de spin minoritaire autour du niveau de Fermi pour le composé CoFeMnSi ce qui indique que ce composé présente un caractère demi-métallique ferromagnétique à l'état d'équilibre. A partir des densités d'états partielles, on peut définir le caractère de chaque région de c'est composé. Il est clair à partir de ces figures que le matériau a un caractère

magnétique très prononcé ; ceci est visible grâce à l'antisymétrie des états de spins majoritaires et minoritaires.

La demi-métallicité est remarquée dans l'alliage. L'origine de l'énergie de gap dans les états de spins minoritaires peut être expliquée en termes de répulsions fortes entre les états d-d des métaux de transition, Les dos de ce composé montrent deux régions principales, où la première région, en dehors de la zone limitée entre [-7, 4] eV, qui sont dominées essentiellement par les états (s, p) du Si alors que pour la région restant entre [- 7, 4] eV elle montre une forte contribution des états 3d des métaux de transitions Co, Fe et Mn.

III.6. Les propriétés magnétiques :

Les propriétés magnétiques nous renseignent spécialement sur le moment magnétique qui est un indicateur très important sur le taux du champ magnétique dans un matériau par rapport à un autre, ou bien sur le taux du moment magnétique qui diffère d'un élément à un autre dans le même matériau.

Le moment magnétique est représenté par le moment magnétique de spin défini par le nombre d'occupation total des orbitales à spin majoritaires diminué du nombre d'occupation total des orbitales à spin minoritaires.

La structure de bandes énergétiques d'un matériau semi-métallique présente une asymétrie entre les états de spin up et de spin down avec un gap ou un pseudo gap énergétique au niveau de Fermi. Ceci donne lieu à des polarisations des électrons de conduction au niveau de Fermi qui peuvent atteindre les 100%. La polarisation P de spin à E_F est exprimée en termes de densité d'états de spin haut et de spin bas, $P^\uparrow(E_F)$ et $P^\downarrow(E_F)$ par la relation

$$P = \frac{P^\uparrow(E_F) - P^\downarrow(E_F)}{P^\uparrow(E_F) + P^\downarrow(E_F)} \quad (\text{III. 4})$$

Dans les composés semi-métalliques, le moment de spin par unité de formule est un nombre entier (en μ_B), Le moment magnétique porté étant égal à la différence entre le nombre d'électrons de spin up et le nombre d'électron de spin down, on retrouve une valeur entière du moment magnétique porté. Le tableau III.3 ci-dessous regroupe les résultats et valeurs obtenues pour le moment magnétique total et local en (μ_B) à l'équilibre pour notre composé CoFeMnSi. En plus, nous citons aussi des résultats obtenus par d'autres travaux :

Chapitre III : Résultats et discussion

^a Ce travail. ^b Expt. Réf [9] [10]

	μ ^{Total} (μB/Cell) Slater- Pauling rule	M _{Tot}	M _{Co}	M _{Fe}	M _{Mn}	M _{Si}	TC(°K)	Spin Polarization ratio (%)
CoFeMnSi	4.0	4.00012 ^a	0.88329 ^a	0.58494 ^a	2.63229 ^a	-0.04258 ^a	747	100%
		4,02 ^b	0,85 ^b	0.66 ^b	2.58 ^b	-0,03 ^b	750.6 ^b	100%
		4.0 ^b	0.89 ^b	0.52 ^b	2.70 ^b		623 ^b	100%

Tableau III-3 : les moments magnétique total, **interstitiel** et local, le calcul des spin-polarisation (P) et la température de Curie (TC).

On voit que les valeurs de la polarisation sont importantes .une polarisation de 100% qui est caractéristique d'un demi-métal.

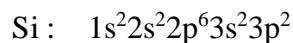
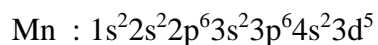
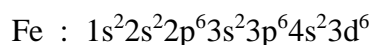
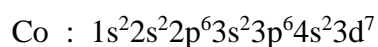
C'est évident que le moment magnétique de notre composé est un nombre entier, satisfaisant la règle de Slater-Pauling [11] :

$$m = NV - 24 \tag{III.5}$$

$$m=28-24$$

$$m = 4$$

N_v=28 pour le composé CoFeMnSi



Les températures de Curie (TC) pour nos composés ont été estimées selon le modèle présenté par Kandpal et X. Dai [12,13] en appliquant la relation linéaire :

$$TC = 23 + 181 \times \mu^{Total} \tag{III.6}$$

μ^{Total}: moment magnétique totale. Les valeurs trouvées sont 747 °K pour CoFeMnSi.

Référence

- [1] Z. ABOUB, « Etude ab-initio des propriétés structurales et électroniques des systèmes (Sr, La) (Ti, Ni) O₃ », Université Kasdi Merbah , Ouargla, Mémoire de Magister, (2012).
- [2] O. K. Andersen, Phys. Rev. B12, 3060 (1975).
- [3] K. Schwarz, P. Blaha, Lecture notes chemistry, 67, 139 (1996).
- [4] S. H. Wei, H. Krakauer, and M. Weinert, Phys. Rev. B32, 7792 (1985).
- [5] P. Blaha, K. Schwarz, G. K. H. Madsen, D. Kvasnicka and J. Luitz, WIEN2K, an augmented plane-wave + local orbitals program for calculating crystal properties (Karlheinz Schwarz, Techn. Universität Vienna, Austria), ISBN 3-9501031-1-2. (2001).
- [6] Singh. D. Planes waves, pseudo-potentials and the LAPW method. Boston, Dordrecht, London : Kluwer Academic Publishers , (1994).
- [7] Perdew J. P, Burke S, Ernzerhof , M. Phys Rev Lett 77 3865 (1996).
- [8] A. BOMAZA. Thèse de Doctorat, Université d'Annaba (2014).
- [9] ELAHMAR Mohamed Hichem; RACHED Djamel; SEHIL Mohamed.-sidi bel abbes : UNIVERSITE DJILLALI LIABBS FACULTE DES SCIENCES EXACTES,2015.-95 : tableaux,formules, equations, integrales,figures, ; 21-27.
- Doctorat : université djilali liabes (2015).
- [10]V. Alijani, S. Ouardi, G. H. Fecher, J. Winterlik, S.S. Naghavi, X. Kozina, G. Stryganyuk, C. Felser, E. Ikenaga, Y. Yamashita, S. Ueda, and K. Kobayashi, Phys. Rev. B 84:224416,(2011).
- [11] P. Debye, Ann. Phys. 39 789 (1912).
- [12] X. Dai, G. Liu, G.H. Fecher, C. Felser, Y. Li, H. Liu, J. Appl. Phys. 105 : 07E901, (2009).
- [13]H.C. Kandpal, G.H. Fecher, C. Felser, J. Phys. D 40: 1507–1523,(2007).

Conclusion Générale

Conclusion Générale

Ce modeste travail a été consacré pour étudier les propriétés physiques d'une classe d'alliages appelée les alliages d'Heusler quaternaires, définie par la famille $XX'YZ$. L'objectif de ce mémoire est de prédire les propriétés structurales, électroniques, magnétiques de composé CoFeMnSi après avoir donné des définitions simples sur les matériaux magnétiques notamment les alliages Heusler.

Les calculs ont été effectués par la méthode des ondes planes linéarisées (FP-LAPW) dans le cadre de la fonctionnelle de la densité (DFT), et pour déterminer le potentiel d'échange et de corrélation, on a utilisé l'approximation de la densité du gradient généralisée (GGA).

Les résultats obtenus à l'étude des propriétés structurales de l'alliage ont montré que le paramètre de réseau et le module de compressibilité pour ce composé **CoFeMnSi** sont en bon accord par rapport aux valeurs expérimentales.

A partir des calculs effectués sur notre matériau, nous avons trouvé pour ce composé que la structure la plus stable est la phase **Cu_2MnAl -type (L21)** est un matériau magnétique.

Les propriétés électroniques montrent que ce composé **CoFeMnSi** présentent un caractère demi-métallique pour le spin majoritaires (spin-up) présente une nature métallique et spin minoritaires (spin-down) montre un comportement semi-conducteur.

D'après la structure de bande et la densité des états, l'alliage Heusler CoFeMnSi a un caractère demi-métallique ferromagnétique dont le moment magnétique est de $4 \mu_B$ ce qui est en parfait accord avec la règle de Slater Pauling. La polarisation de spin au niveau de Fermi est élevée, pouvant atteindre jusqu'à 100%.

Abstract

The structural, electronic and magnetic properties of the Heusler CoFeMnSi alloy series were calculated using the augmented plane wave method (FP-LAPW), which is based on density functional theory (DFT) using the Wien2K code . We used the generalized gradient approximation (GGA) for the term exchange potential and correlation (XC). From the analysis of the structure of the energy bands and the calculated state densities, Moreover, the total and partial state densities (PDOS) and the results of the magnetic spin moments reveal that this compound is semi-metallic ferromagnetic ideal. The effects of the volume of the elemental mesh on the half-metallic and magnetic properties are crucial. It is interesting to note that our total magnetic moment results for CoFeMnSi equal to $4\mu_B$.

Résumé

Les propriétés structurales, électroniques et magnétiques de la série des alliages Heusler CoFeMnSi ont été calculées par la méthode des ondes planes augmentées (FP-LAPW) qui se base sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) en utilisant le code de Wien2K. Nous avons utilisé l'approximation du gradient généralisé (GGA) pour le terme du potentiel d'échange et de corrélation (XC). A partir de l'analyse de la structure des bandes d'énergies et des densités d'états calculées, De plus, les densités d'états totales et partielles (PDOS) et les résultats des moments magnétiques de spin révèlent que ce composé est demi-métallique ferromagnétique idéaux. Les effets du volume de la maille élémentaire sur les propriétés semi-métalliques et magnétiques sont cruciaux. Il est intéressant de noter que nos résultats du moment magnétique total pour CoFeMnSi égale à $4\mu_B$.

ملخص

تم حساب الخصائص الهيكلية والإلكترونية والمغناطيسية لسلسلة سبيكة Heusler CoFeMnSi باستخدام طريقة الموجة المستوية المعززة (FP-LAPW)، والتي تعتمد على نظرية الوظيفة للكثافة (DFT) باستخدام كود Wien2K. استخدمنا تقريب التدرج المعمم (GGA) لمصطلح التبادل المحتمل والارتباط (XC). من تحليل بنية نطاقات الطاقة وكثافة الحالة المحسوبة، علاوة على ذلك، تكشف كثافات الحالة الكلية والجزئية (PDOS) ونتائج لحظات الدوران المغناطيسي أن هذا المركب هو نصف - المثل العليا المعدنية المغناطيسية. آثار حجم شبكة عنصري على الخصائص شبه المعدنية والمغناطيسية حاسمة. من المثير للاهتمام أن نلاحظ أن مجموع لحظة مغناطيسيتنا لنتائج CoFeMnSi تساوي $4\mu_B$.