

**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 : M^{elle} . Benadji khadidja

Pour obtenir le diplôme de

Master

**Filière : Physique
Spécialité: Nano Physique**

Thème :

**Investigation théorique des propriétés structurales, électroniques et
magnétiques des alliages Heusler quaternaire CoFeMnAl**

Soutenu le : 03/07/2019

Devant le jury :

M ^r SENOUCI .D	Grade	MCB	Président
M ^r HALIS .L	Grade	MAA	Examineur
M ^r LARABI .A	Grade	MCB	Encadreur

ANNEE UNIVERSITAIRE 2018/2019



Dédicace

grace Mon "Dieu" Je dédie ce modest travail à:

les plus chers personnes dans ma vie :

Ma mère et Mon père.

Mon frère : Saad .

Mes chers soeures: Achwak , Doaa , Rahaf

*Tous les professeures et les enseignant de
département physique à l'université Tiaret .*

Mes amis et tous ceux qui m'ont encouragé

*Nadia , Amal , Ahlam , Hanan , Naima , Smira ,
Hanan , Hayat*

Remerciements

*Tout d'abord je remercie **ALLAH** le Tout-puissant de m'avoir donné le courage, la volonté et la patience de mener à terme ce présent travail. Ce travail a été effectué à la faculté des sciences de matière de l'université de Tieret dirigée par **LARABI ABDELKRIM**. Je tiens à le remercier en tout premier lieu pour avoir dirigé ce mémoire. Tout au long de cette année, il a su orienter mes recherches aux bons moments et me prodiguer ses conseils avisés qui ont permis d'aboutir à la production de ce mémoire. Pour tout cela, sa confiance et sa disponibilité, je le remercie vivement. Je remercie **,SENOUCI DJAMEL EDDINE** professeur à l'université de Tieret pour l'honneur qu'il m'a fait en présidant le jury. Je tiens à exprimer mes remerciements à Monsieur **HALISE LAADJAL** pour avoir accepté d'examiner ce travail. Mes sincères remerciements à , pour la gentillesse et la disponibilité qu'il a manifestées à mon égard durant ce travail, pour ses nombreux et valeureux conseils, sa disponibilité à tout instant. Enfin, ces remerciements ne seraient pas complets sans mentionner toute ma famille et mes amis qui, par ses encouragements et leur assistance morale, qui m'a permis de faire ce mémoire dans les bonnes conditions.*

Merci à tous !

Liste de figures

N°	Titre	Page
Figure I.2	structure de demi-Heusler (Half-Heusler)	3
Figure I.3	Différents type d'occupations des sites non équivalents dans la structure de type C1b	4
Figure I.4	La structure Heusler L21 (Full-Heusler)	5
Figure I.5	Les deux structures d'Heusler (Full-Heusler) : a) régulière ; b) inverse	5
Figure I.6	structure d'Heusler quaternaire.	6
Figure I.7	Les différents types de désordre pouvant survenir dans la structure(half/full) Heusler	7
Figure I.8	ce tableau exprime les différent types des alliage heusler	8
Figure I.9	Ferromagnétisme (réseau de spins)	9
Figure I-10	Ferrimagnétisme (réseau despins)	9
Figure I-11	Antiferromagnétisme(réseau de spin	10
Figure I.12	Illustration schématique de la densité des états (a) d'un métal, (b) semi-métal, (c) un métal (spin polarisé),	10
Figure I.13	les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction géante magnétique	12
Figure I.14	les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction tunnel magnétique	13
Figure. II 15	Mise en œuvre d'algorithmique de l'approximation de BornOppenheimer	18
Figure II .16	Le cycle self-consistent dans le calcul la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)	22
Figure II.17	Potentiel Muffin-Tin	24
Figure III.1	Les différents types de la structure	29
Figure III.2	La variation de l'énergie totale en fonction du volume de LiMgpbsb- type ,Hg ₂ CuTi – type, Cu ₂ MnAl-type, Dans le cas(spin polarisé)	32
Figure III.3	La variation de l'énergie totale en fonction du volume des 3 type Dans le cas(spin polarisé)	33
Figure III.4	Les structures de bandes pour les spins majoritaires et les Spins minoritaires De l' alliage CoFeMnAl	36
Figure III.5	La densité Total du composé Heusler quaternaire CoFeMnAl.	40
Figure III.6	La densité d'état partielle du composé Heusler quaternaire CoFeMnAl.	37

Liste de Tableaux

N°	Titre	Page
Tableau I.I :	Différents type d'occupations des sites non équivalents dans la structure de type C1b	3
Tableau III.1	représente les positions occupée par les atomes de composé quaternaire de Heusler dans les trois types .	28
Tableau.III.2 :	Tableau Les valeurs de R_{mt} , K_{max} , K points, G_{max} et R_{mt} de Co, Fe, Mn, Al dans structure quaternaire heusler CoFeMnAl.	30
Tableau III.3 :	Tableau Le paramètre de maille a_0 , le module de compressibilité B_0 , sa première dérivée B' , l'énergie totale E_0 (R_Y), et le volume à l'équilibre V_0 , pour différentes configurations magnétiques dans le structure quaternaire heusler CoFeMnAl.	33
Tableau III.4	Le moment magnétique total et local en (μ_B) du composé Heusler quaternaire CoFeMnAl.	38

Table des matières

Introduction générale	1
I. Chapitre I	2
I.1. alliage de heusler	2
I.1.1. Introduction	2
I.1.2. Type dalliage de heusler	2
I.1.2.1. Les alliages demi-Heusler	2
I.1.2.1.1. Structure cristalline	3
I.1.2.2. Les alliages full Heusler	4
I.1.2.2.1. Structure cristalline	4
I.1.2.3. Inverse heusler	4
I.1.2.4. composés Heusler quaternaires	5
I.1.2.5. Autre type de heusler	6
I.1.3. Les propriétés magnétiques	7
I.1.3.1. Le comportement ferromagnétique	8
I.1.3.2. Le comportement ferrimagnétique	9
I.1.3.3. Le comportement antiferromagnétique	9
I.1.4. Demi-métallicité des alliages Heusler	10
I.1.5. Règle de Slater-Pauling	11
I.1.1. Les applications	11
I.1.1.1. La magnétorésistance GMR	11
I.1.1.2. La magnétorésistance TMR	12
I.1.1.3. La spintronique	13
I.2. Conclusion	13
Références	14
II. Chapitre II	17
II.1. La Théorie de la Fonctionnelle de la Densité	17
II.1.1. Introduction	17
II.1.2. L'équation de Schrödinger	17
II.1.3. L'approximation de Born-Oppenheimer	18
II.1.4. Théorie de la fonctionnelle de la densité	19
II.1.4.1. Théorèmes de Hohenberg et Kohn	19
II.1.4.2. Les équations de Kohn et Sham	20
II.1.4.3. L'approximation du gradient généralisé (GGA)	21
II.1.4.4. Résolution des équations de Kohn et Sham	21

II.1.5.	Succès de la DFT.....	22
II.2.	La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW).....	23
II.2.1.	Méthode des ondes planes augmentées (APW).....	23
II.2.2.	Méthode linéaire des ondes planes augmentées (LAPW).....	24
II.2.3.	Amélioration de la méthode FP-LAPW :.....	24
II.3.	Le code Wien2k.....	24
	Références.....	Erreur ! Signet non défini.
III.	Chapitre III.....	29
III.1.	Introduction.....	29
III.2.	La structure cristalline des composés CoFeMnAl.....	29
III.3.	Détails des calculs.....	31
III.4.	Propriétés structurales des composés CoFeMnAl.....	32
III.5.	Etat d'équilibre et la stabilité structurale.....	32
III.6.	Propriétés électroniques des composés CoFeMnAl.....	35
III.6.1.	La structure de bandes.....	35
III.6.2.	La densité d'états DOS (Density Of States).....	36
III.7.	Les propriétés magnétiques.....	39
	Références.....	Erreur ! Signet non défini.
	Conclusion générale.....	43

Introduction Générale

Introduction générale

La Physique des Matériaux est une science qui s'est avérée indispensable, son but est de fournir une compréhension avisée des principales propriétés qui caractérisent les matériaux de l'échelle macroscopique vers l'échelle microscopique (macro vers micro). Elle joue un rôle fondamental dans le développement de notre société moderne en permettant l'avènement de nombreuses applications technologiques : l'électronique, le stockage de données, les capteurs, les communications, les semi-conducteurs, les supraconducteurs etc..... Ces derniers requièrent l'utilisation des matériaux aux propriétés spécifiques qui, à travers leur comportement particulier, vont pouvoir jouer un rôle actif au sein des dispositifs et y assurer une certaine fonction qui répond au besoin de l'industrie.

Et puisque l'homme cherche toujours de travailler avec moins d'effort, c'est la nature humaine; il a développé des logiciels de simulation qui deviennent plus en plus très utilisables dans les études des matériaux, car la simulation est souvent moins chère que l'expérimentation et comporte beaucoup moins de risque lorsque les chercheurs font leurs études, les résultats peuvent être obtenus beaucoup plus rapidement.

Les méthodes ab-initio ont actuellement la possibilité d'effectuer avec une grande précision des calculs pour différentes grandeurs, tels que l'élasticité, les spectres optiques, les fréquences de vibration du réseau etc... même pour des systèmes très larges. Parmi ces méthodes ab-initio, la méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW) est l'une des plus précises pour calculer la structure électronique des solides dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), qui vise à rendre compte de l'état fondamental d'un système, et dont l'application numérique a été rendue possible par Hohenberg, Kohn et Sham dans les années 60 et 70.

Nous avons développé ce modeste travail en trois chapitres :

Le premier chapitre s'agit d'une recherche bibliographique approfondie sur les notions des alliages de Heusler et différentes structures adoptées, et enfin leurs applications technologiques.

Le deuxième chapitre concerne le fondement théorique, il présente les méthodes qui reposent sur certains nombres 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 l'importance de l'approximation GGA dans la méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW).

Le troisième chapitre nous présentons et discutons les résultats de nos calculs concernant les propriétés structurales, électroniques, magnétiques respectivement de cet alliage.

Enfin une conclusion générale résumant nos résultats est présentée

Chapitre I
Généralité sur
Les Alliages de
Heusler

I. Chapitre I

I.1. alliage de heusler

I.1.1.Introduction

Tout a commencé en 1903 avec l'historique découvert de Fritz Heusler, où un alliage avec une formule de type Cu_2MnAl est trouvé comme un matériau ferromagnétique, bien qu'aucun de ces éléments constitutifs ne soit un matériau magnétique [1, 2]. C'est la naissance d'une nouvelle classe des matériaux des plus passionnants. Cette classe de matériaux comprend actuellement une grande collection avec plus de 1000 composés, connus sous le nom de Composés ou alliages Heusler. Une première classe est constituée avec des matériaux ternaires semi-conducteurs ou métalliques (connus sous le nom demi-Heusler "Half-Heusler"), et une autre classe (connus sous le nom "Full-Heusler"). La figure I.1 montre les différentes combinaisons possibles des éléments qui peuvent former ces matériaux.

Composés Heusler $\text{XX}'\text{YZ}$

H																			He																														
Li	Be											B	C	N	O	F			Ne																														
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl			Ar																														
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br			Kr																														
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I			Xe																														
Cs	Ba		Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At			Rn																														
Fr	Ra																																																
<table border="1"> <tbody> <tr> <td>La</td><td>Ce</td><td>Pr</td><td>Nd</td><td>Pm</td><td>Sm</td><td>Eu</td><td>Gd</td><td>Tb</td><td>Dy</td><td>Ho</td><td>Er</td><td>Tm</td><td>Yb</td><td>Lu</td> </tr> <tr> <td>Ac</td><td>Th</td><td>Pa</td><td>U</td><td>Np</td><td>Pu</td><td>Am</td><td>Cm</td><td>Bk</td><td>Cf</td><td>Es</td><td>Fm</td><td>Md</td><td>No</td><td>Lr</td> </tr> </tbody> </table>																				La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr
La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu																																			
Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr																																			

Figure I-1 : Tableau périodique des éléments. $\text{X X}'\text{Y Z}$ [3].

I.1.2.Type dalliage de heusler

I.1.2.1. Les alliages demi-Heusler

La composition chimique de la forme XYZ concerne les alliages demi-Heusler qui peuvent être considérés en tant que composés formés de deux parties distinctes, l'une est appelée covalente et

l'autre ionique. Les atomes X et Y possèdent un caractère cationique différent, par contre Z est compris comme l'équivalent anionique [4]. D'une façon aléatoire ou par ordre alphabétique on peut procéder à la trie des éléments selon leur électronégativité, finalement les trois permutations sont possibles à trouver. En début de formule, on trouve l'élément le plus électropositivité, provenant d'un groupe principal, un métal de transition ou un élément de terres rares[5].. Alors qu'en fin de formule se trouve l'élément le plus électronégativité, celui-ci provient également d'un groupe principal mais de la seconde moitié de la classification périodique, le LiAlSi, ZrNiSn, LuAuSn sont des exemples [6-7].

I.1.2.1.1. Structure cristalline

La famille de ce type se compose selon une stœchiométrie de 1 : 1 : 1 dont la formule est XYZ et cristallisent dans une structure cubique non-centrosymétrique (groupe d'espace N°216, F-43m) connue sous la structure $C1_b$, cette dernière, est l'équivalent d'un sous réseau ZnS avec les positions 4a et 4c, dont les sites octaédrique 4b sont occupés [8].

L'interpénétration de trois sous-réseaux cubiques à faces centrées (cfc), dont chacun est occupé par les atomes X, Y, Z [8], 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) .

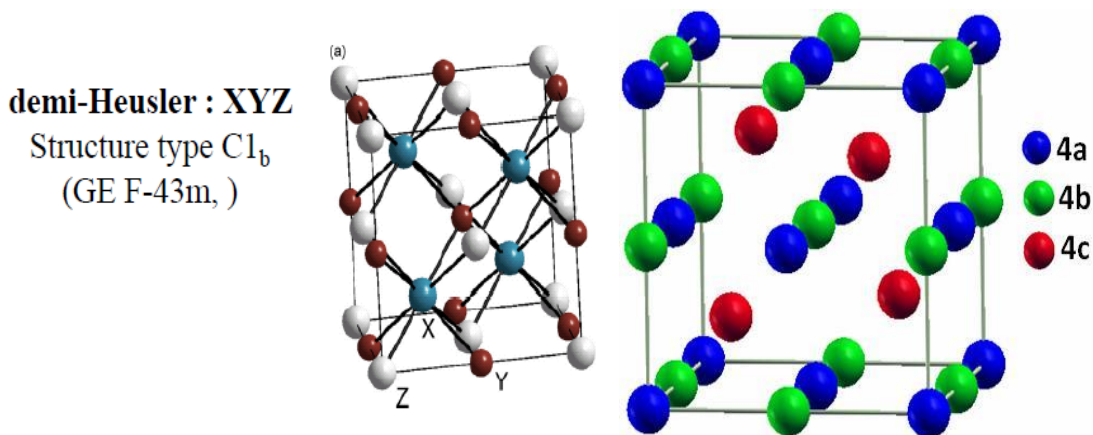


Figure I.2 : structure de demi-Heusler (*Half-Heusler*)

Trois arrangements atomiques non équivalents à ce type de structure ($C1_b$) peuvent être associés, le Tableau présente ces différentes possibilités.

Les atomes	X	Y	Z
1^{er} arrangement	4a	4b	4c
2^{ème} arrangement	4b	4a	4c
3^{ème} arrangement	4c	4b	4a

Tableau I.I : Différents type d'occupations des sites non équivalents dans la structure de type $C1_b$

I.1.2.2. Les alliages full Heusler

X_2YZ est la formule générale des alliages Heusler. Souvent les métaux de transition sont X et Y, où l'élément de group III, IV, V dans le tableau périodique représente Z. Rarement, l'élément Y est remplacé par l'élément des terres rares ou par un métal alcalino-terreux [9]. L'emplacement de l'atome double X, se situe toujours en début de la formule, par contre l'atome Z des groupes III, IV, V, est placé à la fin de celle-ci par exemple Co_2MnSi [10]. Parfois, il existe des exceptions où l'ordre de classement est relatif à l'échelle de l'électronégativité par exemple $LiCu_2Sb$ et YPd_2Sb [11].

I.1.2.2.1. Structure cristalline

Selon le groupe d'espace Fm-3m (groupe d'espace N° 225) les alliages Heusler de type X_2YZ se cristallisent avec Cu_2MnAl noté souvent (L21) comme prototype [5, 6, 12,13], la position 8c ($1/4, 1/4, 1/4$) est occupée par les atomes X, quant aux position 4a (0, 0, 0) et 4b ($1/2, 1/2, 1/2$) sont occupées par les atomes Y et Z, la structure L21, se constitue de quatre sous-réseaux cfc interpénétrés, dont deux parmi sont occupés par l'atome X.

I.1.2.3. Inverse heusler

Dans le cas où le numéro atomique de l'élément Y est supérieur à celui de l'élément X ($Z(Y) > Z(X)$), une structure inverse et différente est observée [14]. Souvent, cette structure inverse est désignée dans la littérature par X, avec le prototype $CuHg_2Ti$. Cette structure cristallisent dans le groupe d'espace cubique F-43m (groupe d'espace N° 216) [21].

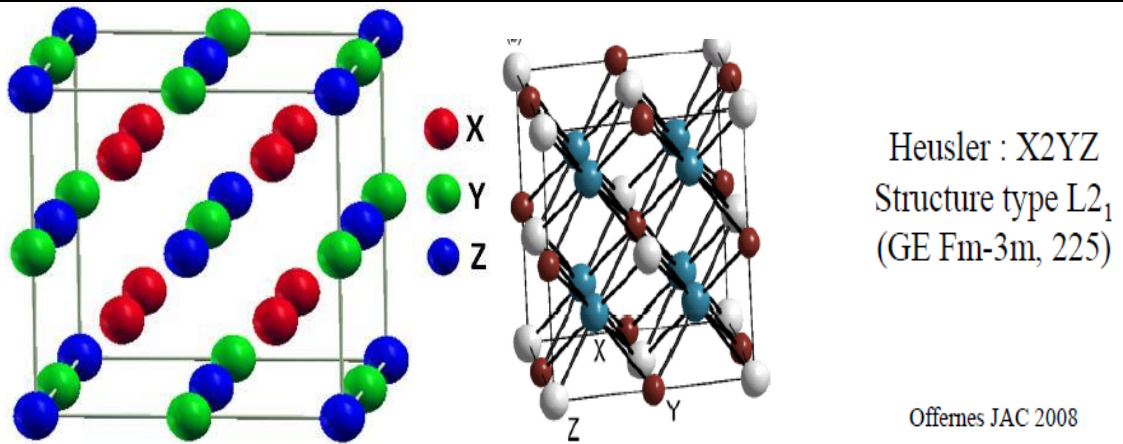


Figure I.4 : La structure Heusler $L2_1$ (*Full-Heusler*).

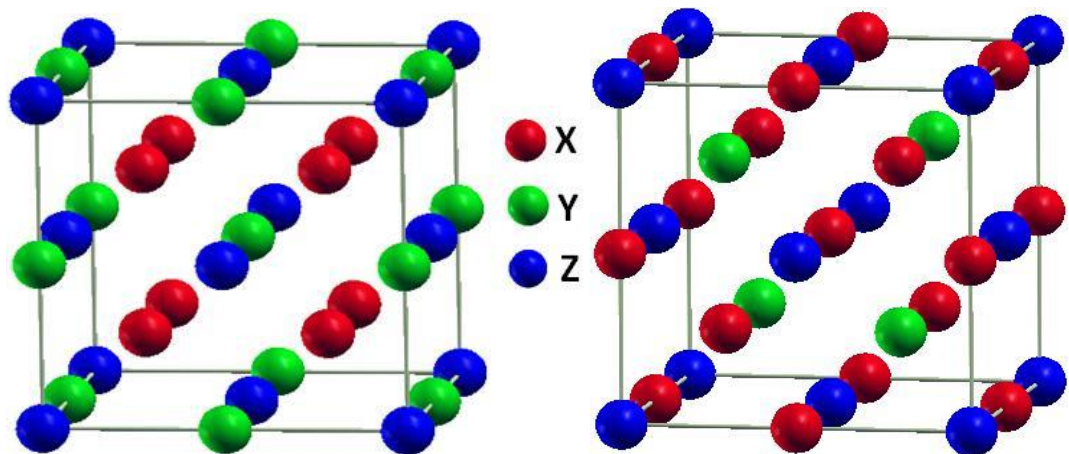


Figure I.5 : Les deux structures d'Heusler (*Full-Heusler*) : a) régulière ;
 b) inverse.

I.1.2.4. composés Heusler quaternaires

Il existe une autre famille pour les alliages d'Heusler, connus sous le nom de composés Heusler quaternaires, d'où sont issus quatre atomes chimiques différents avec deux éléments différents X et X' également, l'emplacement de ces derniers est respectivement dans les positions 4a et 4d. Pour l'élément Y, celui-ci est placé sur les positions 4b, quant à l'élément Z, lui est placé sur les positions 4c, le prototype $LiMgPdSb$ est présenté par cette structure qui cristallise dans le groupe d'espace $F-43m$ (groupe d'espace N° 216).

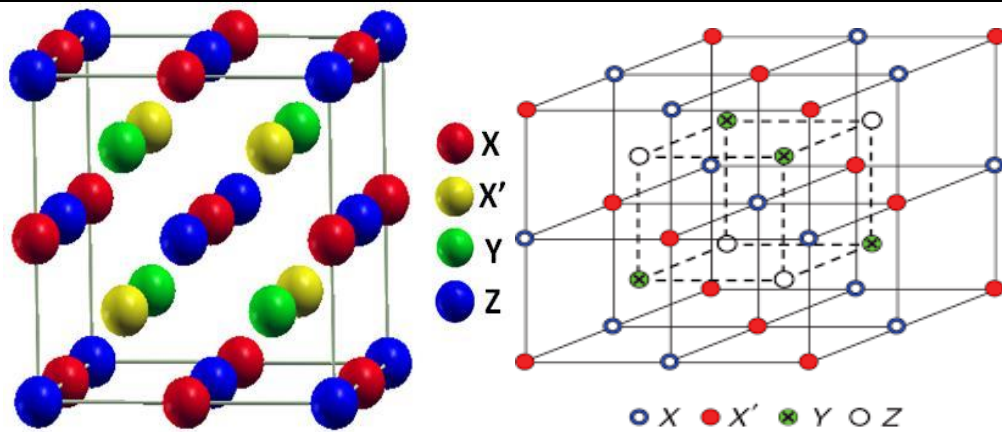


Figure I.6: structure d'Heusler quaternaire.

I.1.2.5. Autre type de heusler

Différents types de désordre atomique peuvent être observés pour la structure des alliages d'Heusler, ces types de désordres sont illustrés avec les différents mélanges des positions Wyckoff, les différentes phases possibles sont citées ci-dessous :

- La première phase : C1 groupe d'espace Fm-3m, où des atomes de même nature occupent les positions 4a et 4b.
- La deuxième phase : L21 groupe d'espace Fm-3m obtenue par un mélange entre les positions 4c et 4d.
- La troisième phase : B2 groupe d'espace Pm-3m obtenue par un mélange supplémentaire des atomes sur les positions 4a et 4b.
- La quatrième phase : B32a groupe d'espace Fd-3m obtenue par un mélange entre les positions 4a, 4c d'une part, et 4b, 4d d'autre part.
- La cinquième phase DO_3 de type BF_3 , les atomes X et Y ou les atomes X et Z sont distribués de façon aléatoire
- La sixième phase : W groupe d'espace Im-3m, où les atomes sont de même nature chimique occupent toutes les positions de Wyckoff (4a, 4b, 4c et 4d).

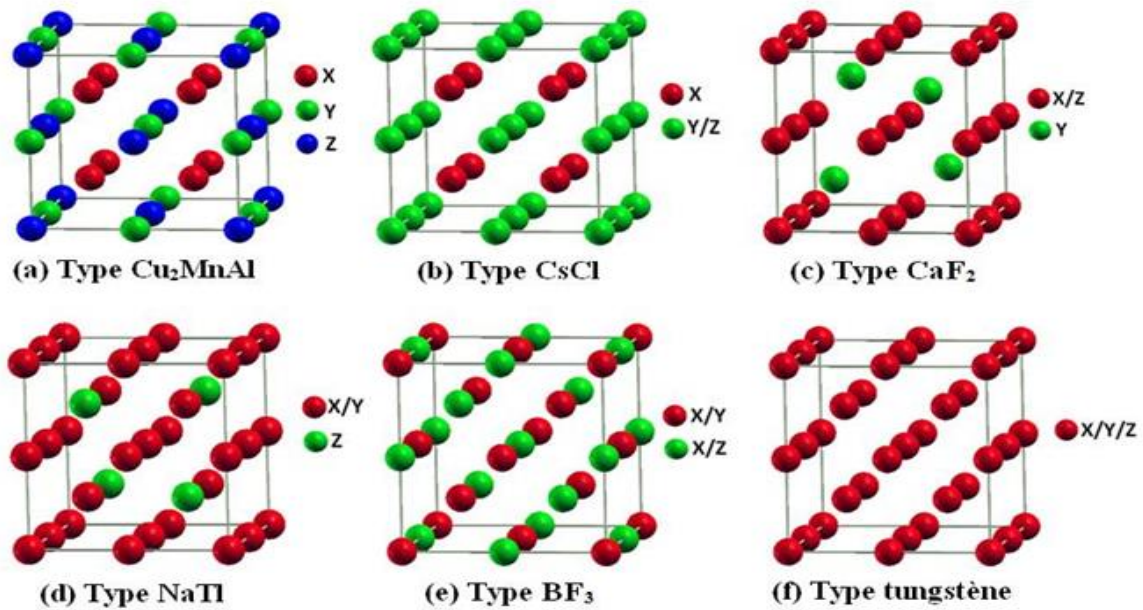


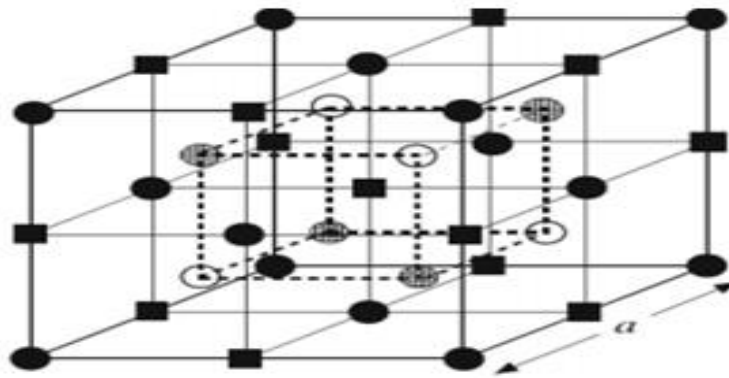
Figure I.7: Les différents types de désordre pouvant survenir dans la structure (half/full) Heusler: (a) désordre de type Cu_2MnAl , (b) désordre de type CsCl , (c) désordre de type CaF_2 , (d) désordre de type BF_3 , (e) désordre de type NaTl et (f) désordre de type tungstène

Les différents types de désordre atomique qui peuvent être observés pour :

- La structure demi-Heusler : désordre de type CaF_2 , désordre de type NaTl , désordre de type Cu_2MnAl , désordre de type CsCl , et désordre de type tungstène.
- La structure H'eusler sont : désordre de type CsCl , désordre de type BiF_3 de type
- Désordre de type NaTl , et désordre de type tungstène.

I.1.3. Les propriétés magnétiques

Les alliages de Heusler ont attiré la communauté scientifique en 1903, lorsque F. Heusler trouva que l'alliage de type Cu_2MnAl comporte comme un matériau ferromagnétique, bien qu'aucun de ces éléments constitutifs ne soit un matériau magnétique [15,16]. Cependant, il a fallu trois décennies jusqu'à ce que la structure cristalline a été déterminée comme structure cubique à face centrée [17,18]. 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 [19,20]. Il a fallu attendre la prédiction du ferromagnétisme semi-métallique dans MnNiSb par de Groot et al. [21] et dans Co_2MnSn par Kübler et al. [22] en 1983, pour que les matériaux Heusler retrouvent un intérêt scientifique.



Les type	●	○	■	●
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 : X_2YZ	X	X	Y	Z

Figure I.8:Ce tableau exprime les différent types des alliage heusler

Les matériaux XYZ présentent un sous-réseau magnétique puisque seuls les atomes sur les sites octaédriques peuvent porter un moment magnétique, comme indiqué sur la **figure.I.6**.

Dans les composés Heusler X_2YZ 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 X_2YZ peuvent montrer toutes sortes de phénomènes magnétiques, aujourd'hui plusieurs types sont connus tel que ferromagnétisme, ferrimagnétisme et ferromagnétisme semi-métallique.

I.1.3.1. 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 [23].

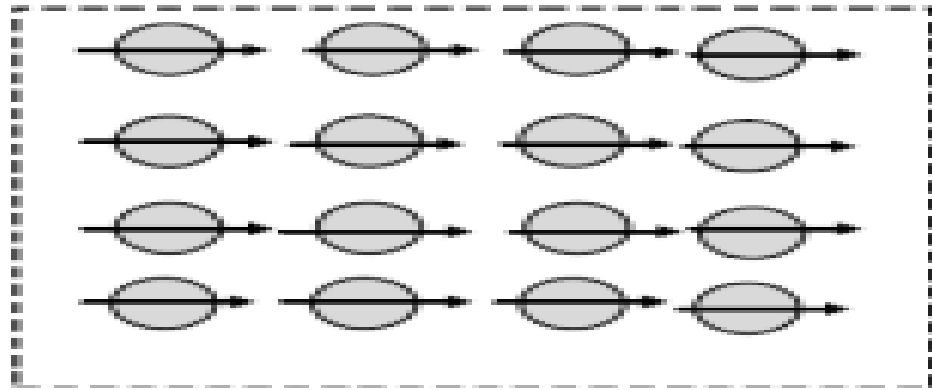


Figure I.9: Ferromagnétisme (réseau de spins) [24].

I.1.3.2. 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, ce qui provoque un état déséquilibré des aimantations [9].

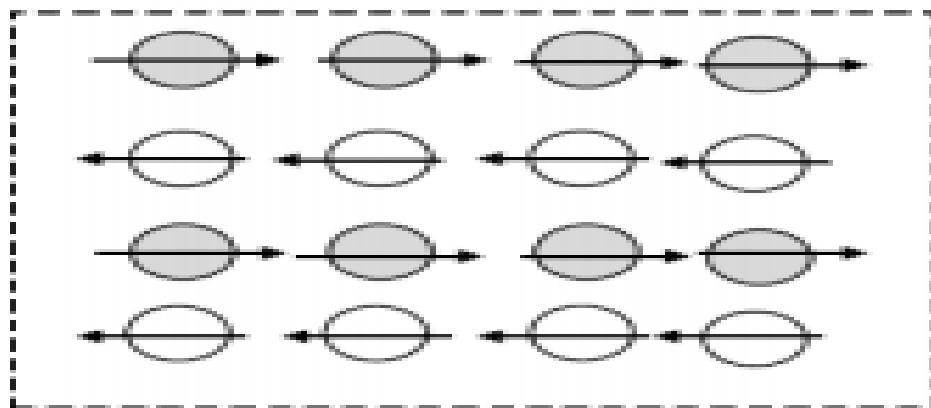


Figure I.10 : Ferrimagnétisme (réseau de spins) [25]. .

I.1.3.3. 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.

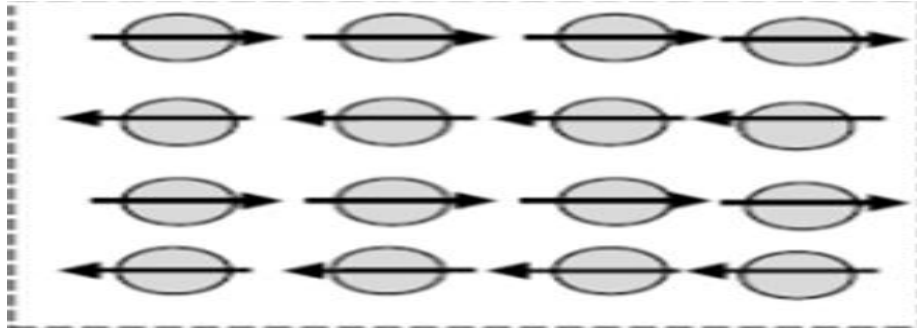


Figure I.11 : Antiferromagnétisme(réseau de spin [26]).

I.1.4. Demi-métallicité des alliages Heusler

De Groot et al. ont découvert le concept de demi-métal ferromagnétique par la première fois en s'intéressant au calcul de la structure de bande d'alliages demi-Heusler (NiMnSb) [27]. Conventionnellement, les matériaux ferromagnétiques présentent une densité d'états 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, était alors définie par l'expression suivante [28] :

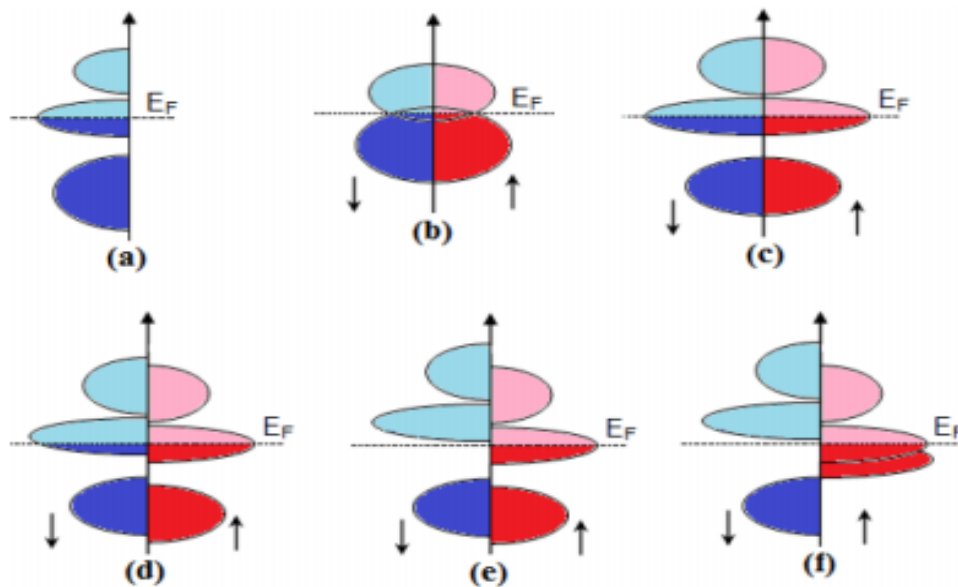


Figure I-12: Illustration schématique de la densité des états (a) d'un métal, (b) semi-métal, (c) un métal (spin polarisé), (d) un ferromagnétique, (e) un ferromagnétique demi-métallique, et (f) un ferrimagnétique demi-métallique [28].

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

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. La classification citée ci-dessus donne les différents types de ferromagnétisme demimétallique [28]

I.1.5. Règle de Slater-Pauling

Dans le cas des métaux de transition et de leurs alliages, les atomes des niveaux d'énergie atomiques 3d et 4s s'élargissent pour former une structure de bandes ou une densité d'états de la bande d, elle est plus importante que celle de la bande s au voisinage du niveau de Fermi (E_F). Il existe un recouvrement important des orbitales d des deux atomes voisins, il s'agit alors d'une compétition entre les corrélations électroniques qui tendent à localiser les électrons et leur énergie cinétique de la bande.

Les alliages Heuslers à base du cobalt sont aussi des composés intermétalliques à base de métaux de transitions 3d et ils présentent plutôt un magnétisme localisé par rapport à un caractère itinérant. L'explication de l'origine du magnétisme pour ces alliages est très compliquée mais leurs moments magnétiques varient de la façon régulière en fonction du nombre d'électrons de valence et en fonction de la structure cristalline. Ce comportement est appelé le comportement de Slater-Pauling [32, 33, 34].

Les composés demi-Heuslers (XYZ) ont trois atomes par unité de formule, leur moment magnétique total suit la règle de Slater-Pauling à 18 « règle de 18 », tandis que les composés full-Heuslers (X₂YZ) comprennent quatre atomes par maille, leur moment magnétique total obéit à la règle de Slater-Pauling à 24 « règle de 24 »

I.1.1. Les applications

I.1.1.1. La magnétorésistance GMR

La magnétorésistance géante a été mise en évidence expérimentalement en 1988 dans des empilements de couches de fer et de chrome [24,25]. 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 [26,27], 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 [25-27].

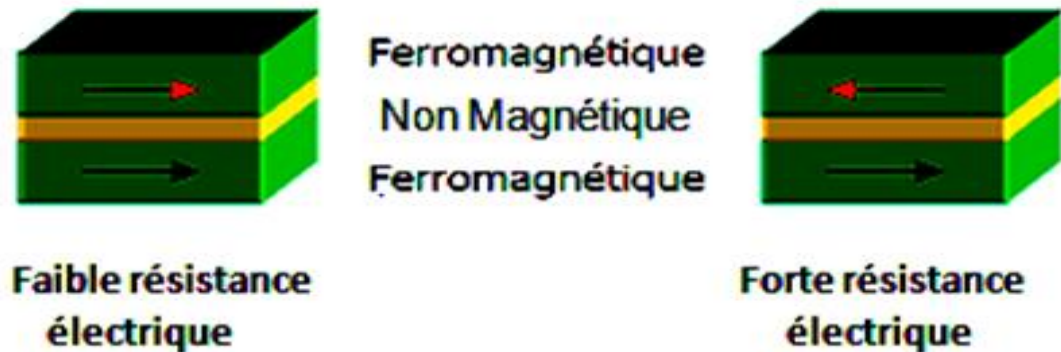


Figure I.13: les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction géant magnétique.

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 [27].

I.1.1.2. La magnéto-résistance TMR

Un autre phénomène a été décrite pour la première fois par l'observation du Jullière en 1975, dans une jonction de type métal/isolant/métal en Fe/Ge/Co [28], ce dernier observe un signal de magnéto-résistance tunnel de 14 % à basse température, et pour de très faibles tensions appliquées où les deux électrodes sont de nature ferromagnétique [29,30]. 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 [31].

Une jonction tunnel magnétique est une hétérostructure 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 [31].



Figure I.14 : les deux états, parallèle et antiparallèle, dans une jonction tunnel magnétique.

I.1.1.3. La spintronique

Ces dernières années, la spintronique, ou électronique de spin, est devenue incontournable dans le domaine du stockage de l'information, est une nouvelle technologie qui met à profit le spin de l'électron et plus précisément, le phénomène de courant polarisé en spin.

I.2. Conclusion

Nous avons défini les alliages Heuslers avec l'ensemble d'études de leurs différentes propriétés, où ils présentent un domaine très étendu et qui reste toujours en évolution grâce à leurs nombreux avantages et à leurs contributions qui peuvent être utilisés dans des technologies nouvelles et leurs applications dans plusieurs secteurs : comme le secteur médical, militaire, spatial, industriel, etc. L'étude des alliages Heuslers est une idée très récente par rapport au nombre des prédictions théoriques et les analyses expérimentales qui existent dans la littérature, elle est amorcée après plus de cent ans la découverte de ces alliages. Pour ce fait, nous sommes intéressés à étudier théoriquement les alliages Heuslers quaternaires à base de cobalt, ils peuvent être des demi-métaux ferromagnétiques, qui ont la particularité d'obéir à la règle de Slater et Pauling où ils peuvent avoir une polarisation en spin maximale (de 100 %) et une température de Curie relativement élevée; ces intéressantes propriétés montrent l'intérêt des alliages Heuslers quaternaires dans les domaines de la spintronique (l'électronique de spin) et de l'optoélectronique qui sont toujours un sujet d'actualité d'innovation.

Références

- [1] F. Heusler ,W. Starck, E. Haupt, Verh DPG 5 (1903) 220.
- [2] F. Heusler , Verh DPG 5 (1903) 219.
- [3] P.G. Van Engen, K.H. J. Bushow, R. Jongebreuer, M. Erman, Appl Phys Lett 42 (1983)
- [4] H. ZENASNI, « Etude théorique des propriétés magnétiques, électroniques et structurales des alliages
- [5] H.U. Schuster, H.W. Hinterkeuser, W. Schäfer, G. Will, Z Naturforsch B 31 (1976)
- [6] H. Hohl, A.P. Ramirez, C. Goldmann, G. Ernst, B. Wolfing, E. Bucher, J Phys Condens Matter 11
- [7] P.J. Sebastian, H. Eckert, S. Rayaprol, R.D. Hoffmann, R. Pöttgen, Solid State Sci 8
- [8] P.J. Webster, K.R.A. Ziebeck, Landolt-Börnstein - group III condensed matter, vol. 19C. Berlin:
- [9] L. Ritchie, G. Xiao, Y. Ji, T.Y. Chen, C.L. Chien, M. Zhang, Phys Rev B 68 (2003)
- [10] Y. Nishino, M. Kato, S. Asano, K. Soda, M. Hayasaki, U. Mizutani, Phys Rev Lett 79
- [11] M. Morcrettea, D. Larchera, J.M. Tarascona, K. Edstromb, J.T. Vaugheyc, M.M. Thackerayc,
- [12] O. Heusler, Ann Phys 19 (1934) 155.
- [13] A.J. Bradley, J.W. Rodgers, Proc Roy Soc A 144 (1934) 340.
- [14] R.A. de Groot, F.M. Mueller, P.G. van Engen, K.H.J. Buschow, Phys Rev Lett 50 (1983)
- [15] M.Ziese and M. J. Thornton (ed) 2001 Spin Electronics (Berlin: Springer)
- [16]. C Chappert, A Fert and F N van Dau 2007 Nature Mater. 6 813.
- [17] N F Mott 1935 Proc. Phys. Soc. 47 571.
- [18] S. Brooks, J.M Williams, Phys. Stat Sol A 32 (1975) 413.
- [19] P.J Webster, J Phys Chem Solids 32 (1971) 1221.
- [20] R.A. de Groot, F.M. Mueller, P.G. van Engen, K.H.J. Buschow, Phys Rev Lett 50 (1983) 2024
- [21] J. Kübler, A.R. Williams, C.B. Sommers, Phys Rev B 28 (1983) 1745.
- [22] C.M. Fang, G.A. de Wjis, R.A. de Groot, J Appl Phys 91 (2002) 8340.
- [23] H. Gie, J. P. Sarmant .
- [24] M. BOUDJERDA, Université Ferhat Abbas, Setif, Mémoire magister (2012).
- [25] E. Borody, , Presse de l'université du Québec.
- [26] O. HERNANDEZ, , Université Toulouse, France, Thèse (2013).
- [27] R. A. De Groot and F. M. Mueller, Phys. Rev. Lett, vol. 50, no. 25, pp. 2024–2027, Jun. (1983).
- [28] , M.M.Kirillova, A.A.Makhnev, E.I.Shreder, V.P.Dyakina, and N.B.Gorina, Phys. Status.Solidi, B187, pp. 231–240 (1995).
- [29] M. Hehn, F. Montaigne, A. Schuhl, 10-Nov-2002

- [30] M. Jullière, Phys. Lett. 54A, 225-226 (1975)
- [31] M.N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen van Dau, F. Petroff, P. Etienne, Phys Rev Lett 61 (1988) 2472.
- [32] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers, Phys Rev Lett 57(1986) 2442.
- [33] J.Slater, Phys. Rev, 49, pp. 537–545(1936).
- [34] Y.Nishino, M. Kato, S. Asano, K.Soda, M. Hayasaki, and U.Mizutani, Phys. Rev. Lett, 79, pp. 1909–1912 (1997).
- [35] L. Pauling, Phys. Rev, 54, pp. 899–904(1938).

Chapitre II

Méthodes de calcul

II. Chapitre II

II.1. La Théorie de la Fonctionnelle de la Densité

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 chacun 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

Les solides sont constitués par une association de particules élémentaires : les ions et les électrons. Le problème théorique fondamental de la physique des solides est de comprendre l'organisation intime de ces particules à l'origine de leurs propriétés. Mais dans ce cas, la mécanique classique s'avère être insuffisante et il faut faire appel à la mécanique quantique dont la base est la résolution de l'équation de Schrödinger :

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

Où E est l'énergie totale du système, ψ sa fonction d'onde (fonction propre), et \hat{H} son hamiltonien. Le problème général peut être posé sous la forme d'une équation du mouvement de toutes les particules présentes dans le cristal. L'hamiltonien exact du cristal (non relativiste) résulte de la présence des forces électrostatiques d'interaction : soit répulsion ou attraction suivant la charge des particules (ions, électrons). Généralement, l'opérateur hamiltonien s'écrit :

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

T_n est l'énergie cinétique noyaux.

V_{n-n} l'énergie potentielle d'interaction entre les noyaux. V_{n-e}

l'énergie potentielle d'attraction noyaux-électrons.

V_{e-e} l'énergie potentielle de répulsion entre les électrons et T_e l'énergie cinétique des électrons.

La résolution de l'équation (II.1) conduit à la résolution d'un problème à N corps, qui ne peut être résolue directement. Afin de trouver des états propres acceptables, des approximations ont été appliquées, parmi-elles 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 considère 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'devient alors:

$$\hat{H} = T_e + V_{n-e} + V_{e-e} \quad (II.3)$$

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 [9].

La résolution par Born-Oppenheimer peut se traduire par l'organigramme suivant :

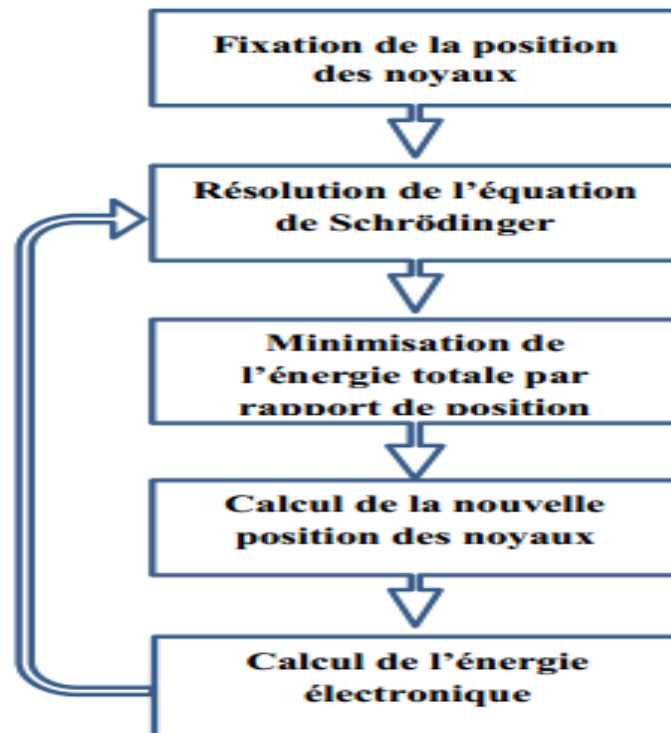


Figure II.15. Mise en œuvre d'algorithmique de l'approximation de BornOppenheimer.

Plusieurs méthodes existent pour la résolution de l'équation (II.3) dont les premières sont les méthodes de Hartree-Fock basées sur l'hypothèse des électrons libres. Ces méthodes sont beaucoup utilisées en chimie quantique pour traiter les atomes et les molécules, mais elles sont moins précises pour les solides.

Il existe une méthode plus moderne et probablement plus puissante qui est :

II.1.4. Théorie de la fonctionnelle de la densité

La théorie de la fonctionnelle de la densité, DFT pour '*Density Functional Theory*', est l'une des méthodes les plus largement utilisées dans les calculs *ab initio* de la structure d'atomes, de molécules, de cristaux et de surfaces. Une première approche a été proposée par *Thomas* et *Fermi* dans les années 1920 [10,11]. Un pas important a été franchi dans l'étude de la structure électronique avec la formulation de cette théorie par *Hohenberg* et *Kohn* [12].

II.1.4.1. 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 ».

$$E(\rho_0) = \min E(\rho) \quad (II.8)$$

ρ_0 : la densité de l'état fondamental. La fonctionnelle de l'énergie totale de l'état fondamental s'écrit comme suit :

$$E[\rho(r)] = F[\rho(r)] + \int V_{ext}(r)\rho(r)d^3r \quad (II.9)$$

Où :

$$F[\rho(r)] = \langle \Psi | T + V | \Psi \rangle \quad (II.10)$$

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 $F(\rho)$ [9]. Il est

alors nécessaire de trouver des approximations suffisamment permettant de traiter ce problème [5].

II.1.4.2. 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:

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

Avec:

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

$E_H[\rho(r)]$: indique le terme de H (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 [13].

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

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]:

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

Avec : $\varphi_i(\vec{r})$ est la fonction d'onde à une particule et est ε_i l'énergie d'une particule. Les particules fictives subissent un potentiel effectif qui est défini par la sommation de trois potentiels :

$$V_{eff}(\vec{r}) = V_{ext}(\vec{r}) + V_H(\vec{r}) + V_{XC}(\vec{r}) \quad (\text{II.14})$$

Les deux termes V_H et V_{XC} s'expriment en fonction de la densité électronique par les relations Suivant [4.14.15].

$$\left\{ V_H = \frac{\partial E_X \rho(r)}{\partial \rho(r)}, V_{XC} = e^2 \int \frac{\rho(r')}{|r - r'|} d^3r \right\} \quad (\text{II.15})$$

La densité d'électrons est donnée par la somme de tous les états occupés [16] :

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

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 [9].

II.1.4.3. 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] :

$$E_{xc}^{GGA}[\rho(\vec{r})] = \int \rho(\vec{r}) f_{xc}[\rho(\vec{r}), \nabla\rho(\vec{r})] d^3(\text{II. 21})$$

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 [17-18], 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 -19].

II.1.4.4. 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'itérations $(i+1)^{\text{ième}}$.

$$\rho_{\text{entrée}}^{i+1} = (1 - \alpha)\rho_{\text{entrée}}^i + \alpha\rho_{\text{sortie}}^i \quad (\text{II. 22})$$

i représente la $i^{\text{ème}}$ 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.17) et le processus refait toutes les étapes précédentes jusqu'à une convergence désirée [4]. Le figure suivante represente la méthode pour résolution des équations de Kohn et Sham :

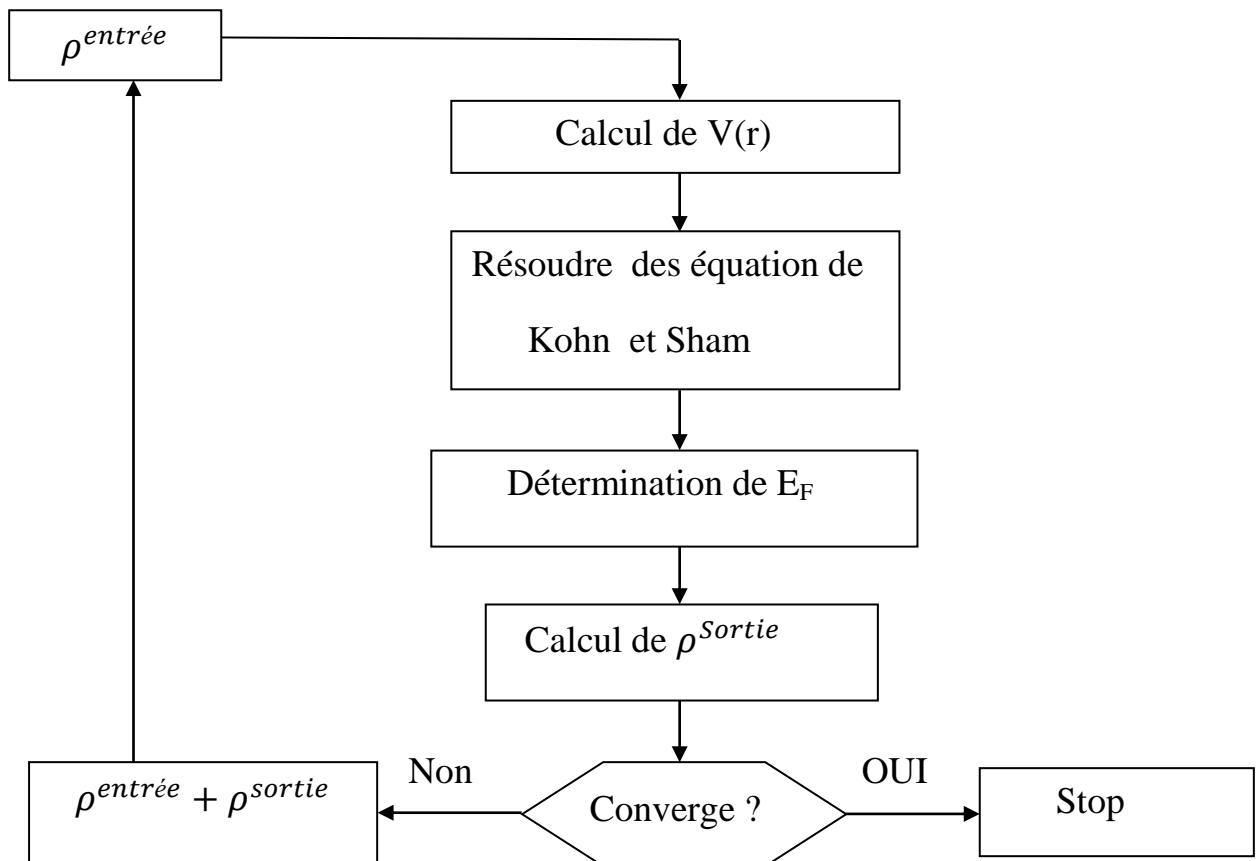


Figure II-16: Le cycle self-consistent dans le calcul de la fonctionnelle de densité d'états

II.1.5. Succès de la DFT

La DFT permet souvent d'obtenir, à plus faible cout, des résultats d'une précision proche de celle obtenue avec des calculs post-*Hartree-Fock*. De plus, elle peut être utilisée pour étudier des systèmes relativement gros, contenant jusqu'à plusieurs centaines d'électrons, que les calculs post-*Hartree-Fock* ne peuvent pas traiter. Ceci explique que la DFT est aujourd'hui très utilisée pour étudier les propriétés des systèmes moléculaires ou même biologiques, parfois en combinaison avec des méthodes classiques.

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

LAPW)

Il existe plusieurs méthodes de calculs des structures de bandes, qui sont classées en trois principaux types, ce qui nécessite des résultats expérimentaux ou des données fondamentales :

- Les méthodes empiriques pour lesquelles les calculs nécessitent des résultats expérimentaux.
- Les méthodes semi-empiriques pour lesquelles les calculs nécessitant à la fois des résultats expérimentaux et des données fondamentales

Les méthodes ab-initio pour lesquelles les calculs nécessitent seulement les données fondamentales.

. Ces dernières années, les chercheurs ont développé des méthodes basées sur des concepts théoriques appelées les méthodes de premier principe, parmi lesquelles on peut citer trois groupes de méthodes pour la résolution de l'équation de *Schrödinger* et basées sur la théorie fonctionnelle de la densité (DFT) :

- Les méthodes basées sur une combinaison linéaire d'orbitales atomiques (LCAO) [20,21], utilisables, par exemple, pour les bandes *d* des métaux de transition.
- Les méthodes dérivées des ondes planes orthogonalisées (OPW) [21,21] mieux adaptées aux bandes de conduction de caractère *s-p* des métaux simples.
- Les méthodes cellulaires du type ondes planes augmentées (APW) [23] et la méthode de la fonction de *Green* de *Korringa, Kohn* et *Rostoker* (KKR) [24,25] applicables à une plus grande variété de matériaux.
- Les méthodes linéarisées mises au point par *Andersen* [26] : Ondes planes augmentées linéarisées (LAPW) et orbitales *Muffin-Tin* linéarisées (LMTO), permettent de gagner plusieurs ordres de grandeur dans les temps de calcul.

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

En 1937 Slater expose la méthode APW (*Augmented Plane Wave*) dans son article [17]. 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_a . les solutions de l'équation de Schrödinger dans cette zone son
- 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.

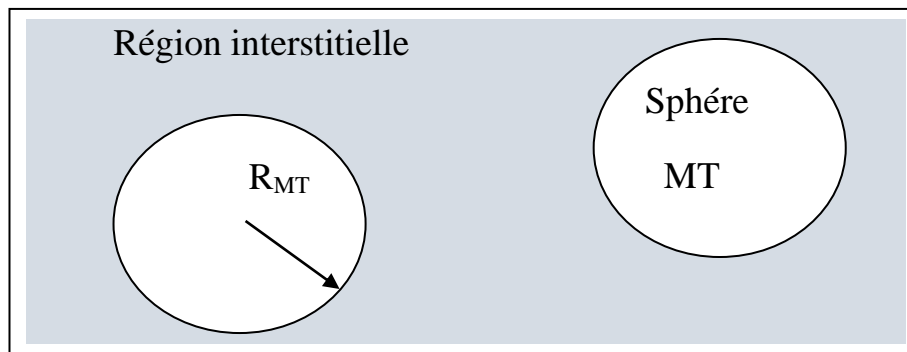


Figure II.17: potentiel Muffin-Tin .

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

La méthode LAPW (*linearized augmented plane wave*), développée par Andersen [4], est une amélioration de la méthode des ondes planes augmentées (APW) dans laquelle les fonctions de base et leurs dérivées sont continues par adaptation à la fonction radiale et sa dérivée. 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

II.2.3. Amélioration de la méthode FP-LAPW :

Le but de la méthode FP-LAPW est d'obtenir des énergies de bande précises au voisinage des énergies de linéarisation E_l . Dans la plupart des matériaux, il suffit de choisir les énergies E_l au voisinage du centre des bandes. Cependant, ce n'est pas toujours possible, et il existe de nombreux matériaux pour lesquels le choix d'une seule valeur de E_l n'est pas suffisant pour calculer toutes les bandes d'énergie : par exemple, les matériaux avec des orbitales 4f [25,26] et les éléments des métaux de transition. C'est le problème fondamental de l'état de semi-cœur qui est un état intermédiaire entre l'état de valence et l'état de cœur. Il existe deux moyens pour traiter cette situation : L'usage des fenêtres d'énergie multiple et l'utilisation d'un développement en orbitales locales.

II.3. Le code Wien2k

Wien2k est un programme informatique de simulation constitué de plusieurs programmes indépendants. Il a été développé à l'institut de Chimie des Matériaux à l'université Technique de

Vienne et publié par Blaha et *al.* [27]. Le package Wien2k écrit en fortran et fonctionne sous un système d'exploitation UNIX. Wien2k sert à effectuer des calculs quantiques dans le but d'étudier les différentes propriétés structurales, mécaniques, électriques, magnétiques...etc des solides périodiques. Les calculs s'effectuent par ce code ; sont basés sur la théorie de la fonctionnelle de densité (*DFT*).

Des nombreuses propriétés des matériaux peuvent être déterminées avec ce code, parmi lesquelles on cite :

- Les bandes d'énergie, la densité des états et le surface de Fermi.
- La densité d'électrons, la densité de spins, et les facteurs de structure aux rayons X.
- L'énergie totale, les forces atomiques, les géométries d'équilibre, les optimisations de structure.
- Les gradients de champ électrique, les décalages isomériques, les champs hyperfins
- La polarisation des spins (structures ferro, antiferromagnétique ou autres), le couplage spin-orbite.
- Les spectres d'émission et d'absorption aux rayons X,
- Les propriétés optiques

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, B (1964) 864.
- [3] W. Kohn, L. J. Sham, Phys. Rev. 140, A (1965) 1133.
- [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 Fe.
- [6] H. ZENASNI, « Etude théorique des propriétés magnétique électronique et structurales des alliages Heusler », Université de Tlemcen, Thèse (2013). $3\text{O}_4/\text{MgO}(001)$ », Université Toulouse III-Paul Sabatier, Thèse Doctorat, (2010).
- [7] M. Born and R. Oppenheimer, "Zur Quantentheorie der Molekeln," Annalen der Physik, vol. 389, pp. 457-484, 1927.
- [8] D. R. Hartree, Proc. Cambridge Philos.Soc.24,89 (1928).
- [9] I. ABDELLAOUI, « Etude du magnétisme dans les oxydes métalliques : TiO_2 et HfO_2 », Université Abou Bekr Belkaid, Tlemcen, Mémoire de Magister, 2011.
- [10] L. H. Thomas, The calculation of atomic field,Proc. Camb. Phil. Soc. 23 (1927) 542.
- [11] E. Fermi, Z. Physik 48 (1928) 73.
- [12] P. Hohenberg, W. Kohn, Inhomogenous Electron Gas, Phys. Rev. 136 (1964) B864.
- [13] A. BOUDALI, « Etude des propriétés structurales élastiques électroniques et optiques des pérovskites cubiques LaAlO_3 et XTiO_3 (X= Ca, Sr, Pb) », Université d'Oran, Thèse doctorat, 2011.
- [14] 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, (1992) 1045.
- [15] R. M. Martin, « Electronic structure – Basic Theory and Practical Methods » Cambridge University Press (2004) 624.R. M. Martin, « Electronic structure – Basic Theory and Practical Methods » Cambridge University Press (2004) 624.
- [16] D. Singh, Planewaves, Pseudopotentials, and LAPW Method, Kluwer Academic (1994).
- [17] 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) (1992) 6671 -6687.
- [18] A. D. Becke, « Density function exchange energy approximation with correct asymptotic behavior ». Phys. Rev. A, 38(6), (1988) 3098-3100.
- [19] J. P. Pedrew, K. Burke and M. Ernzerhof. Generalized Gradient Approximation Made Simple. Phys. Rev, Lett. 77 (18), (1996) 3865-3868.
- [20] F. Bloch, Z. Phys. 52, 555 (1928).
- [21] J. C. Slater, « Quantum Theory of Molecules and Solids », 2, 8 (1965).
- [22] C. Herring, Phys. Rev. 57, 1169 (1940).
- [23] J. C. Slater, Phys. Rev. 51, 846 (1937).

-
- [24] J. Koringa, *Physica*, 13, 392 (1947).
[25] F. S. Ham and B. Segall, *Phys. Rev*, 124, 1786 (1961).
[26] O. K. Andersen, *Phys. Rev. B* 12, 3060 (1975).
[27] D.J. Shaughnessy, GR. Evans and M.I. Drby. *J. phys.* F14, 1671(1987).

Chapitre III

Résulta et

Discussion

III. Chapitre III

III.1. Introduction

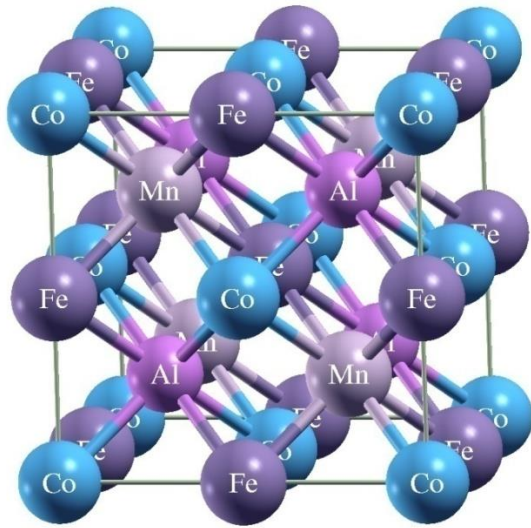
Dans le cadre de la DFT, les méthodes de type ab-initio autorisent la prédiction des différentes propriétés des matériaux solides. Plusieurs modèles théoriques ont été proposés dans le but d'interpréter des mesures expérimentales et de prédire de nouveaux effets ainsi que de concevoir de nouveaux matériaux. L'objectif de ce chapitre est dédié à l'étude des différentes propriétés physiques de l'alliages de Heuslers quaternaires CoFeMnAl. Dans ce chapitre, nous exposons des investigations sur les différentes propriétés structurales, électroniques, magnétiques, et leurs interprétations qui sont inscrits dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) en utilisant la méthode FP-LAPW qui est implémentée dans le code de calcul WIEN2k[1] , que nous avons décrit dans le chapitre précédent, nous avons traité le terme échange et de corrélation par l'approximation GGA .Dans cette approche où le résultat obtenu montre que cet alliage de Heusler quaternaires est de très bon candidat pour des applications spintronique.

III.2. La structure cristalline des composés CoFeMnAl

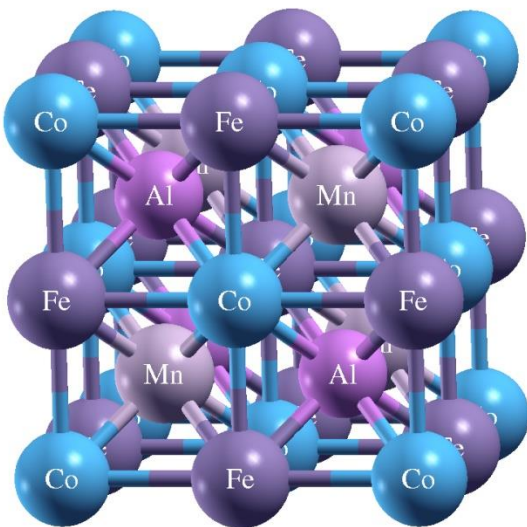
Ce tableau représente les positions occupée par les atomes de composé quaternaire Heusler dans le trois type :

	Co <i>position</i>	Fe <i>position</i>	Mn <i>position</i>	Al <i>position</i>
Type Y	4b(1/2 ,1/2,1/2)	4a(0 ,0,0)	4c(1/4,1/4,1/4)	4d(3/4,3/4,3/4)
Type L21	4a(0,0,0)	4b(1/2 ,1/2,1/2)	4c(1/4,1/4,1/4)	4d(3/4,3/4,3/4)
Type X	4a(0,0,0)	4c(1/4,1/4,1/4)	4b(1/2 ,1/2,1/2)	4d(3/4,3/4,3/4)

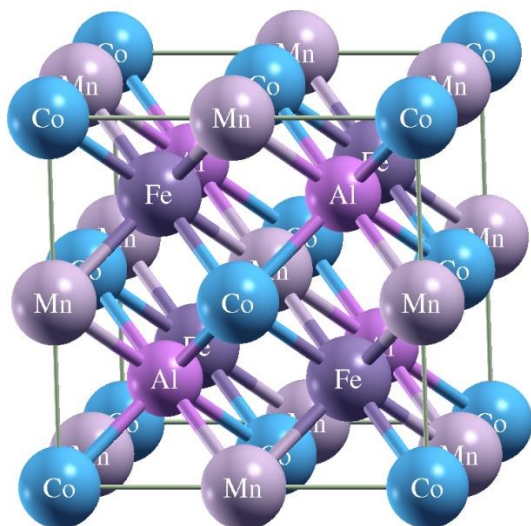
Tableau III.1 représente les positions occupée par les atomes de composé quaternaire de Heusler dans les trois types .



La phase la plus probable est la phase **LiMgPbSb-type** noté y-type avec le groupe d'espace N° 216 (F43m).



La phase **Cu₂MnAl-type** noté L21-type avec le groupe d'espace N° 216 (F43m)



La phase **Hg₂CuTi-type** noté x-type avec le groupe d'espace N° 216 (F43m)

Figure III.1 : Les différents types de la structure

III.3. Détails des calculs

Dans ce chapitre les calculs ont été réalisés en utilisant le code wien2k [2] qui est une implémentation de la méthode des ondes planes augmentées linéarisées avec un potentiel total (FP-LAPW) [2-3] dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité DFT[4] . Pour le potentiel d'échange et de corrélation, nous avons utilisé l'approximation du gradient généralisé GGA (Generalized Gradient Approximation) [5]. Dans la méthode (FP-LAPW), la cellule unitaire est divisée en deux régions : les sphères (de type muffin-tin) de rayon R_{mt} (Les sphères qui ne se chevauchent pas et qui sont centrées sur chaque atome de rayon R_{mt}). la région interstitielle (la région restante). La première étape consiste à préciser les valeurs des paramètres importants, qui influent sur le temps et la précision du calcul

- Les valeurs de R_{mt} [rayon de la sphère de muffin-tin, données en l'unité atomiques (u.a)].
- Le produit $R_{mt} \cdot K_{max}$ où R_{mt} 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.
- 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 points k considéré dans la zone irréductible de Brillouin.
- l'énergie de séparation des états de cœur et des états de valence est basée sur- 6.0 Ry.

Pour le calcul en utilise l'approximation GGA pour le potentiel d'échange et de corrélation. Les paramètres utilisés sont donnés dans le Tableau.III.2

CoFeMnAl	$R_{mt Co}$	$R_{mt Fe}$	$R_{mt Mn}$	$R_{mt Al}$	$R_{mt} \cdot K_{max}$	K_{point}	G_{max}
Y-Type							
X-Type	2,22	2,22	2,22	2,08	9	3000	12
L21-Type							

Tableau.III.2 : Tableau Les valeurs de $R_{mt} \cdot K_{max}$, K points, G_{max} et R_{mt} de Co, Fe, Mn, Al dans structure quaternaire heusler CoFeMnAl.

III.4. Propriétés structurales des composés CoFeMnAl

Cette étape est fondamentale, elle nous permet d'optimiser les grandeurs nécessaires aux calculs des autres propriétés, tel que le paramètre cristallin, pour cela nous avons effectué à l'aide du code wien2k [2] un calcul auto-cohérent de l'énergie totale (« Self Consistent Field »,SCF). Afin de déterminer les données structurales, à savoir le paramètre de maille a_0 , le module de compressibilité B_0 et sa dérivée B' ; nous ajustons les courbes obtenues à l'aide de l'équation d'état de Murnaghan [6] :

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

$$V = V_0 \left(1 + \frac{B'P}{B_0} \right)^{-1/B'}$$

E : L'énergie totale; E_0 : L'énergie à l'état fondamental, V_0 : le volume à l'équilibre de la maille élémentaire. B_0 : Le module de compression à l'équilibre, B' : La dérivée de B_0 par rapport à la pression. La valeur de B_0 est liée à la courbure de la fonction $E(V)$: $B_0 = V \frac{\partial^2 E}{\partial V^2}$. Le paramètre du réseau à l'équilibre a_0 est donné par le minimum de la courbe de l'énergie totale E totale en fonction du volume.

III.5. Etat d'équilibre et la stabilité structurale

Dans le but d'étudier l'état d'équilibre et l'analyser la variation de l'énergie totale en fonction du volume de la maille, nous avons examinés trois configurations possibles [7-8-9-10] de la structure CoFeMnAl .

La figure suivante représente respectivement l'optimisation de l'énergie totale $E(eV)$ en fonction du volume du trois types respectivement dans la structure cubique à l'aide l'approximations GGA pour une phase magnétique (spin polarisée) et non magnétique. Nous constatons suivant la Figure (III.2), et de la comparaison des énergies minimales des phase magnétique et non magnétique pour les trois types (tableau III.3), que la phase la plus stable est la phase magnétique.

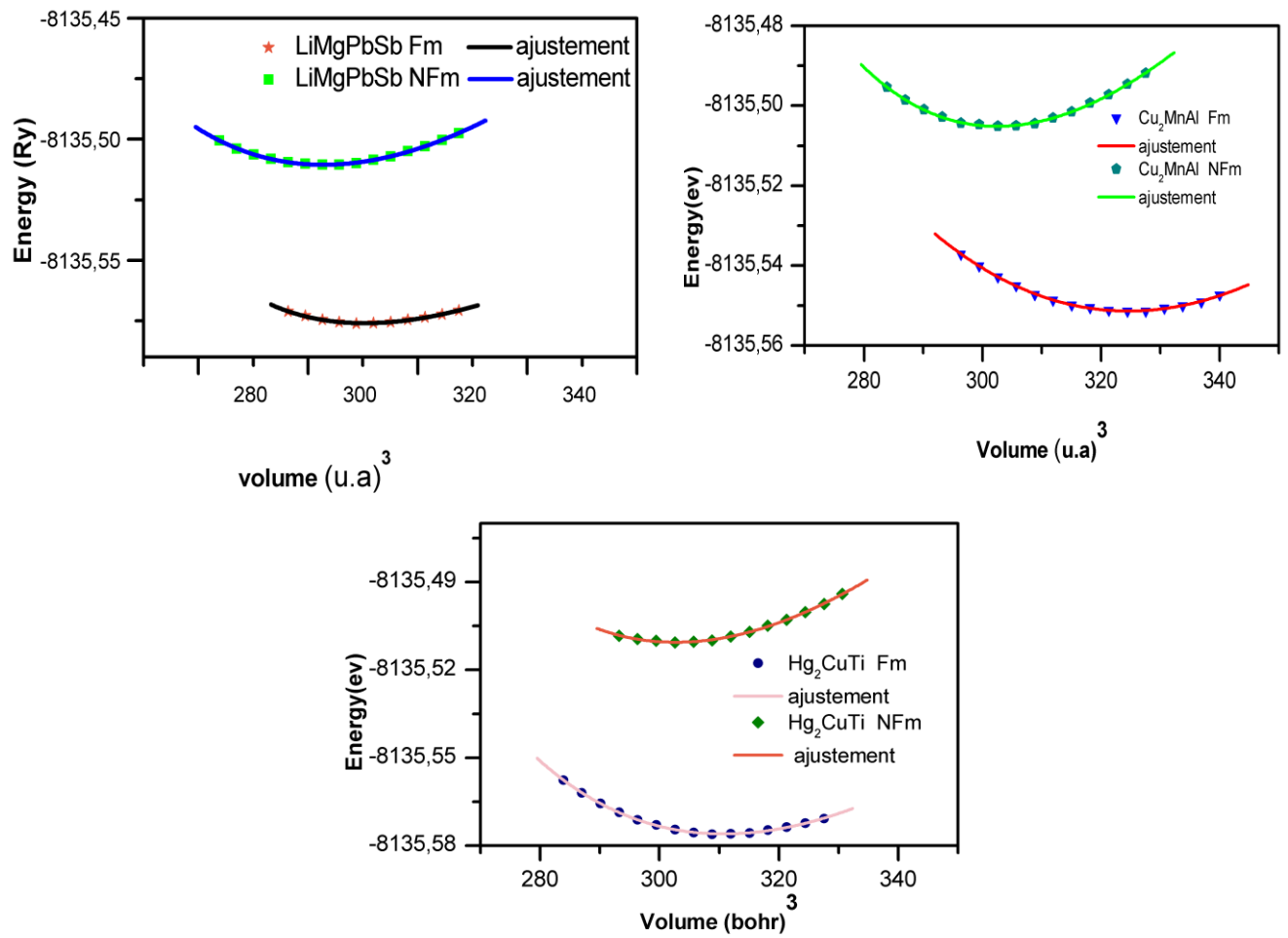


Figure III.2 : La variation de l'énergie totale en fonction du volume de Cu₂MnAl-type ,Hg₂CuTi-type, LiMgPbSb-type Entre deux cas (spin polarisé,spin non polarisé).

Après avoir déterminé la phase la plus stable, nous allons déterminer le type de la structure (type) le plus stable. Nous calculons et traçons l'évolution de l'énergie totale en fonction du volume pour les trois types de structures CoFeMnAl pour obtenir l'énergie la plus favorable, sachant que la structure la plus stable est celle qui possède une énergie totale la plus basse. La figure III.3 ci-dessous, représente respectivement l'optimisation de l'énergie totale en fonction du volume pour les trois types du matériau CoFeMnAl dans la phase magnétique.

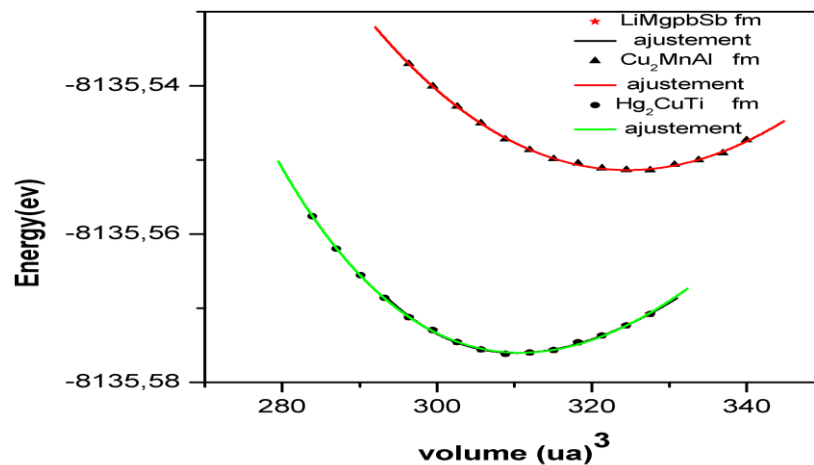


Figure III.3 : La variation de l'énergie totale en fonction du volume des 3 type Dans le cas (spin polarisé) .

Le Tableau III.2 résume Tous les résultats obtenus pour les trois types de composé Heuslers quaternaire CoFeMnAl, nous avons comparé le paramètre de maille et l'énergie pour chaque type. A partir de ce tableau, on constate que le type de structure le plus stable est celui de la phase **LiMgPbSb-** noté y-type avec le groupe d'espace N° 216 (F43m), car il possède l'énergie E0 la plus minimale.

CoFeMnAl	phase	$a_0(\text{\AA})$	$B_0(\text{GPa})$	B'	$V_0(\text{bohr})^3$	$E_0(\text{R}_Y)$
Y-Type	FM	5.6873	196.5320	9.6870	310.3016	-8135.576041
	NFM	5.6406	220.2250	4.5657	302.7724	-8135.51055
X-Type	FM	5.6897	193.8404	5.1063	310.7380	-8135.576017
	NFM	5.6409	219.9930	4.3583	302.8184	-8135.510542
L21-Type	FM	5.7730	160.8344	1.1673	324.5918	-8135.551365
	NFM	5.6387	220.2056	5.1459	302.4583	-8135.505145

Tableau III.3 : Tableau Le paramètre de maille a_0 , le module de compressibilité B_0 , sa première dérivée B' , l'énergie totale $E_0(\text{R}_Y)$, et le volume à l'équilibre V_0 , pour différentes configurations magnétiques dans le structure quaternaire heusler CoFeMnAl.

III.6. Propriétés électroniques des composés CoFeMnAl

Les propriétés électroniques d'un matériau (structure de bande, densité d'état) dépendent essentiellement de la répartition des électrons dans les bandes de valence et de conduction. Ces derniers sont calculés pour alliages quaternaires de Heusler du Compose CoFeMnAl à leur état d'équilibre avec le paramètre de maille optimisé de la structure la plus stable de type Y, 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.

III.6.1. La structure de bandes

La théorie des bandes est une modélisation des valeurs d'énergie que peuvent prendre les électrons d'un solide à l'intérieur de celui-ci. De façon générale, ces électrons n'ont la possibilité de prendre que des valeurs d'énergie 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 de bandes[12].

Nous avons calculé la structure de bande en utilisant la méthode FPLAPW. Comme pour tous les semi-conducteurs, ils se caractérisent par la bande interdite ou gap qui sépare les bandes de valence et de conduction, On définit le gap d'énergie comme la différence entre le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction.

Dans cette section nous avons étudié les propriétés électroniques de ce matériau par l'approximation GGA. Les structures de bandes polarisées par spin (figure III.4) pour le composé CoFeMnAl présente une demi-métallicité, car la région de bande des électrons minoritaires (spin down) présente un

caractère semi-conducteur et la région de bande des électrons majoritaires (spin up) passant par le niveau de Fermi présentent un comportement métallique.

Afin d'améliorer les valeurs de gap dans la figure III.4 la représentation ci-jointe dessous permet de comprendre le comportement du matériau étudié. En toute évidence, les structures de bandes de spins majoritaires (spin-up) ont des intersections métalliques 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, pour ce qui est des spins minoritaires (spin-down), l'apparition de la bande interdite au sein du niveau de Fermi confirme la propriété de demi métallicité avec une polarisation en spin de 100%, le gap demi-métallique est estimé par le calcul GGA au niveau de Fermi, ce qui indique un caractère semi- conducteur

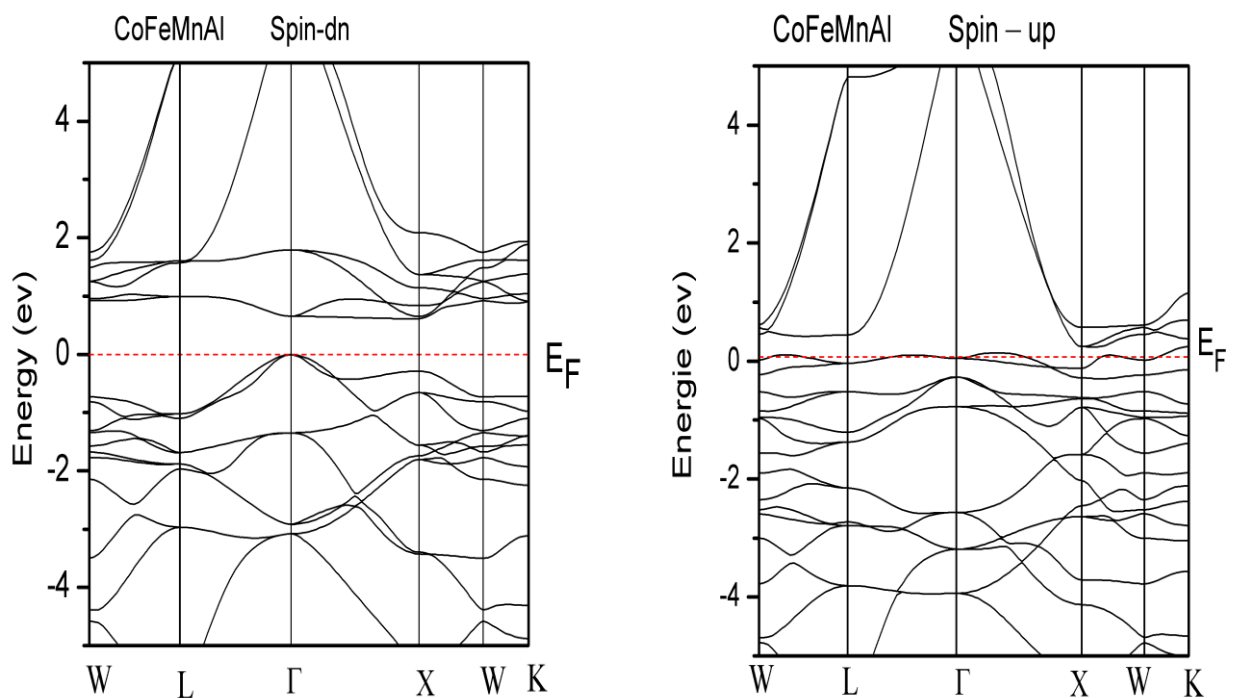


Figure III.4: Les structures de bandes pour les spins majoritaires et les spins minoritaires de l'alliage CoFeMnAl.

III.6.2. La densité d'états DOS (Density Of States)

Nous avons procédé au calcul des densités d'états totales et partielles pour comprendre d'une façon générale la structure électronique de notre composé en détail. En tenant compte de la

polarisation en spin (les spins up et down. La densité d'état totale (DOS) et partielle (PDOS) a été calculée et tracée en utilisant l'approche GGA pour le composé CoFeMnAl dans la figure III.5 et III.6 .

D'après la figure III.4, il est clair que les électrons majoritaires (spin-up) ont un caractère métallique, tandis que l'apparition d'un gap au niveau de Fermi dans le cas des spins minoritaires, confirme la propriété de demi-métallicité. Ce gap d'énergie dans le cas des électrons minoritaires indique une polarisation de spin à 100% au niveau de Fermi.

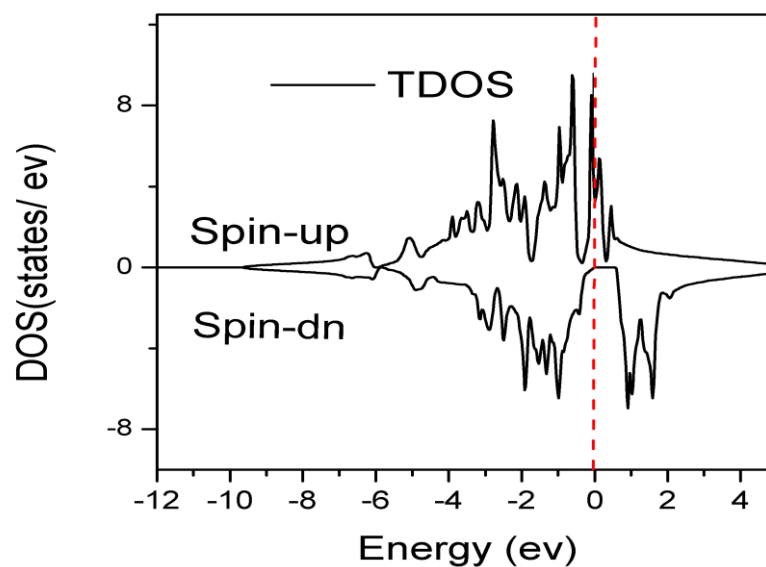


Figure III.5 : La densité Total du composé Heusler quaternaire CoFeMnAl.

Ce qui concerne la contribution des états électroniques sont diffère d'un atome à un autre, donc, à partir de la figure III.6 on peut tirer quelques remarques :

Au-dessous de niveau de Fermi

- Une contribution fort des élément Co, Fe, Mn, dans une gamme d'énergies située entre -4 eV et 4eV est due à la contribution des états 3d, tandis que la contribution de élément Al est négligé.
- La contribution de l'élément Al est beaucoup plus dominante que les autres éléments, dans une gamme d'énergies située entre -0.2 eV et 0.2 eV, cette contribution est due essentiellement à la contribution des états S et P, accompagnée d'une contribution Faible des éléments Co , Fe , Mn.

Au-dessus de niveau de fermier

- L'intervalle d'énergies situées entre 0 eV et 5eV est dominé essentiellement par les états 3d des atomes Co et Fe, Mn par contre la contribution de l'atomes Al. est négligeable

- dans la même gamme d'énergies située entre 0 eV et 5 eV, Une contribution moyenne de l'élément Al, est due à la contribution des états s, p, tandis que la contribution des éléments Co, Fe, Mn est négligeable.

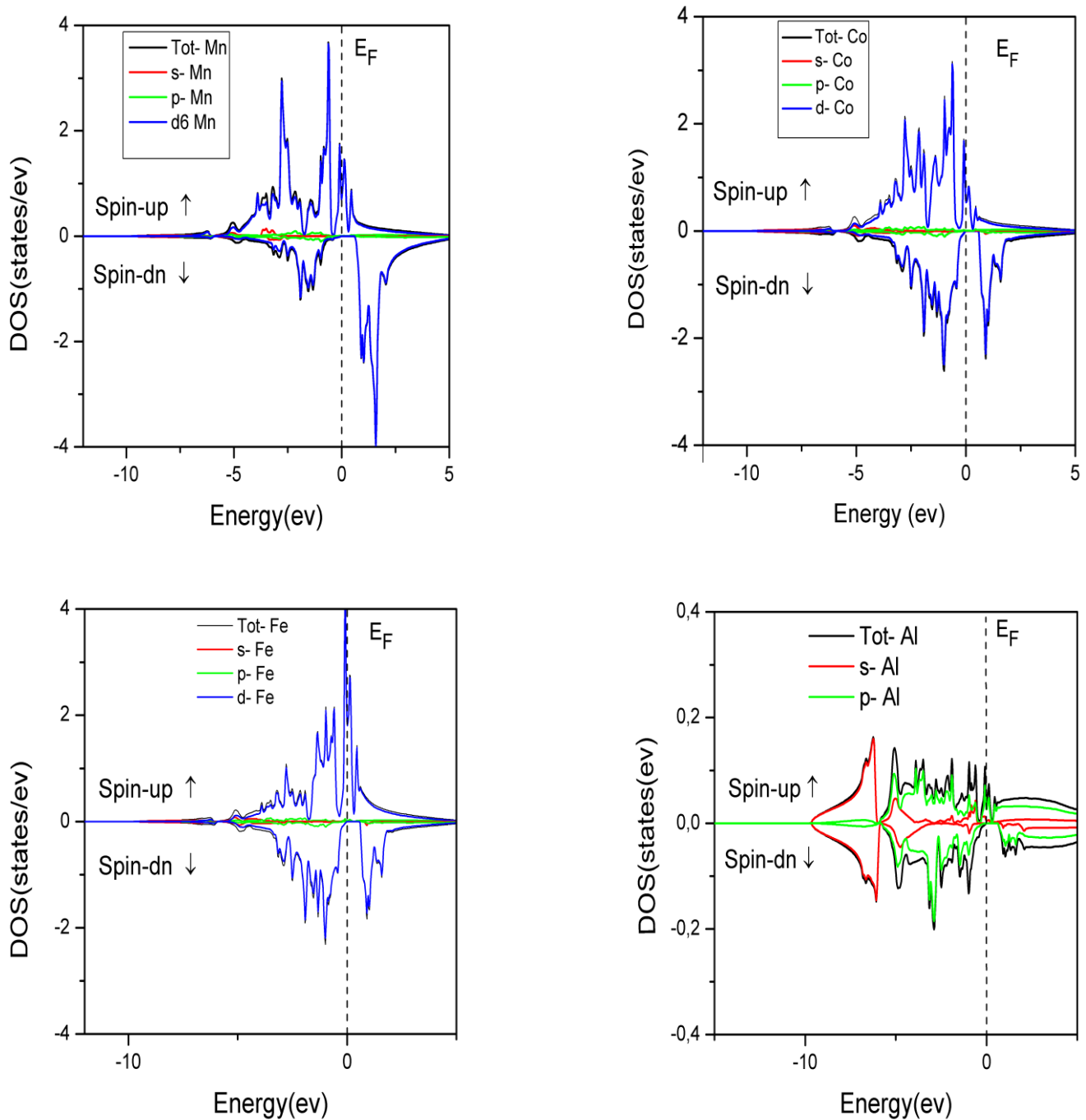


Figure III.6 : La densité d'état partielle du composé Heusler quaternaire CoFeMnAl

III.7. Les propriétés magnétiques

Les propriétés magnétiques nous renseignent spécialement sur le moment magnétique qui est Le moment magnétique de spin est défini par la différence entre le nombre d'occupation total des orbitales de spins majoritaires et nombre d'occupation total des orbitales de spins minoritaires, respectivement.

Le Tableau III.4 regroupe les résultats obtenus pour le moment magnétique total, , et les moments magnétiques atomiques de chaque atome qui constitue les composés CoFeMnAl à leur état d'équilibre la structure de type Y.

Composé	$M_{TOT}(\mu B)$	$M_{Co}(\mu B)$	$M_{Fe}(\mu B)$	$M_{Mn}(\mu B)$	$M_{Al}(\mu B)$
CoFeMnAl LiMgPbSb-type Y	3.00	0.81	-0.14	2.44	0.04

Tableau III.4 : Le moment magnétique total et local en (μB) du composéHeusler quaternaire CoFeMnAl.

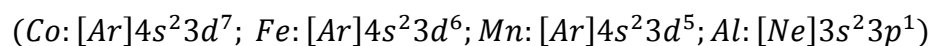
C'est évident que le moment magnétique de notre composé est un nombre entier, satisfaisant la règle de **Slater-Pauling** :

$$M = NV - 24$$

pour le composé CoFeMnAl

$$NV = 27$$

On a:



D'où:

$$M = 27 - 24 = 3$$

D'après le Tableau III.4, on remarque que le moment magnétique total est égal à $3\mu_B$ pour les composés CoFeMnAL, donc le moment magnétique pour ces derniers matériaux satisfait de façon claire la règle de Slater-Pauling pour les structures demi-métalliques ferromagnétiques et confirme le caractère demi-métallique. Le moment magnétique total du composé CoFeMnAl est composé en cinq

parties: le moment magnétique partiel de l'atome de Co ($0.81\mu\text{B}$), de l'atome de Fe ($-0.14\mu\text{B}$), de l'atome Mn ($2.44\mu\text{B}$), de l'atome Al ($0.04\mu\text{B}$); on observe la contribution des éléments Al et Fe est très faible et presque négligeable, par contre les éléments Mn et Co sont très présents, est beaucoup plus grands par rapport aux moments magnétiques d'autres éléments Al et Fe, il a été constaté aussi, qu'à partir des valeurs obtenues, le moment magnétique total dans ce composé est dû principalement aux atomes de cobalt Co et Mn.

Finalement, Nous rapportons sur le calcul des spin-polarisation (P) et la température de Curie (T_C). Pour l'électron, la polarisation de spin (P) au niveau de Fermi (E_F) d'un matériau est définie par :

$$P = \frac{\rho^\uparrow(E_F) - \rho^\downarrow(E_F)}{\rho^\uparrow(E_F) + \rho^\downarrow(E_F)}$$

Où $\rho^\uparrow(E_F)$ et $\rho^\downarrow(E_F)$ sont les densités d'états dépendant du spin au niveau de Fermi E_F . Le \uparrow \downarrow est attribué pour les états majoritaire (up) et les états minoritaires (down) respectivement. On remarque à partir des figures (III.4, III.5 et III.6) que $\rho^\uparrow(E_F) \neq 0$ et $\rho^\downarrow(E_F) = 0$ ce qui conduit à une polarisation de spin électronique au niveau E_F égale à 100%.

Dans un matériau ferromagnétique, la température de Curie ou point de Curie est la température à laquelle le matériau perd son aimantation spontanée. Au-dessus de cette température, le matériau est dans un état désordonné dit paramagnétique (non-magnétique). Nous avons obtenu les températures de Curie T_C pour notre composé étudié en adoptant le modèle présenté précédemment où T_C est estimée par la relation linéaire suivante $T_C = 23 + 181 \times M_{tot}$ (M_{tot} est le moment magnétique total).

$$T_C = 23 + 181 \times 3 = 566 \text{ K}^\circ$$

La valeur de T_C trouvée est au voisinage de 566 K très supérieur de la température ambiante ce qui rend le composé CoFeMnAl un très bon candidat pour les applications spintroniques.

Références

- [1] P. Blaha, K. Schwarz, G. Madsen, D.Kvasnicka and J. Luitz, WIEN2K, Technical University Vienna, (2008).
- [2] P. Blaha, K. Schwarz, G.K.H. Madsen, D. Kvasnicka, J. Luitz, WIEN2k, (Technische Universit at Wien , Austria, 2001).
- [3] E. Wimmer, H. Krakauer, M. Weinert, A.J. Freeman, Phys. Rev. B 24, 864 (1981).
- [4] P. Hohenberg, W. Kohn, Phys. Rev. B 136, 864 (1964).
- [5] J.P. Perdew, S. Burke, M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. 77, 3865 (1996).
- [6] Xu Dai, G. Liu, G.H. Fecher, C. Felser, Y. Li, H. Liu, J. Appl. Phys. 105,07E901 (2009).
- [7] L. Xiong, L. Yi and G. Y. Gao, J.Magn.Magn.Mater, 360, pp. 98-103 (2014).
- [8] M.Halder, M.D. Mukadam , K.G. Suresh , S.M. Yusuf , J.Magn.Magn.Mater, 377 , pp. 220 225(2015).
- [9] Q.Gao, L.Li, G.Lei, J.Deng, X.Hu, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 379,pp. 288–293 (2015) .
- [10] M. Singh, H.S. Saini, J. Thakur, A.H. Reshak, M.K. Kashyap, J. Alloys Compd, 580 pp. 201 204 (2013).
- [11] F.D. Murnaghan. Proc Natl Acad Sci USA, 30, pp. 244-247(1947).
- [12] Mlle BENAYED Souhila ,Étude des propriétés structurales et mécaniques de l'alliage Heusler quaternaire CoFeScP,(2017)

Conclusion Général

Conclusion générale

Nous avons appliqué la méthode FP-LAPW (Full Potential Linear Augmented plane wave) avec l'approche GGA pour étudier les propriétés physiques et plus particulièrement les propriétés structurales, électroniques et magnétiques d'un alliage quaternaire Full-Heusler CoFeMnAl . Dans le but de déterminer sa stabilité structurale dans des différentes structures cristallines, afin de connaître son tendances dans les propriétés structurales et électroniques et pour identifier la qualité de ce matériau qui peut nous informer sur la possibilité d'être de bon candidat pour les applications spintroniques . D'après notre calcul, les résultats obtenus sont comme suit :

L'optimisation de l'énergie totale de notre composé CoFeMnAl en fonction du volume dans les deux configurations non-ferromagnétique (NF) et ferromagnétique (FM) à l'aide de l'approximations (GGA-13), nous a permis d'affirmer que la structure à l'état ferromagnétique (FM) est plus stable par rapport à celle de l'état non-ferromagnétique (NF) pour les trois types, ainsi que l'optimisation de l'énergie totale de ce dernier en fonction du volume dans une configuration ferromagnétique à l'aide de l'approximations (GGA-13) des trois types démontre que le type y est le plus stable.

Pour calculer les propriétés structurales qui montrent que les alliages Heusler CoFeMnAl) sont stable dans la phase régulière de LiMgPbSb –type Y et l'état ferromagnétique avec GGA , un calcul systématique est ainsi réalisé, pour déterminer, le paramètre de maille (a_0) et le module de compressibilité (B_0) et sa dérivé (B_0').

Les propriétés électroniques ont été restreintes à l'analyse des structures de bande, l'analyse de la densité d'états qui donnent une explication détaillée de la contribution des caractères atomiques des différentes orbitales dans les bandes d'énergies. Les résultats montrent que ce composé présente un gap d'énergie dans les états minoritaires (spin down) et il est métallique dans les états majoritaires (spin up). donc il est demi-métallique .

Les moments magnétiques de composé CoFeMnAl est dans l'accord raisonnable avec la règle de Slater-Pauling, qui indique une propriété semi métallique et une polarisation élevée de spins de ce composé. Ces deux propriétés sont exigées pour les application en spintronique.

Conclusion générale

Cette étude du premier principe fait partie des grands efforts théoriques pour explorer les différentes propriétés physiques des alliages quaternaire Full-Heusler sera certainement très utile pour l'interprétation des futures données expérimentales

Résumé

Dans ce travail, nous avons présenté une étude sur les propriétés structurales, électroniques, magnétiques, pour une nouvelle classe des alliages Heuslers quaternaires CoFeMnAl ;. Pour prédire ces différentes propriétés, nous avons effectué des simulations en appliquant la méthode des Ondes Planes Augmentées linéarisées avec orbitales locales (FP-LAPW) qui se basent sur la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT) en utilisant l'approximation du gradient généralisé (GGA pour traiter le terme d'échange et corrélation, selon le programme WIEN2K. Cette plateforme nous a permis de déterminer les paramètres structuraux à l'équilibre comme le paramètre de maille (a_0), le module de compressibilité (B0) et sa première dérivée par rapport à la pression (B') dans la structure la plus stable Y-Type. La relation de dispersion pour ce composé est traduit en sa totalité dans la structure de bande et la densité d'états pour le cas des deux directions de spin; elles montrent que la plupart de notre matériau présente un comportement demi-métallique ferromagnétique, son moment magnétique obéisse à la règle de Slater-Pauling avec une polarisation absolue de 100% autour du niveau de Fermi. En conséquence, ces résultats montrent l'aptitude de ce matériau à être des très bon candidat pour servir éventuels projets dans le domaine de la spintronique

Mots clés: FP-LAPW+lo; GGA; Alliages Heusler Quaternaires; Demi-métallique ferromagnétique.

Abstract

In this work, we presented a study on the structural, electronic, magnetic, properties for a new class quaternary Heuslers alloys CoFeMnAl To predict these different properties, we performed simulations by applying ab-initio methods based on density functional theory (DFT) using the generalized gradient approximation (GGA) implemented in the WIEN2K code,. This allowed us to determine the optimized mesh parameter (a_0), the compressibility modulus (B) and its derivative (B'). isotropic and classifies as ductile materials, band structure and density of states show for both directions of spins that the most of our material exhibit a half metallic ferromagnetism (HMF) behavior that obey the Slater-Pauling rule with a 100% polarization at the Fermi level in the stable Y- type structure. Thus, these results allowed to conclude that our compound is very good candidates in the field of spintronic in the future.

Key words: FP-LAPW; GGA; Quaternary Heusler alloys; Half-metallic ferromagnet.

ملخص

في هذا العمل قمنا بدراسة خصائص الهيكلية الالكترونية و المغناطيسية لفئة جديدة وهي سبائك هاسلر CoFeMnAl. للتعليق بهذه الخصائص المختلفة اجرينا المحاكاة من خلال تطبيق اساليب ab-initio على اساس نظرية الكثافة الوظيفية (DFT) باستخدام تقريب التدرج المعمم (GGA) وفق برنامج Wien2k وهذا يسمح لنا لحساب ثابت الشبكة البلورية (a_0) معامل الانطغاط (B) ومشتقه (B') من دراسة الخصائص الالكترونية اظهرت بنية نطاق الالكترونى و كثافة مستويات الطاقة ان معظم المواد لدينا يظهر سلوك نصف المعدنية المغناطيسية التي تخضع لقاعدة سلاتر بولينغ مع الاستقطاب الالكتروني الذي يصل الى 100% على مستوى فرمي للبنية المستقرة من نوع Y-type. ان من هذه النتائج نستخلص ان مركبنا مرشح جيد في مجال سبين الالكتروني في مستقبل

الكلمات المفتاحية: LAPW-FP, GGA, سبائك هيسلر الرباعية, المغناطيسي, النصف المعدني: