Université Mohamed Khider de Biskra
Faculté des Sciences exactes et
sciences de la nature et de la vie
Département de Sciences de la matière

MÉMOIRE DE MASTER

Sciences de la matière

Physique

Physique des matériaux

Réf. : Entrez la référence du document

Présenté et soutenu par :
Haoues Messouda

Le : 02-06-2025

Etude des propriétés structurales, électroniques et magnétiques d'alliages Heusler

---

Jury :

Mme	Laznak Samira	Pr	Université de Biskra	Président
Mme	Boudhib Leila	Pr	Université de Biskra	Encadreur
Mme	Layaadi Widad	Pr	Université de Biskra	Examinateur

Année universitaire : 2024-2025

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, louange et gratitude à Allah, le Tout-Puissant, qui m'a accordé la force et la persévérance pour accomplir ce travail. Par Sa grâce et Son soutien, toute difficulté devient surmontable.

*Je tiens à exprimer ma plus profonde gratitude à ma directrice, Madame « **Boudhib Leila** » qui a été pour moi un véritable soutien et une guide précieuse. Grâce à ses orientations éclairées et son accompagnement constant, j'ai pu surmonter les obstacles et atteindre cette étape.*

*Je remercie également Madame **« Laznak Samira** » pour avoir accepté de présider ce jury, ainsi que Madame « **Layaadi Widad** » pour avoir accepté de discuter ce travail et l'avoir enrichi par ses remarques précieuses.*

*À mes âmes sœurs, ces mains généreuses qui m'ont tendu l'aide, et ces cœurs purs qui m'ont entourée d'encouragements, je dis un grand merci à chaque amie qui a fait partie de ce voyage. Une pensée particulière pour « **Douaa, Amina, Achwak** et **Hiba** du pays frère »… Votre présence a eu un impact profond dans le renforcement de ma détermination et le dépassement des difficultés.*

*Ma reconnaissance s'étend à tous les professeurs du **"Département des Sciences de la Matière "**, et plus particulièrement à ceux de la **"spécialité Physique des Matériaux "**, qui nous ont transmis leur savoir et leur expertise, enrichissant ainsi notre bagage intellectuel et dessinant les contours de notre avenir.*

DEDICACES

À mon père défunt

Que son repos soit doux, tu as été et resteras mon soutien et mon modèle. Je prie Allah de te couvrir de Sa miséricorde et de faire de ce travail le fruit de mes efforts, un témoignage de gratitude envers toi et une aumône continue pour ton âme pure.

À celle qui nous a quittés subitement et n'a jamais quitté nos cœurs

À ma chère sœur

Je demande à Allah de te faire miséricorde et de t'accorder les plus hauts degrés du Paradis.

À ma chère mère

Toi qui as été mon aide dans l'adversité, mon réconfort dans la fatigue, toi qui as veillé et tant donné pour moi, toutes les paroles de remerciement sont impuissantes à décrire ta valeur. Je prie Allah de te préserver et de te récompenser de la meilleure des manières.

Et à celle qui fut comme ma seconde mère, "Khadija"

Qui n'a jamais cessé de me prodiguer ses prières et son amour, qu'Allah te récompense du bien et fasse de tes invocations une lumière sur mon chemin.

Enfin, à tous ceux qui m'ont tendu une main et ont été un soutien parmi ma famille et mes proches, ce travail est le fruit de vos prières, et une réussite venant d'Allah puis de vous. À vous, tout mon amour et mes invocations.

SOMMAIRE

Remerciements

Dédicace

Liste des tableaux I

Liste des figures II

Introduction générale..... 8

Chapitre I. Généralité sur les alliages d'Heusler..... 12

I. 1. Introduction 13

I. 2. Définition d'un alliage Heusler 13

I. 3. Classifications des alliages de Heusler..... 13

I. 3. 1. Alliages Full-Heusler..... 14

I. 3. 2. Alliages Half-Heusler 15

I. 4. Propriétés structurales des alliages de Heusler 15

I. 4. 1. Structure cristalline des alliages Full-Heusler 15

I. 4. 2. Structure cristalline des alliages Half-Heusler 15

I. 5. Propriétés électroniques des alliages d'Heusler 16

I. 6. Propriétés magnétiques des alliages de Heusler..... 16

I. 7. Application des alliages Heusler 18

I. 8. Conclusion..... 19

Chapitre II La théorie de fonctionnelle de la densité DFT..... 22

II. 1. Introduction..... 23

II. 2. Equation de Schrödinger..... 23

II. 2. 1. Approximation de Born-Oppenheimer..... 24

II. 2. 2. L'approximation de Hartree-Fock..... 25

II. 3. La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) 26

II. 4. Théorèmes de Hohenberg et Kohn 27

II. 5. Equations de Kohn et Sham..... 27

II. 6. La solution des équations de kohn-Sham à une particule 29

II. 7. La fonctionnelle d'échange-corrélation 31

II. 8. Approximation de la densité locale (LDA)..... 31

II. 9. Approximation du Gradient Généralisé (GGA) 31

II. 10. Conclusion 32

Chapitre III. La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW) 34

III. 1. Introduction 35

III. 2. La méthode des ondes planes augmentées (APW) 35

III. 3. La méthode des ondes planes augmentées linéarisées(FP-LAPW) 37

III. 3. 1. Les bases de la FP-LAPW 38

III. 4. Le code WIEN2k 39

III. 4. 1. Utilisations du code WIEN2k 39

III. 4. 2. Initialisation 39

III. 4. 3. Détermination des propriétés 40

III. 5. Conclusion 41

Chapitre IV. Résultats et discussions 44

IV. 1. Introduction 45

IV. 2. Structure cristalline de Co2ZrSn et CoZrSn 45

Détails de calcul 46

IV.3.1. Tests de convergence pour k-point 47

IV.3.2 Tests de convergence pour $RMT*kmax$ 48

IV. 3. Propriétés Structurales 49

IV. 4. Les Propriétés électroniques 51

IV. 4. 1. Structures de bandes 51

IV. 4. 2. Densités d'états totale et partielle 55

IV. 5. Propriétés magnétiques 59

***Conclusion générale* 62**

Tableau	Chapitre	Page
	Chapitre IV	
IV.1	Quelques propriétés des deux composés Co_2ZrSn, CoZrSn.	46
IV.2	Les valeurs des R_{MT}, K_{point} et $R_{MT} * K_{Max}$ des composés Co_2ZrSn et CoZrSn calculés par l'approximation GGA.	49
IV.3	Paramètre de maille $a(Å)$module d'incompressibilité B (GPa)et sa dérivée B' de composés Co_2ZrSn et CoZrSn.	51
IV.4	Moments magnétiques totaux et partiels calculés pour les composés Co_2ZrSn et CoZrSn en utilisant l'approximation GGA.	60

Figure	Chapitre	Page
Chapitre I		
I.1	Tableau périodique des éléments. Le grand nombre de matériaux d'Heusler peut être formé par la combinaison des différents éléments selon le schéma de couleurs.	13
I.2	Représentation schématique des différentes structures des composés Heusler.	14
I.3	Orientation des moments magnétiques dans un matériau (a)ferromagnétique,(b)antiferromagnétique,(c)ferrimagnétique.	18
Chapitre II		
II.1	Le schéma des calculs auto cohérent (self consistent) de la fonctionnelle de la densité.	30
Chapitre III		
III.1	Schéma du modèle Muffin-Tin utilisé dans la méthode APW.	36
III.2	L'organigramme du code WIEN2k.	41
Chapitre IV		
IV.1	Représentée la structure cristalline de composé a) Full-Heusler Co_2ZrSn et b) Half-Heusler CoZrSn.	46
IV.2	La variation de l'énergie en fonction de K_{point} pour les composé a) Co_2ZrSn et b) CoZrSn.	48
IV.3	La variation de l'énergie en fonction de $R_{MT} * k_{max}$ pour les composé a) Co_2ZrSn et b) CoZrSn.	48
IV.4	La variation de l'énergie totale en fonction du volume en états FM et NM pour le composé a) Co_2ZrSn et b) CoZrSn.	50
IV.5	Relation entre la position des bandes d'énergie et le niveau de Fermi, qui détermine le comportement électronique des métaux, des semi-conducteurs et des isolants.	52
IV.6	Structure de bandes de Co_2ZrSn calculée par l'approche GGA.	53
IV.7	Structure de bandes de CoZrSn calculée par l'approche GGA.	54
IV.8	Densités d'états totales et partielles pour Co_2ZrSn.	56
IV.9	Densités d'états totales et partielles pour CoZrSn.	57

Introduction générale

Introduction générale

Dans le contexte des avancées rapides dans les domaines des sciences et des technologies, la science des matériaux, et plus particulièrement la physique des matériaux, s'impose comme un domaine vital contribuant à la conception et à la fabrication de matériaux innovants dotés de propriétés uniques. Parmi ces matériaux, les alliages de Heusler suscitent un grand intérêt en raison de leurs nombreuses applications et de leur large éventail de propriétés telles que le ferromagnétisme, le caractère métallique ou semi-conducteur [1].

Les alliages de Heusler sont des systèmes inter-métalliques ternaires composés de métaux de transition et d'éléments sp. Ils ont attiré l'attention depuis 1903, lorsque Heusler a rapporté la possibilité de fabriquer des alliages ferromagnétiques à partir de composants non ferromagnétiques. En général, il existe deux types de structures Heusler : le premier comprend les alliages Full-Heusler de formule X_2YZ, qui cristallisent dans la structure $L2_1$, et le second les alliages de Half-Heusler de formule XYZ, qui cristallisent dans la structure $C1_b$. Les sites X et Y sont généralement occupés par des métaux de transition, et Z par un élément sp. Les structures électroniques des composés de Heusler varient du caractère métallique à semi-conducteur selon leur composition. Ils présentent également diverses structures magnétiques telles que le ferromagnétisme, l'antiferromagnétisme et ferrimagnétisme. Parmi leurs propriétés les plus remarquables figurent le comportement half - métallique particulièrement recherché pour les applications en spintronique. Ces alliages trouvent des applications dans les têtes de lecture magnétiques, les valves de spin, les mémoires magnétiques MRAM, les capteurs, les injecteurs de spin, les jonctions tunnel magnétiques (MTJs) et les dispositifs de spintronique [2].

L'étude de la structure électronique et des propriétés structurales de ces matériaux est essentielle pour comprendre leur comportement physique et évaluer leur pertinence dans des applications technologiques. Pour ce faire, la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) constitue un outil de calcul puissant pour l'analyse des propriétés électroniques et structurales des matériaux, basée principalement sur la résolution des équations de la mécanique quantique [3]. Cette théorie, proposée par Kohn et Hohenberg dans les années 1960, permet d'obtenir l'équation de Schrödinger reflétant le comportement quantique des molécules et des atomes, et par conséquent, les propriétés des matériaux. Elle repose sur deux théorèmes fondamentaux : le premier affirme que l'énergie de l'état fondamental de l'équation de

Schrödinger peut être déterminée de manière unique à partir de la densité électronique, et le second précise que la densité qui minimise cette énergie est la densité électronique réelle [4].

Pour appliquer cette théorie dans les calculs pratiques, plusieurs méthodes et approximations sont utilisées. Parmi les méthodes courantes figure la méthode des ondes planes linéarisées. La première version de la méthode APW (Augmented Plane Wave) a été développée par Slater [5], puis améliorée par Andersen qui a linéarisé les fonctions d'onde, donnant naissance à la méthode LAPW (Linearized Augmented Plane Wave) [6]. Dans cette méthode, l'espace est divisé en régions distinctes selon la forme du potentiel, chaque région étant associée à une fonction d'onde spécifique. Cependant, les calculs DFT nécessitent des approximations pour traiter les interactions d'échange-corrélation entre les électrons, qui ne peuvent être résolues exactement. Parmi ces approximations figurent la LDA (Local Densité Approximation) et la GGA (Generalized Gradient Approximation), qui diffèrent par leur niveau de précision et de complexité [7]. La précision des résultats DFT dépend fortement du choix de l'approximation adaptée à la nature du matériau et aux propriétés étudiées. Dans ce travail, nous visons à étudier la structure électronique et les propriétés structurales de deux types d'alliages de Heusler, CoZrSn et Co_2ZrSn, par la méthode ab initio, en utilisant le code WIEN2k dans le cadre de la théorie DFT et la méthode FP-LAPW, qui permet d'effectuer des calculs auto-cohérents et ainsi de déterminer les propriétés les plus importantes recherchées. Pour atteindre cet objectif, ce mémoire est organisé comme suit :

- Le premier chapitre : présente une vue d'ensemble des alliages de Heusler et de leurs propriétés physiques.
- Le deuxième chapitre : expose les principes fondamentaux de la théorie DFT.
- Le troisième chapitre : présente la méthode FP-LAPW ainsi que le programme WIEN2k et son mode de fonctionnement.
- Le quatrième chapitre : est consacré à l'étude pratique, où les résultats obtenus sont présentés, analysés et interprétés à la lumière des considérations théoriques.

Référence

[1] D. Dyck, A. Becker, J. Koo, T. Matalla-Wagner, J. Krieft, and G. Reiss, "Anomalous Hall effect and Magnetoresistance in sputter deposited magnetic Weyl semimetal Co_2TiGe thin films," *Phys. Status Solidi B*, vol. 257, art. no. 2000067, 2020.

[2] B.-A. Alhaj and B. Hamad, "Ab-initio calculations of the electronic and magnetic structures of Co_2Cr_1-xMnxAl alloys," *Journal of Applied Physics*, vol. 112, no. 12, art, no. 123904, 2012.

[3] A. Nacer and R. N. kherkhachi, "Calcul ab-initio structural et électronique de V2CoZ (Z=Al, In)," Mémoire de Master, Université Mohamed Khider de Biskra, Biskra, Algeria, 2021.

[4] J. Lu, "The first principle calculation of two-dimensional Dirac materials," IOP Conf. Ser.: Earth Environ. Sci., vol. 100, art.no. 012053, 2017.

[5] J. C. Slater, "Wave Functions in a Periodic Potential," Physical Review, vol. 51, no. 10, pp. 840-845, 1937.

[6] O. Krogh Andersen, "Linear methods in band theory," Phys. Rev. B, vol. 12, pp. 3060-3083, Oct. 1975.

[7] R. Car, A. Dal Corso, S. de Gironcoli, and A. Pasquarello, "Generalized-gradient approximations to density-functional theory: A comparative study for atoms and solids," Phys. Rev. B, vol. 53, no. 3, pp. R1040-R1043, Jan. 1996.

Chapitre I.

Généralité sur les alliages d'Heusler

I. 1. Introduction

Les alliages de Heusler sont connus depuis plus d'un siècle, ayant été découverts par Fritz Heusler en 1903 lorsqu'il a observé que l'alliage Cu_2MnAl possédait des propriétés ferromagnétiques, bien que ses éléments constitutifs ne soient pas magnétiques [1]. Ils sont constitués de composés intermétalliques ternaires, composés de trois éléments X et Y (éléments de transition), et Z (élément du groupe principal, souvent un semi-conducteur ou un métal non magnétique) [2]. Les alliages de Heusler sont considérés comme une classe de matériaux intéressante en raison de leurs propriétés attrayantes et variées, particulièrement dans les dispositifs spintroniques futurs [3].

I. 2. Définition d'un alliage Heusler

Les alliages de Heusler sont des composés intermétalliques ternaires dont la formule générale est XYZ, où les atomes Z appartiennent au groupe principal (III ou IV) du tableau périodique, tandis que les atomes X et Y sont des métaux de transition ou des lanthanides [4].

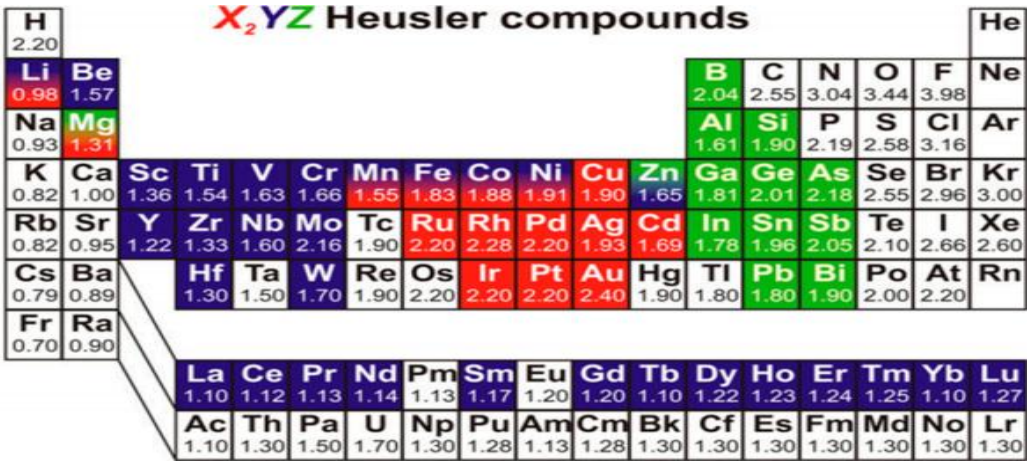
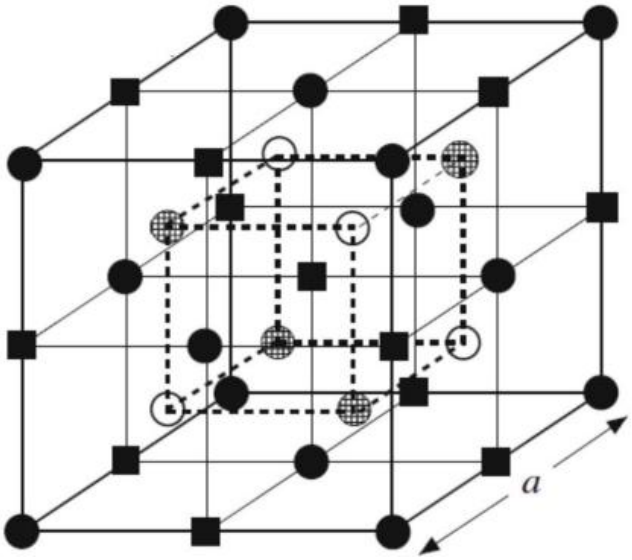


Figure I.1 : Tableau périodique des éléments. Le grand nombre de matériaux d'Heusler peut être formé par la combinaison des différents éléments selon le schéma de couleurs. [5]

I. 3. Classifications des alliages de Heusler

Les alliages de Heusler ternaires sont classés en trois catégories : Heusler complets (Full-Heusler), helf-Heusler et Heusler inversés. En outre, des composés binaires et quaternaires peuvent être formés en raison des variations structurelles et des substitutions chimiques [4] telles que la Figure (I.2) représente ces différents types d'alliages :



	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 [6].

Les structures cubiques Full-Heusler et Half-Heusler sont les structures les plus courantes dans la famille Heusler.

I. 3. 1. Alliages Full-Heusler

Les premiers alliages de Heusler qui ont été synthétisés sont de type Full-Heusler. Ils ont commencé à attirer l'attention des physiciens grâce à des calculs ab initio qui prédisent la demi-métallicité de nombreux membres de ce groupe. Le compose Heusler ternaire a un formule générale X2YZ, dans laquelle X et Y sont des métaux de transition et Z dans certains cas, Y est remplacé par un élément de terre rare et des métaux de transition Z de la colonne III, IV ou V de tableau périodique d'un métal alcalinoterreux. Généralement, le métal, qui existe deux fois, est place au début de la formule, tandis que l'élément du groupe principal est placé à l'extrémité. [7]

I. 3. 2. Alliages Half-Heusler

En général, les matériaux Half-Heusler XYZ peuvent être considérés comme des composés constitués d'une partie covalente et d'une partie ionique. Les atomes X et Y présentent un comportement cationique, tandis que l'atome Z joue le rôle d'équivalent anionique. La nomenclature de ces composés varie dans la littérature scientifique, allant de l'ordre alphabétique des éléments à un classement basé sur l'électronégativité ou même un ordre aléatoire. Cependant, l'ordre le plus couramment utilisé est basé sur l'électronégativité, que nous avons adoptée [**4**].

I. 4. Propriétés structurales des alliages de Heusler

I. 4. 1. Structure cristalline des alliages Full-Heusler

Les alliages full Heusler(Heusler complets) sont des composés ayant une structure cubique de type $L2_1$ [8], connus par leur formule X_2YZ. Ces matériaux cristallisent dans une structure cubique à faces centrées (FCC) avec les groupes d 'espace F $\bar{4}3$m et Fm $\bar{3}$m. Contrairement aux composés half-Heusler, ce type ne contient pas de sites atomiques vacants, car le remplacement des atomes X, Y et Z peut modifier leurs structures cristallines stables et ajuster leurs propriétés physiques de manière significative [1].Cette structure est composée de quatre sous-réseaux imbriqués, où les atomes se positionnent selon les positions de Wyckoff. Les atomes X occupent la position 8c (1/4, 1/4, 1/4), tandis que les atomes Y et Z se placent respectivement aux positions 4a (0, 0, 0) et 4b (1/2, 1/2, 1/2). Cette disposition forme un sous-réseau de type Zinc Blende (Zinc Blende Sublattice), où l'atome Y est situé dans les sites octaédriques, tandis que le deuxième atome X occupe les sites tétraédriques [9]. Comme illustré dans la Figure(I.3).

I. 4. 2. Structure cristalline des alliages Half-Heusler

Les composés Half-Heusler cristallisent selon une structure C1b avec le groupe d'espace F-43m [10]. Ils adoptent une structure cubique avec un rapport fixe entre les éléments XYZ, où l'une des atomes X est absente, ce qui distingue ces composés des alliages –full-Heusler [11].Cette structure est composée de trois sous-réseaux cubiques à faces centrées, interconnectés et occupés respectivement par les atomes X, Y et Z. Les atomes Z et Y occupent les positions (0, 0,0) et (1/2,1/2,1/2), formant ensemble un sous-réseau similaire à celui du sel de roche. Les atomes X sont situés en (1/4,1/4,1/4), tandis que la position

(3/4,3/4,3/4) (normalement occupée par un atome X dans un composé Full-Heusler (X_2YZ) reste vacante dans les composés half-Heusler [10].

I. 5. Propriétés électroniques des alliages d'Heusler

Les structures électroniques des composés Heusler varient de métalliques à semi-conductrices en fonction de leur composition. De plus, de nombreux alliages de Heusler suscitent un intérêt particulier en raison de l'émergence d'une propriété unique connue sous le nom de demi-métallicité.

➢ Matériaux demi-métalliques (Half-Metals)

Les matériaux demi-métalliques sont des matériaux magnétiques présentant un gap énergétique au niveau de Fermi pour une seule direction de spin, ce qui signifie que seuls les porteurs de charge d'une direction de spin contribuent à la conduction. Puisque le gap énergétique est un élément fondamental des matériaux semi-métalliques, il est important de considérer son origine. Actuellement, des dizaines de semi-métaux sont connus. On peut distinguer trois catégories en fonction de la nature de ce gap : Semi-métaux avec des gaps covalents, Semi-métaux avec des gaps de transfert de charge, Semi-métaux avec des gaps d-d. Cette distinction est essentielle, car l'origine du semi-métallisme diffère selon la catégorie. Par conséquent, l'influence des perturbations externes (comme la pression), la sensibilité au désordre, ainsi que le comportement aux surfaces et interfaces varient en fonction du type de semi-métal [12]. Cette propriété unique fait des matériaux semi-métalliques des candidats prometteurs pour une utilisation dans les applications de l'électronique de spin (spintronique), où la manipulation du spin des électrons peut être exploitée dans de nouveaux dispositifs.

I. 6. Propriétés magnétiques des alliages de Heusler

Elles présentent également différentes structures magnétiques telles que le Ferrimagnétisme, l'antiferromagnétisme et le ferromagnétisme. La Figure **(**I.3) illustre schématiquement l'orientation des moments magnétiques atomiques dans ces différents types de matériaux magnétique.

➢ Ferromagnétisme

Les matériaux ferromagnétiques se caractérisent par un alignement parallèle des moments magnétiques dû à l'interaction d'échange, ce qui produit une aimantation spontanée permanente. Des exemples courants incluent le fer, le nickel et le cobalt.

Ce phénomène se manifeste par la présence de domaines magnétiques, où les moments

magnétiques d'un grand nombre d'atomes sont alignés de manière parallèle, générant ainsi un champ magnétique intense à l'intérieur de ces régions. Lorsque le matériau ferromagnétique n'est pas magnétisé, ces domaines sont répartis aléatoirement, ce qui rend le champ magnétique total nul. Cependant, l'application d'un champ magnétique externe entraîne l'alignement progressif de ces domaines, créant ainsi un champ magnétique puissant dans le matériau. Les pièces fabriquées à partir de ces métaux sont souvent analysées à l'aide de techniques d'inspection magnétique (magnétoscopie).

- **Antiferromagnétisme**

Les matériaux antiferromagnétiques possèdent deux sous-réseaux cristallins dont les moments magnétiques sont opposés, ce qui annule leur aimantation nette à zéro Kelvin. Leur structure est similaire à celle des matériaux ferrimagnétiques, mais dans ce cas, les moments magnétiques mA et mB sont de même intensité, ce qui annule totalement l'aimantation globale. À mesure que la température augmente, cet ordre magnétique est perturbé par les vibrations thermiques, entraînant une augmentation de la susceptibilité magnétique (χm) jusqu'à une température critique appelée température de Néel (ϴN ou Néel Température). Au-delà de cette température, le matériau devient paramagnétique. Les matériaux ayant une température de Néel faible (entre 70K et 293K) sont utilisés pour la fabrication de circuits magnétiques à haute impédance.

- **Ferrimagnétisme**

Les matériaux ferrimagnétiques sont une classe de matériaux qui possèdent une structure magnétique similaire aux matériaux antiferromagnétiques, mais se caractérisent par la présence de moments magnétiques inégaux, ce qui entraîne une aimantation non nulle. Les exemples courants de ces matériaux comprennent les ferrites, tels que Fe_3O_4 et les grenats magnétiques. Le ferrimagnétisme est considéré comme une propriété distinctive d'un groupe d'oxydes métalliques connus sous le nom de ferrites, qui se caractérisent par la présence de deux réseaux cristallins (A et B) portant des moments magnétiques de directions opposées et d'intensités inégales (mA et mB), ce qui conduit à l'apparition d'une aimantation spontanée qui diminue avec l'augmentation de la température. Lorsque la température de Curie est dépassée, ces matériaux perdent leur magnétisme et deviennent paramagnétiques. Les ferrites se caractérisent par une conductivité électrique très faible, ce qui les rend très importants dans

Les applications à haute fréquence. Cependant, ils diffèrent des matériaux ferromagnétiques par leurs propriétés magnétiques, où leur perméabilité magnétique est plus faible, tandis que leur champ coercitif est plus élevé et leur champ de saturation magnétique est plus faible. Les ferrites sont classées en ferrites doux et en ferrites durs, et se caractérisent mécaniquement par leur dureté et leur fragilité. [13]

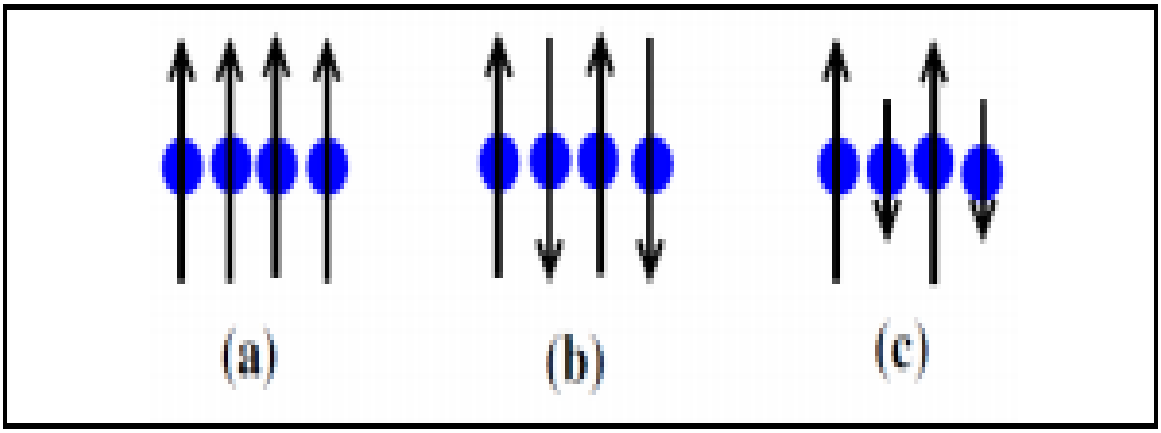


Figure I.3 : Orientation des moments magnétiques dans un matériau (a)ferromagnétique, (b) antiferromagnétique, (c)ferrimagnétique [14].

I. 7. Application des alliages Heusler

Les alliages de Heusler ont suscité un intérêt considérable ces dernières années en raison de leurs propriétés uniques qui les rendent adaptés à un large éventail d'applications

➢ Applications spintroniques

Les alliages de Heusler, en particulier ceux qui présentent des propriétés de matériaux ferromagnétiques demi-métalliques (HMF) avec une polarisation de spin atteignant 100 % au niveau de Fermi, sont des candidats extrêmement prometteurs pour les applications spintroniques avancées. Ces propriétés uniques en font des composants efficaces dans :

- Les vannes de spin (Spin Valves): où ils agissent comme des injecteurs de spin à haute efficacité, améliorant ainsi les performances de ces dispositifs utilisés dans la détection des champs magnétiques.
- Les jonctions tunnel magnétiques (Magnetic Tunnel Junctions - MTJs): utilisées dans la fabrication de la mémoire vive magnétique non volatile (MRAM), et les alliages de Heusler contribuent à atteindre des rapports de magnétorésistance (MR) élevés, essentiels au fonctionnement efficace de ces mémoires.

- Les dispositifs de magnétorésistance géante (Giant Magnetoresistance - GMR): jouent un rôle important dans les têtes de lecture des disques durs et autres capteurs magnétiques, et les alliages de Heusler contribuent à renforcer la sensibilité de ces dispositifs.
- Les filtres de spin (Spin Filters) et les transistors de spin (Spin Transistors): grâce à leur ordre magnétique fort et à leurs températures de Curie élevées, les alliages de Heusler améliorent l'efficacité de l'injection de spin dans ces composants essentiels des dispositifs spintroniques avancés. [15]

➢ **Autres applications**

Outre leurs applications dans le domaine de la spintronique, les alliages de Heusler présentent également un potentiel prometteur dans un large éventail de domaines. D'une part, leur capacité à convertir la chaleur en électricité (et vice-versa) en fait d'excellents candidats pour les applications thermoélectriques [16]. D'autre part, les alliages de Heusler sont connus pour leur température de Curie élevée, une propriété d'une grande importance pour de nombreuses applications magnétiques, en particulier celles nécessitant une stabilité à hautes températures, comme Co_2MnAl et Co_2FeGa [17]. Ils trouvent également d'autres applications, telles que l'optoélectronique [18], la supraconductivité et la mémoire de forme magnétique [19].

I. 8. Conclusion

Ce chapitre a présenté un aperçu général des alliages Heusler, en abordant leurs propriétés, leurs types et leurs principales applications. Nous avons également mis l’accent sur les alliages Full-Heusler et Half-Heusler, en raison de leur importance dans divers domaines, notamment les applications magnétiques et électroniques. Dans le prochain chapitre, nous examinerons certains concepts liés à la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), qui constitue la base théorique pour le calcul des propriétés électroniques et structurales de ces alliages.

Référence

[1] T. Graf, C. Felser, and S. S. P. Parkin, "Simple rules for the understanding of Heusler compounds," Progress in Solid State Chemistry, vol. 39, no. 1, pp. 1-50, 2011.

[2] N. Kaur and V. Srivastava, "Review on Thermoelectric properties of Co-based Full-Heusler compounds," *JETIR*, vol. 6, no. 1, pp. 1-10, Jan. 2019.

[3] I. Asfour and D. Rached, "First Principles Study of the New Half-metallic Ferromagnetic Full-Heusler Alloys Co_2CrSi_1-xGex: An Ab-initio Study," *Universal Journal of Mechanical Engineering*, vol. 6, no. 2, pp. 21-37, 2018.

[4] A. Wudarski, J. Daza, W. Ben Mbarek, J. Saúlina, E. Enciso, and J.-J. Suñol, "Crystal Structure and Properties of Heusler Alloys: A Comprehensive Review," *Metals*, vol. 11, no. 4, p. 641, 2024.

[5] A. Hirohata, M. Kikuchi, N. Tezuka, K. Inomata, J. S. Claydon, Y. B. Xu, et al."Heusler alloy/semiconductor hybrid structures," *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, vol. 10, no. 2, pp. 93-107, Apr. 2006.

[6] C. Felser and A. Hirohata, Eds., *Heusler Alloys: Properties, Growth, Applications*, Springer Series in Materials Science, vol. 222. Cham, Switzerland: Springer International Publishing, 2016.

[7] K. Belkhoddam and H. Guilal, "Etude des propriétés structurales, Electroniques, Magnétiques, Elastiques et thermodynamiques d'un alliage semi-Heusler," Mémoire de fin d'études de master académique, Université Abdelhamid Ibn Badis - Mostaganem, 2021.

[8] I. Galanakis, "Theory of Heusler and Full-Heusler compounds," *Scientific Highlight Of The Month*, no. 127, Forschungszentrum Jülich, Apr. 2015.

[9] S. Alsaedi, Z. Nourbakhsh, A. Vaez, and D. Vashaee, "Material Design and Discovery in Full-Heusler Compounds: A Comprehensive First-Principles Analysis of XMg_2Hg, $XMgHg_2$, and X_2MgHg (X = Sc, Li)," *Materials Today Electronics*, vol. 9, p. 100113, 2024.

[10] J. Ma, V. L. Nguyen, K. Romanyuk, M. Acet, S. I. Oh, R. Chekhlov, et al.. "Computational investigation of half-Heusler compounds for spintronics applications," *Phys. Rev. B*, vol. 95, no. 1, p. 014411, 2017.

[11] S. Chatterjee, "Transport properties of Heusler compounds and alloys," *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 34, no. 1, p. 013001, 2022.

[12] C. M. Fang, G. A. de Wijs, and R. A. de Groot, "Spin-polarization in half-metals (invited)," *Journal of Applied Physics*, vol. 91, no. 10, pp. 10058–10060, 2002.

[13] A. Nacer and R. N. kherkhachi, "Calcul ab-initio structural et électronique de V2CoZ (Z=Al, In)," Mémoire de Master, Université Mohamed Khider de Biskra, Biskra, Algeria, 2021.

[14] M. Mekhtiche, "Prédiction des nouveaux matériaux doubles demi-heusler $Hf_2FeNiSb_2$, Nb_2Co_2GaSb et $ScNbCo_2Sb$, et étude leurs propriétés structurales, magnétiques, optoélectroniques et thermoélectriques," Thèse de Doctorat LMD en physique, Spécialité : Physique des matériaux Magnétique, Université Mustapha Stambouli de Mascara, Mascara, Algérie, 2024.

[15] R. Kumar and S. Gupta, "Novel Heusler Materials for Spintronic Applications: Growth, Characterizations and Applications," pp. 1-30, 2021.

[16] M. M. Boukhoudmi and S. Hammou, "Modélisation des propriétés structurales électroniques et thermoélectriques des matériaux HEUSLER de type XYZ," Mémoire de fin d'études de Master Académique, Université Abdelhamid Ben Badis - Mostaganem, Algérie, 2023.

[17] W. BELKILALI, "Contribution à l'étude des propriétés structurelles, élastiques, électroniques, magnétiques, thermoélectriques et thermodynamique des alliages Heusler," Thèse de doctorat LMD 3ème Cycle, Université de Relizane, Année Universitaire 2024.

[18] R. Naghavi, C. Felser, and T. Gruhn, "I-II-V half-Heusler compounds for optoelectronics: Ab initio calculations," *Phys. Rev. B*, vol. 81, [1] no. 7, p. 075208, Feb. 2010, doi: https://doi.org/10.1103/PhysRevB.81.075208.

[19] R. Bouzid, "Étude théorique d'un nouveau composé Half-Heusler CaAgP," Mémoire de fin d'études pour l'obtention du diplôme de Master en Physique, Université Abdelhamid Ibn Badis - Mostaganem, Algérie, 2022.

Chapitre II.

La théorie de fonctionnelle de la densité (DFT)

II. 1. Introduction

La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est l'une des méthodes ab initio qui constitue un outil puissant pour prédire les propriétés physiques et chimiques des matériaux. Parmi eux, les alliages de Heusler. Elle repose principalement sur la résolution des équations de la mécanique quantique, en particulier l'équation de Schrödinger. La résolution de cette dernière équation reste extrêmement difficile, ce qui conduit à l'introduction de plusieurs approximations afin de faciliter la résolution de cette équation principale. Ceci sera abordé en détail dans ce chapitre.

II. 2. Equation de Schrödinger

En mécanique quantique, les systèmes constitués de particules comme les électrons et les noyaux sont décrits par une fonction d'onde, qui est régie par l'équation de Schrödinger indépendante du temps. L'année 1926 est considérée comme un tournant essentiel pour la chimie quantique, lorsque le physicien Erwin Schrödinger a proposé cette équation différentielle, permettant en théorie de comprendre et de décrire toutes les propriétés de la matière à l'échelle atomique [1]. L'équation de Schrödinger s'écrit comme suit :

$$\hat{H}\Psi = E\Psi \qquad \text{(II-1)}$$

Avec :

$\hat{H}$: est l'opérateur Hamiltonien.

Ψ : est la fonction d'onde du système.

E : est l'énergie totale du système.

L'hamiltonien exact du cristal résulte de la présence des forces électrostatiques d'interaction : soit répulsion ou attraction suivant la charge des particules (ions, électrons, noyaux,…etc.).

$$\hat{H} = \hat{T}_e + \hat{T}_n + \hat{V}_{n-n} + \hat{V}_{n-e} + \hat{V}_{e-e} \qquad \text{(II-2)}$$

Ou :

L'énergie cinétique des électrons:

$$\hat{T}_e = -\sum_i \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 \qquad \text{(II-3)}$$

L'énergie cinétique des noyaux :

$$\hat{T}_n = -\sum_I \frac{\hbar^2}{2M} \nabla_I^2 \qquad \text{(II-4)}$$

L'énergie potentielle d'interaction entre les noyaux :

$$\hat{V}_{n-n} = \frac{1}{2} \sum_{I<J} \frac{Z_I Z_J e^2}{|\overrightarrow{R_I} - \overrightarrow{R_J}|} \qquad \text{(II-5)}$$

L'énergie potentielle d'attraction noyaux – électrons :

$$\hat{V}_{n-e} = -\frac{1}{2} \sum_{I,i} \frac{Z_I e^2}{|\overrightarrow{r_i} - \overrightarrow{R_I}|} \qquad \text{(II-6)}$$

L'énergie potentielle de répulsion entre les électrons :

$$\hat{V}_{e-e} = \frac{1}{2} \sum_{i<j} \frac{e^2}{|\overrightarrow{r_i} - \overrightarrow{r_j}|} \qquad \text{(II-7)}$$

Avec : m : masse de l'électron

$\hbar = \frac{h}{2\pi}$Et h la constante de Planck, m la masse d'un électron

M la masse du noyau et Z sa charge

Donc on peut écrire l'équation de Schrödinger sous la forme suivante :

$$\hat{H}\Psi = \left[-\sum_i \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 - \sum_I \frac{\hbar^2}{2M} \nabla_I^2 - \frac{1}{2} \sum_{I,i} \frac{Z_I e^2}{|\overrightarrow{r_i} - \overrightarrow{R_I}|} + \frac{1}{2} \sum_{I<J} \frac{Z_I Z_J e^2}{|\overrightarrow{R_I} - \overrightarrow{R_J}|} + \frac{1}{2} \sum_{i<j} \frac{e^2}{|\overrightarrow{r_i} - \overrightarrow{r_j}|} \right] \Psi = E\Psi \quad \text{(II-8)}$$

L'équation de Schrödinger devient donc impossible à résoudre en raison de la présence d'un grand nombre d'inconnues et à partir d'elle des approximations pour simplifier l'équation nous la mentionnons:

II. 2. 1. Approximation de Born-Oppenheimer

L'approximation de Born-Oppenheimer est utilisée dans un ensemble de calculs en physique de la matière. C'est la première étape dans la simplification de l'équation de Schrödinger, où elle repose sur la séparation du mouvement des électrons de celui des noyaux. Elle prend en compte la grande différence entre la masse des électrons et celle des noyaux, étant donné que la masse des électrons est beaucoup plus faible que celle des noyaux, tandis que la vitesse des électrons est beaucoup plus grande que celle des noyaux. Par conséquent, nous pouvons négliger l'énergie cinétique des noyaux, et la limite de l'interaction

des noyaux entre eux est considérée comme constante [2]. Par conséquent, l'hamiltonien devient de la forme suivante :

$$\hat{H} = \hat{T}_e + \hat{V}_{n-e} + \hat{V}_{e-e} \qquad \text{(II-9)}$$

On peut donc écrire une équation de Schrödinger relative aux électrons :

$$\hat{H}_e \Psi_e = E_e \Psi_e \qquad \text{(II-10)}$$

Avec : Ψ_e et E_e l'état propre et l'énergie propre du système de N_e électrons.

Et l'énergie totale du système est alors donnée par :

$$E_{tot} = E_e + E_{noy} \qquad \text{(II-11)}$$

E_e : Il représente l'énergie des électrons affectés par un champ produit par des noyaux stationnaires. Et ce problème reste impossible à résoudre avec les méthodes mathématiques habituelles, nous utilisons une autre approximation.

II. 2. 2. L'approximation de Hartree-Fock

Cette approximation a été établie en 1928 par les scientifiques Hartree et Fock. Le scientifique anglais Hartree a d'abord élaboré un modèle quantique pour décrire l'atome multiélectronique. Quelques années plus tard, le scientifique Fock a développé le modèle de Hartree, en 1930. Il s'agit d'un modèle d'électron indépendant, où chaque électron se déplace individuellement dans le champ moyen généré par les noyaux et les autres électrons. En d'autres termes, nous passons d'un problème impliquant un grand nombre d'électrons à un problème d'électron unique. La fonction d'onde quantique pour la quantification est écrite comme le produit des fonctions d'état pour chaque électron [3] sous la forme suivante :

$$\Psi_e(r_1, r_2, \cdots \cdots \cdots) = \prod_{i=1}^{N_e} \Psi_i(r_i) \qquad \text{(II-12)}$$

$$E_e = \sum_{i=1}^{N_e} E_i \qquad \text{(II-13)}$$

L'énergie totale du système s'écrit comme la somme des énergies correspondant à chaque état électronique:

$$\hat{\mathrm{H}} = \sum_{\boldsymbol{i=1}}^{\boldsymbol{N_e}} \hat{\mathrm{H}}_{\boldsymbol{i}} \qquad \text{(II-14)}$$

L'équation de Schrödinger s'écrit pour les atomes à un électron comme suit :

$$\hat{H}_i \Psi_i = E_i \Psi_i \qquad \text{(II-15)}$$

Avec :$\hat{H}_i$ L'hamiltonien d'un atome représente un seul électron où:

$$\widehat{H}_i = \left(\frac{-\hbar \Delta_i}{2m}\right) + V_{ext}(r) + V_i(r) \qquad \text{(II-16)}$$

$$\text{Avec :} V_i(r) = \int \frac{\rho(\acute{r})}{|r-\acute{r}|} d^3\acute{r}$$

Et $\rho(\acute{r})$: Densité d'électron

$$\rho(\acute{r}) = \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^{N_e} \left|\Psi_j(\acute{r})\right|^2 \qquad \text{(II-17)}$$

Nous trouvons l'équation de Hartree, dont l'énoncé est le suivant :

$$\frac{-\hbar}{2m} \Delta \Psi_i(r) + V_{ext}(r) \Psi_i(r) + \sum_{\substack{j=1 \\ i \neq j}}^{N_e} \int \frac{\left|\Psi_j(\acute{r})\right|^2}{|r-\acute{r}|} d^3\acute{r} \Psi_i(r) = E_i \Psi_i(r) \qquad \text{(II-18)}$$

Donc, Devient la fonction d'onde :

$$\Psi_i\left(r_1\sigma_1, r_2\sigma_2, \cdots r_{N_e}\sigma_{N_e}\right) = \frac{1}{\sqrt{N!_e}} \begin{vmatrix} \Psi_1(r_1\sigma_1)\Psi_1(r_2\sigma_2) \cdots & \Psi_1\left(r_{N_e}\sigma_{N_e}\right) \\ \Psi_2(r_1\sigma_1)\Psi_2(r_2\sigma_2) \cdots & \Psi_2\left(r_{N_e}\sigma_{N_e}\right) \\ \vdots & \vdots \\ \Psi_{N_e}(r_1\sigma_1)\Psi_{N_e}(r_2\sigma_2) & \Psi_{N_e}\left(r_{N_e}\sigma_{N_e}\right) \end{vmatrix} \qquad \text{(II-19)}$$

Donc l'équation de Hartree-Fock s'écrit :

$$\left[\frac{-\hbar}{2m} \Delta_i + V_{ext}(r) + \sum_{\substack{j=1 \\ i \neq j}}^{N_e} \int \frac{\left|\Psi_i(\acute{r})\right|^2}{|r-\acute{r}|} d^3\acute{r} + V_{HF}\right] \Psi_i(r) = E_i \Psi_i \qquad \text{(II-20)}$$

$$\text{Avec :} \; V_{HF} = -\sum_{\substack{j=1 \\ i \neq j}}^{N_e} \delta_{\sigma_i \sigma_j} \int \frac{\Psi_j^*(r)\Psi_i(r)}{|r-\acute{r}|} d^3\,\acute{r} \qquad \text{(II-21)}$$

Il est à noter que l'un des principaux problèmes rencontrés dans le calcul de la structure des bans des d'énergie est la détermination du potentiel interne d'un cristal.

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

La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) permet de reformuler le problème du système à plusieurs corps en un problème à particule unique dans un champ effectif, en

prenant en compte toutes les interactions en utilisant la densité électronique comme variable fondamentale. En 1964, cette théorie a été prouvée par les théorèmes de Hohenberg-Kohn theorems, qui ont montré que les propriétés du système peuvent être déterminées en fonction de la densité électronique. Il a ensuite été développé en 1965 par Kohn and Sham, ce qui en fait un outil pratique en chimie quantique. [4]

II. 4. Théorèmes de Hohenberg et Kohn

En 1964 les fondements de la DFT ont été exprimés pour la première fois par Hohenberg et Kohn**,** il est résumé ces fondements en deux théorèmes [5] :

Théorème 1: L'énergie totale de l'état fondamental E est une fonctionnelle unique de la densité des particules $\rho(r)$pour un potentiel externe V_{ext} donné.

Théorème 2 : La fonctionnelle de l'énergie totale de tout système à plusieurs particules possède un minimum qui correspond à l'état fondamental et à la densité de particules de l'état fondamental.

$$E(\rho_0) = minE(\rho) \qquad \text{(II-22)}$$

Les conséquences des deux théorèmes fondamentaux de la DFT sont que la variation du potentiel externe implique une variation de la densité. L'équation d'énergie des fonctions mono électroniques est alors décrite par l'expression :

$$E[\rho] = F_{HK}(\rho) + \int \rho\,(r)V_{ext}\,d^3r \qquad \text{(II-23)}$$

Le fonctionnel $F_{HK}(\rho)$est universel pour n'importe quel système à plusieurs électrons. Si la fonctionnelle $F_{HK}(\rho)$ est connue.Alors, il sera relativement facile d'utiliser le principe variationnel pour déterminer l'énergie totale et la densité électronique de l'état fondamental pour un potentiel extérieur donné. Malheureusement, le théorème de Hohenberg et Kohn ne donne aucune indication sur la forme de $F_{HK}(\rho)$.

II. 5. Equations de Kohn et Sham

En 1965, Kohn et Sham ont publié des équations qui ont fait de la théorie de la fonction de densité (DFT) un outil pratique pour approximer la solution de l'équation de Schrödinger pour les systèmes à plusieurs corps via un système de particules non interactives. [6] Les méthodes DFT sont devenues populaires après qu'ils ont proposé un développement qui incluait le concept d'orbitale. L'idée principale derrière la méthodologie de Kohn-Sham était de séparer l'énergie cinétique en deux parties : la première T_s pouvant être calculée avec précision, tandis

que la seconde apparaît comme une légère correction d'énergie. Dans ce contexte, la corrélation électronique apparaît dans la seconde partie et est intégrée pour améliorer la précision des calculs. [7]

Ils proposèrent d'écrire la fonctionnelle$F_{HK}(\rho)$comme suit:

$$F[\rho] = T_s[\rho] + E_H[\rho] + E_{xc}(\rho) \qquad \text{(II-24)}$$

Où $T_s$est l'énergie cinétique du système sans interaction, désigne le terme$E_H$de Hartree et$E_{ext}[\rho]$inclut l'interaction coulombienne des électrons avec les noyaux et celle des noyaux entre eux.

$$E_H[\rho] = \frac{1}{2}\int \frac{\rho(\acute{r})\rho(r)}{|r-\acute{r}|} d^3\acute{r}d^3r \qquad \text{(II-25)}$$

$$\text{Et}V_{eff} = (V_H + V_{XC} + V_{EXT}) \qquad \text{(II-26)}$$

L'hamiltonien s'écrit :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V_{eff}(r)\right]\varphi_i(r) = \varepsilon_i \qquad \text{(II-27)}$$

La densité d'état s'écrivant alors :

$$\rho(r) = \sum_i f_i|\varphi_i(r)|^2 \qquad \text{(II-28)}$$

Où f_i et $\varphi_i$sont respectivement le nombre d'occupation et la valeur propre associés à l'état φ_i.Le terme dit énergie d'échange et de corrélationE_{XC}est défini grâce au potentiel associé.

$$E_{XC} = \frac{\partial V_{XC}[\rho]}{\partial n(r)} \qquad \text{(II-29)}$$

$$V_{XC} = (V_{e-e} - V_H)[\rho] + (T - T_s)[\rho] \qquad \text{(II-30)}$$

Il est seul à ne pouvoir être traité exactement. Le terme « d'échange » provient de la nécessité pour un système contenant des fermions d'avoir des fonctions d'ondes antisymétriques vis-à-vis de l'échange de n'importe quelle paire de fermions de même nature (par exemple deux électrons). Cette anti symétrie à son tour aboutit à une séparation spatiale entre fonctions d'ondes des électrons de même spin qui contribue à l'énergie du système. De manière générale, les fonctions des électrons sont spatialement séparées à cause des interactions coulombiennes entre les électrons. L'énergie associée est dite de corrélation électronique. Les équations (II-27), (II-28) et (II-29) sont appelées équations de Kohn-Sham.

II. 6. La solution des équations de kohn-Sham à une particule

Les méthodes basées sur la DFT s'appuient sur les représentations utilisées pour calculer la densité, le potentiel et les orbitales dans le modèle Kohn-Sham. La représentation est choisie dans le but de réduire le temps de calcul tout en conservant une précision suffisante. Les orbitales de Kohn-Sham peuvent être exprimées comme suit :

$$\Psi_i(r) = \sum C_{i\alpha}\, \varphi_\alpha(r) \qquad \text{(II-31)}$$

Où$\varphi_\alpha(r)$sont les fonctions de base et $C_{i\alpha}$ les coefficients de développement. L'énergie totale étant variationnelle dans la DFT, la solution auto cohérente des équations de Kohn et Sham revient à déterminer les $C_{i\alpha}$, pour les orbitales occupées qui minimisent l'énergie totale. L'énergie est réécrite en utilisant les valeurs propres à une particule, pour éliminer la fonctionnelle inconnue$T(\rho)$comme suit:

$$E(\rho) = E_{NN}(\rho) + E_{XC}(\rho) + \sum_{OCC} \varepsilon_i - \int \rho(r)dr \left(V_{XC}(r) + \frac{1}{2}V_H(r)\right) \qquad \text{(II-32)}$$

En pratique, le calcul des coefficients$C_{i\alpha}$est obtenu par la résolution d'une manière auto cohérente, jusqu'à minimisation de l'énergie totale de l'équation séculaire:

$$\left(\widehat{H} - \varepsilon_i S\right) C_i = 0 \qquad \text{(II-33)}$$

Où$\widehat{H}$est l'hamiltonien de Kohn et Sham et S la matrice de recouvrement.

Une nouvelle densitéρ^{out}est calculée en utilisant l'équation $E(\rho_0) = minE(\rho)$, si l'on n'obtient pas la convergence des calculs cette densité est mélangée avec la densité d'entrée de la manière suivante

$$\rho_{in}^{i+1} = (1-\alpha)\rho_{in}^{i} + \alpha\rho_{out}^{i} \qquad \text{(II-34)}$$

i représente la i^{ème} itération et α un paramètre de mixage. La procédure est poursuivie jusqu'à ce que la convergence soit atteinte.

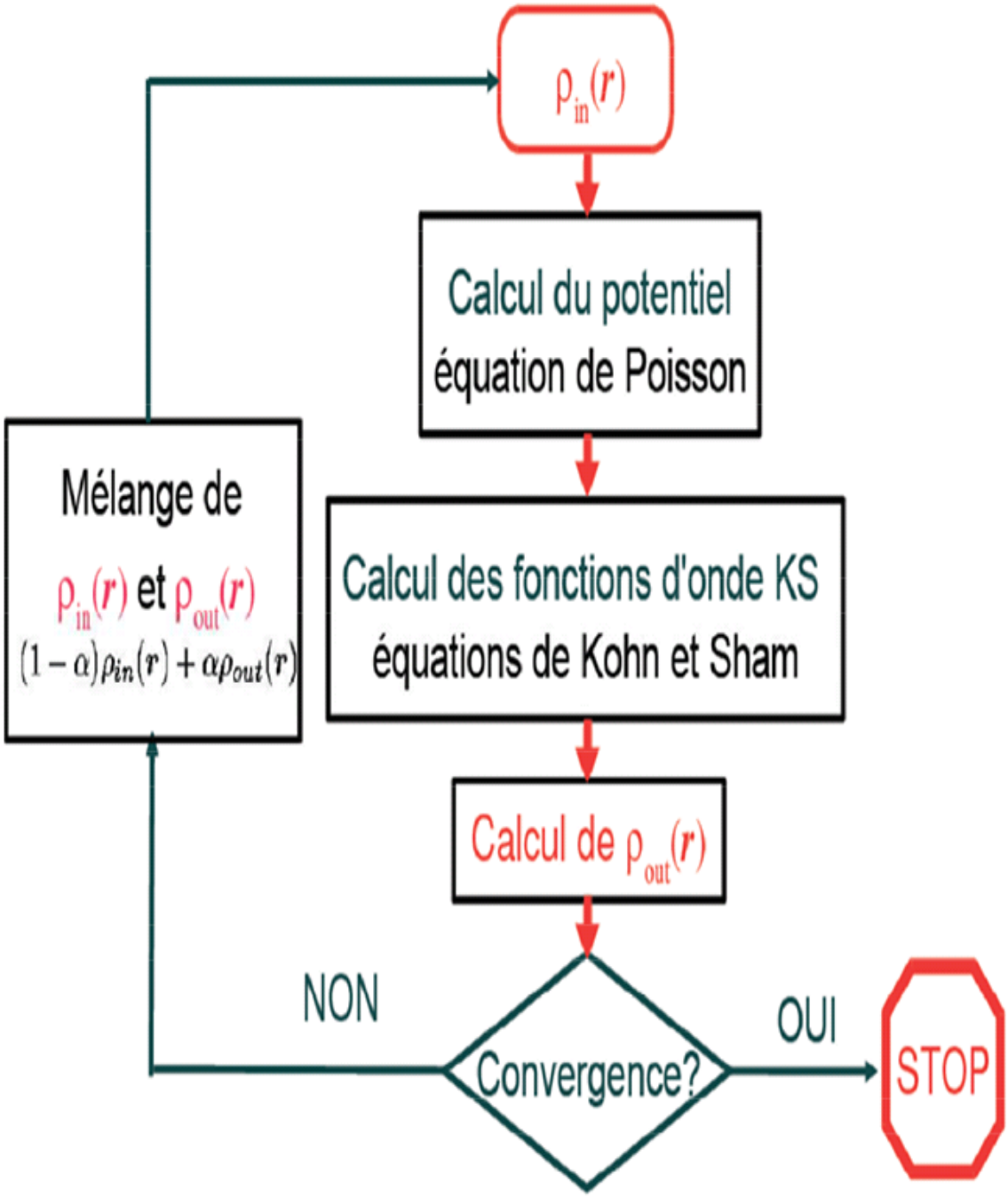


Figure II.1 : Le schéma des calculs auto cohérent (self consistent) de la fonctionnelle de la densité. [8]

II. 7. La fonctionnelle d'échange-corrélation

L'exactitude des calculs de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) dépend fortement de l'approximation utilisée pour la fonction d'échange et de corrélation. La formulation de Hohenberg-Kohn-Sham (H-K-S) fournit un cadre rigoureux en principe, mais la précision réelle dépend de la connaissance de la forme exacte de l'énergie d'échange et de corrélation. Pour cela, plusieurs approximations ont été développées, en commençant par l'approximation de la densité locale (LDA), qui remplace l'énergie d'échange et de corrélation par une valeur similaire à celle d'un gaz électronique homogène, en tenant compte du spin dans l'approximation de la densité locale dépendante du spin (LSDA). Pour améliorer la précision, l'approximation du gradient généralisé (GGA) a été développée, prenant en considération les variations de la densité électronique, ce qui a conduit à des résultats plus cohérents avec les données expérimentales. De plus, d'autres méthodes, visent à améliorer la description de l'échange et de la corrélation. Ainsi, le choix de l'approximation appropriée joue un rôle crucial dans la précision des résultats calculés.

II. 8. Approximation de la densité locale (LDA)

L'approximation de la densité locale (LDA) consiste à considérer la densité électronique comme équivalente à celle d'un gaz d'électrons homogène, où le potentiel d'échange et de corrélation correspondant varie lentement en fonction des coordonnées r.

$$E_{XC}^{LDA}[\rho] = \int \rho\,(r)\varepsilon_{XC}[\rho(r)]d^3r \qquad \text{(II-35)}$$

Où : $\varepsilon_{XC}[\rho]$ Représente l'énergie d'échange-corrélation d'un gaz d'électrons uniforme.

Extension de la LDA pour les systèmes magnétiques, la LSDA

L'extension de la LDA aux systèmes magnétiques, appelée LSDA (Local Spin Densité Approximation), a été introduite par Kohn et Sham pour les systèmes magnétiques. Cette approche prend en compte le spin électronique comme un degré de liberté supplémentaire et est définie par l'expression suivante [9].

$$E_{XC}^{LDA}[\rho\uparrow,\rho\downarrow] = \int \rho[r]\varepsilon_{XC}[\rho\uparrow(r),\rho\downarrow]d^3r \qquad \text{(II-36)}$$

II. 9. Approximation du Gradient Généralisé (GGA)

Le succès de l'approximation du gradient généralisé (GGA) réside dans sa capacité à corriger certaines limites de l'approximation de la densité locale (LDA) [10]. Elle introduit

une correction prenant en compte le gradient de la densité, ce qui permet d'interpréter l'inhomogénéité locale de la densité lors du calcul de l'énergie d'échange et de corrélation (Exc). Le GGA est basé sur la densité électronique ρ(r) et son gradient ∇ρ(r), ce qui le rend plus précis pour décrire les interactions électroniques par rapport à la LDA. . L'énergie s'écrit dans sa forme générale :

$$E_{XC}^{GGA}(n) = \int n(r)\varepsilon_{XC}\left[n(r)\varepsilon_X^{hom}\right]d^3r = \int n(r)\varepsilon_X^{hom}(n)F_{XC}[n|\nabla_{\mathrm{n}}|]d^3r \qquad \text{(II-37)}$$

II. 10. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les fondements théoriques de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), qui est un outil essentiel pour étudier les propriétés électroniques et structurales des alliages de Heusler. Nous avons passé en revue les théorèmes de Hohenberg et Kohn, les équations de Kohn-Sham, et le rôle de l'approximation de la fonction d'échange-corrélation et son impact sur la précision des résultats DFT. Cependant, l'application de cette théorie nécessite des méthodes computationnelles, notamment la méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW) et le programme Wein2K, qui seront abordés dans le prochain chapitre.

Référence

[1] T. Leininger et J. Toulouse, "Relever le défi de la résolution de l'équation de Schrödinger," *L'Actualité Chimique*, vol. 382-383, pp. 13-21, 2014.

[2] S. Bouchareb, "Application de la théorie de la fonctionnelle de la densité et ses approximations dans l'étude des propriétés structurales et électroniques de différents types d'alliages (TiNiAl, Al_2Sc, AlAs, ZrN)," Mémoire de Magister, Université Mohamed Boudiaf - M'sila, M'sila, Algérie, 2019.

[3] B. Saadi, "Contribution à l'étude des propriétés physiques des composés $GdIn_3X_2$ (X = Au, Ag, Cu)," Thèse de Doctorat, Université de Sétif 1, Sétif, Algérie, 2013.

[4] M. Matougui Mohamed, "Etude ab-initio des propriétés physiques des matériaux Heusler (X_2YZ) et demi Heusler (XYZ)," Thèse de Doctorat en Sciences, Université Abdelhamid Ibn Badis de Mostaganem, Mostaganem, Algérie, 2019.

[5] K. Belkhoddam and H. Guilal, "Etude des propriétés structurales, électroniques, Magnétiques, Elastiques et thermodynamiques d'un alliage semi-Heusler," Mémoire de fin d'études de master académique, Université Abdelhamid Ibn Badis - Mostaganem, 2021.

[6] W. Kohn et L. J. Sham, "Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects," *Physical Review*, vol. 140, no. 4A, pp. A1133-A1138, 1965.

[7] S. Antonczak, J. Celerier-Golebiewski, S. Fiorucci, J. Diharce, J. Topin, F. Fontaine-Vive, "*Les différentes méthodes de chimie computationnelle*," Université de Nice Sophia Antipolis, 2012.

[8] A. Nacer and R. N. kherkhachi, "Calcul ab-initio structural et électronique de V2CoZ (Z=Al, In)," Mémoire de Master, Université Mohamed Khider de Biskra, Biskra, Algeria, 2021.

[9] S. Cottenier, "Density Functional Theory and the Family of (L) APW-methods: a step-by-step introduction", ISBN 978-90-807215-1-7, 2013.

[10] A. Dal Corso, P. Pasquarello , et A. Baldereschi, "Generalized-gradient approximations to density-functional theory: A comparative study for atoms and solids," Physical Review B, vol. 53, no. 3, pp. R1055-R1058, 1996.

Chapitre III.
La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW)

III. 1. Introduction

Il existe différentes méthodes pour calculer la structure électronique en résolvant les équations de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Ces méthodes diffèrent par la forme du potentiel utilisé et par les fonctions d'onde employées comme fonctions de base. La méthode des ondes planes augmentées linéarisées à potentiel complet (FP-LAPW) est l'une des méthodes les plus précises. Dans cette méthode, aucune forme particulière n'est supposée pour le potentiel [1], ce qui justifie son utilisation dans notre étude. Cette méthode est commodément implémentée dans le code informatique WIEN2k, l'un des programmes informatiques les plus utilisés pour déterminer les propriétés électroniques des matériaux basés sur cette méthode. [2] C'est ce qui sera présenté dans ce chapitre.

III. 2. La méthode des ondes planes augmentées (APW)

La méthode des ondes planes augmentées (APW) a été formulée par Slater [3], où il a montré que le potentiel et les fonctions d'onde prennent la forme connue sous le nom de "Muffin-Tin" (MT) au voisinage du noyau atomique, et présentent une symétrie sphérique à l'intérieur de la sphère MT de rayon R_α, tandis que le potentiel est considéré comme constant dans l'espace éloigné restant du solide. Par conséquent, les électrons sont considérés comme libres lorsqu'ils sont éloignés des noyaux, et sont décrits par des ondes planes, tandis qu'ils sont décrits plus précisément par des fonctions atomiques lorsqu'ils s'approchent du noyau, où leur comportement est similaire à celui d'un atome libre. [4]

La distribution des régions dans le modèle Muffin-Tin est illustrée dans la figure (III-1) où :

La première région : à l'intérieur de la sphère MT inclut à la fois les noyaux et les électrons fortement liés à eux.

La deuxième région : la région interstitielle, entoure les sphères et inclut les électrons faiblement liés aux noyaux.

R_α représente le rayon de la sphère MT.

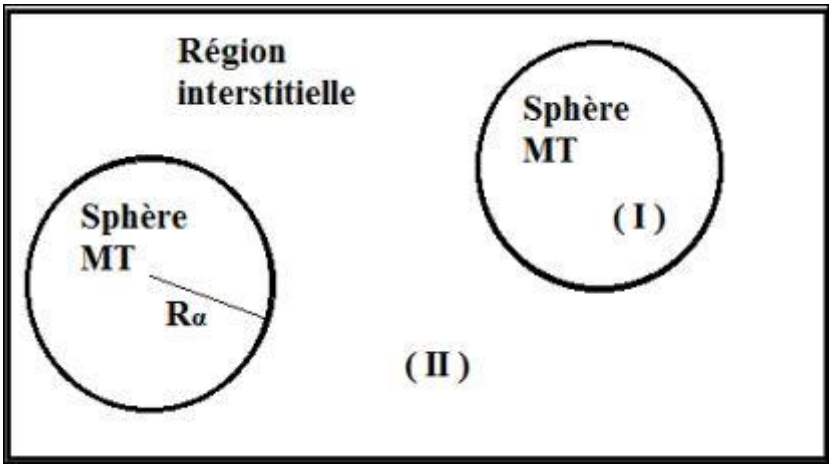


Figure III.1 : Schéma du modèle Muffin-Tin utilisé dans la méthode APW. [5]

La fonction d'onde dans les deux régions est définie par l'expression suivante :

$$\Phi(r) = \begin{cases} \sum_{l,m} A_{lm} U_l(r) Y_{lm}(r) & r \in R_{MT} \\ \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \sum_G C_G e^{i(G+K)r} & r \in Interstitielle \end{cases} \qquad \text{(III-1)}$$

Où,C_G et A_{lm} les coefficients de développement en harmoniques sphériquesY_{lm} , Ω est le volume de la maille unitaire.E_lEst la solution régulière de l'équation de Schrödinger pour la partie radiale dans le cas d'un atome libre qui s'écrit sous la forme:

$$\left[-\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{l(l+1)}{r^2} + V(r) + E_l - rU_l(r)\right] = 0 \qquad \text{(III-2)}$$

$V(r)$ Représente la partie du potentiel sphérique et E_l représente l'énergie linéaire, tandis que la fonction vectorielle définie dans la relation (III-2) est perpendiculaire à tous les états propres cardiaques. Les conditions d'orthogonalité se terminent aux limites pour une sphère M.T, l'équation de Schrödinger pour les fonctions vectorielles U_1 et U_2 correspondant aux valeurs propres E_1 et E_2 devient comme suit :

$$(E_2 - E_1) r U_1 U_2 = U_2 \frac{d^2 r U_1}{dr^2} - U_1 \frac{d^2 r U_2}{dr^2} \qquad \text{(III-3)}$$

Slater a utilisé l'approximation "muffin-tin" où le potentiel est constant dans la région interstitielle et possède une symétrie sphérique à l'intérieur des sphères, fournissant ainsi une énergie égale à la valeur propre. Cependant, pour assurer la continuité de la fonction (r) à la surface de la sphère M.T, les coefficients A_{lm}sont développés en termes des

coefficients C_G des ondes planes dans la région interstitielle. Les coefficients d'énergie E_l sont appelés coefficients de variation dans la méthode APW. Après les calculs algébriques, on obtient :

$$A_{lm} = \frac{4\pi i^l}{\sqrt{\Omega} U_l(R)} \sum_G C_G(|K+g|R) Y_{lm}^*(K+G) \qquad \text{(III-4)}$$

Les fonctions propres définies par G deviennent compatibles avec les fonctions radiales dans la sphère M.T, ce qui permet d'obtenir une fonction de base APWs. Les fonctions APWs sont des solutions de l'équation de Schrödinger à l'intérieur de la sphère M.T, correspondant à l'énergie E_l, c'est-à-dire qu'on obtient la bande d'énergie correspondant au coefficient G. La méthode APW a présenté un certain nombre de difficultés, notamment au niveau des fonctions $U_l(r_\alpha)$, car en cas de diminution des coefficients A_{lm}, les valeurs de $U_\alpha(r_\alpha)$ s'annulent à la surface de la sphère M.T, ce qui rend les fonctions radiales discontinues par rapport aux fonctions d'onde planes dans la région intermédiaire.[6] Pour résoudre ce problème, Koelling et Andersen [7] ont introduit un ensemble de modifications à la méthode des ondes planes augmentées APW, reposant essentiellement sur la représentation de la fonction radiale $\Phi(r)$ en dehors de la sphère M.T par des combinaisons linéaires de $U_l(r_\alpha)$ et de leurs dérivées par rapport à l'énergie $\dot{U}_l(r)$.

Cette méthode a été appelée méthode des ondes planes augmentées linéairement LAPW-FP.

III. 3. La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW)

La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (LAPW) est une modification de la méthode originale des ondes planes augmentées (APW) proposée par Slater. Dans cette méthode, les ondes planes sont utilisées dans la zone interstitielle du cristal, ce qui permet d'obtenir toutes les bandes de valence dans une large plage d'énergie. La méthode LAPW se caractérise par une plus grande liberté vibratoire par rapport à la méthode APW. Et pour améliorer la méthode LAPW, la technique des ondes planes augmentées linéarisées à potentiel complet (FP-LAPW) a été développée ; cette dernière permet de définir la continuité des potentiels à la surface de la sphère MT. Dans la méthode FP-LAPW, l'espace cristallin est divisé en deux régions : la première correspond à la sphère de Muffin-Tin (MT), tandis que la seconde représente l'espace interstitiel restant.

III. 3. 1. Les bases de la FP-LAPW

La fonction de base dans la méthode FP-LAPW repose sur l'utilisation des ondes planes dans la région interstitielle, ainsi que sur le produit des harmoniques sphériques avec les fonctions radiales dans les sphères. À l'intérieur de la sphère, les fonctions de base sont des combinaisons linéaires des fonctions radiales $U_l(r)Y_{lm}(r)$ et de leurs dérivées par rapport à l'énergie $\dot{U}_l(r)Y_{lm}(r)$. Les fonctions U_l sont définies comme dans la méthode APW, et la fonction $\dot{U}_l(r)$doit satisfaire à la condition suivante [8] :

$$\left\{-\frac{d^2}{dr^2}+\frac{l(l+1)}{r^2}+V(r)-E_l\right\}r\dot{U}_l(r)=rU_l(r) \qquad \text{(III-5)}$$

La fonction d'onde s'écrit comme suit :

$$\Phi(\mathrm{r})=\begin{cases}\frac{1}{\sqrt{\Omega}}\sum_{\mathrm{G}}\mathrm{C_G}e^{i(\vec{G}+\vec{K})\vec{r}} & r>r_0\\ \sum_{\mathrm{lm}}\left(\mathrm{A_{lm}}\,\mathrm{U_l}(\mathrm{r})+\mathrm{B_{lm}}\,\dot{\mathrm{U}}_{\mathrm{lm}}(\mathrm{r})\right)\mathrm{Y_{lm}}(\mathrm{r}) & \mathrm{r}<\mathrm{r}_0\end{cases} \qquad \text{(III-6)}$$

Où :A_{lm} : sont des coefficients correspondant à la fonction U_l.

B_{lm} : sont des coefficients correspondant à la fonction $\dot{U}_l$.

Les fonctions (FP-LAPW), comme dans la méthode APW, sont des ondes planes uniquement dans les régions interstitielles. Les fonctions radiales peuvent être développées au voisinage de E_l comme suit :

$$U_l(E,r)=U_l(E_l,r)+(E-E_l)\acute{U}_l(E,r)+O((E-E_l)^2) \qquad \text{(III-7)}$$

où $O((E-E_l)^2)$représente l'erreur quadratique en énergie.

Comparée à la méthode APW, cette approche montre une précision moindre, avec des erreurs dans le calcul de la fonction d'onde et de l'énergie respectivement de l'ordre de $O((E-E_l)^2)$ et$O((E-E_l)^4)$.

Les fonctions LAPW constituent une base adéquate pour le calcul des bandes de valence sur une large plage d'énergie en utilisant une seule valeur de E_l. Si nécessaire, cette plage peut être divisée en deux, ce qui représente un avantage important et une simplification par rapport à la méthode APW.

En général, lorsque la fonction radiale U_l est nulle à la surface de la sphère, sa dérivée $\dot{U}_l$ ne l'est pas, ce qui signifie qu'il n'y a pas de problème de continuité à la surface de la sphère Muffin-Tin dans cette méthode [9].

Pour appliquer les théories précédentes, nous avons utilisé le programme WIEN2k pour les calculs de structure électronique des solides. Ce code repose sur la théorie de la fonctionnelle de la densité **(**DFT**)** et la méthode LAPW avec les orbitales locales (Lo).

III. 4. Le code WIEN2k

Il a été licencié par plus de 3600 groupes d'utilisateurs est constitué d'un grand nombre de sous-programmes la plupart écrits en Fortran 90, qui sont liés entre eux à travers des scripts "tcsh-shell" représentant un flux de travail spécifique. Grâce à cette structure modulaire, WIEN2k est très flexible, ce qui permet d'exécuter un programme selon la tâche voulue. Par contre, il n'y a pas un seul programme qui exécute tout automatiquement, mais c'est à l'utilisateur de savoir quel programme exécute quelle tâche en fonction des directives dans les fichiers d'entrée. [10]

III. 4. 1. Utilisations du code WIEN2k

WIEN2k peut être utilisé soit via la ligne de commande, soit à travers une interface graphique appelée "w2web", accessible via n'importe quel navigateur web. En général, les utilisateurs expérimentés préfèrent la ligne de commande pour accéder à toutes les options avancées, tandis que pour les débutants, l'interface graphique est une bonne base qui leur permet aussi d'apprendre les commandes correspondantes [11].

III. 4. 2. Initialisation

Avant de commencer un calcul avec WIEN2k, une phase d'initialisation est nécessaire, en commençant par le fichier "case.struct" qui contient toutes les informations décrivant la structure atomique du système (paramètres du réseau, type de maille, positions de Wyckoff, etc.). Ensuite, l'initialisation est effectuée en utilisant la commande "init_lapw". Plusieurs fichiers exécutables sont utilisés pour générer les fichiers nécessaires au bon déroulement du cycle auto-cohérent [10]. Ces fichiers sont les suivants :

NN : Calcule les plus proches voisins jusqu'à une distance spécifiée, ce qui aide à déterminer les rayons atomiques des sphères de Muffin-Tin (MT).

LSTART : Génère les densités électroniques atomiques et détermine comment les orbitales sont traitées dans les calculs de structure de bande (par exemple, en tant qu'états de cœur ou d'états de valence, avec ou sans orbitales locales, etc.).

SYMMETRY : À partir du fichier brut "case.struct ", ce programme génère les opérations de symétrie du groupe d'espace, détermine le groupe ponctuel de chaque site atomique, génère le développement LM pour les harmoniques de réseau, ainsi que les matrices de rotation locales.

KGEN : Génère un maillage de points k dans la zone de Brillouin. Il est nécessaire de spécifier le nombre total de points k dans toute la zone (utiliser 1000 pour comparaison, mais un bon calcul en nécessite beaucoup plus).

DSTART : Génère une densité de départ pour le cycle d'auto-cohérence (SCF) en superposant les densités atomiques générées dans "LSTART " [12]. Le cycle SCF est ensuite initialisé et répété jusqu'à ce que le critère de convergence soit atteint. Les étapes de ce cycle comprennent :

LAPW0 : Il génère le potentiel à partir de la densité calculée.
LAPW1 : Il calcule les bandes de valence, les valeurs propres et les vecteurs propres.
LAPW2 : Il calcule les densités de valence à partir des vecteurs propres obtenus précédemment.
LCORE : Ce programme calcule les états de cœur et les densités correspondantes.
MIXER : Il mélange la densité d'entrée et de sortie, et vérifie le critère de convergence. Ce processus itératif se poursuit jusqu'à ce que la convergence soit atteinte [13].

III. 4. 3. Détermination des propriétés

Une fois le calcul auto-cohérent achevé, les propriétés de l'état fondamental (densité de charges, structure de bandes, propriétés optiques… etc.) sont alors déterminées.

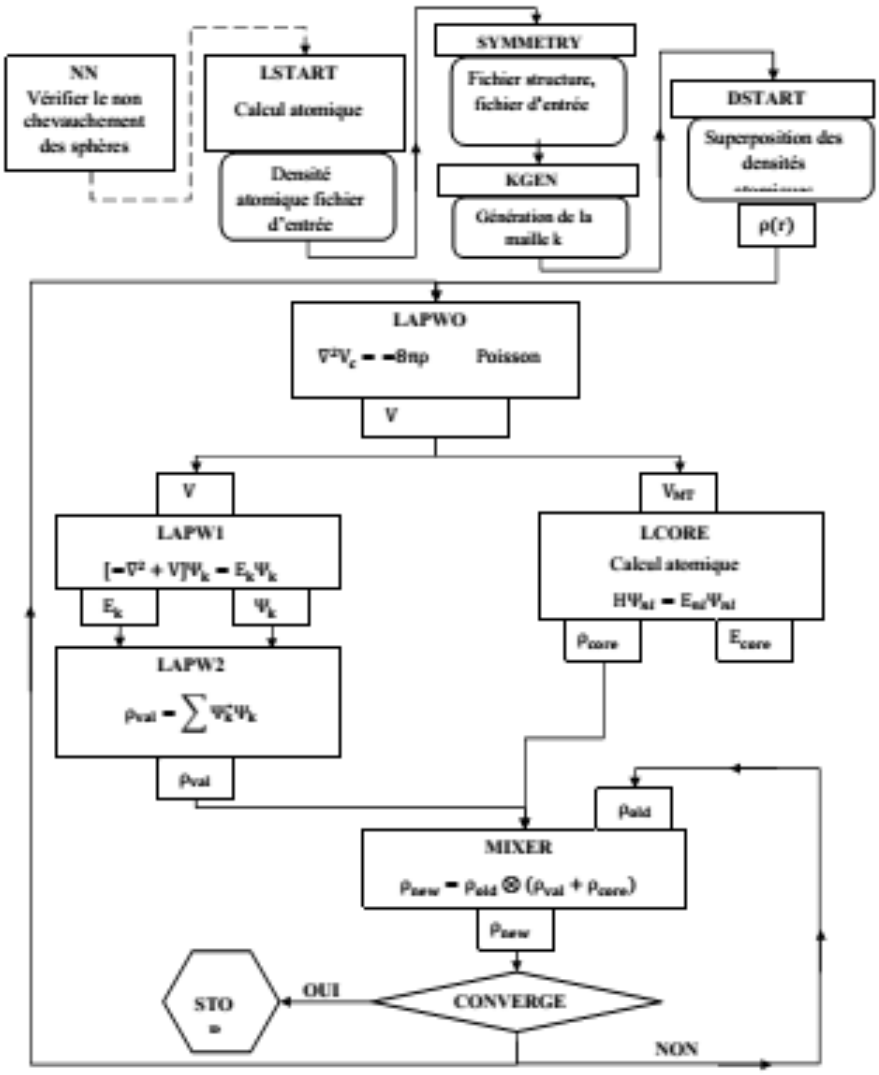


Figure III.2 : L'organigramme du code WIEN2k [14].

III. 5. Conclusion

Dans ce chapitre, la méthode FP-LAPW pour le calcul de la structure électronique a été présentée, en soulignant sa précision et son étendue d'utilisation, en particulier dans le programme WIEN2k. Ce dernier offre une application pratique de cette méthode avancée, la rendant essentielle pour comprendre les propriétés électroniques des matériaux complexes.

Référence

[1] S. Idrissi, "Etude des propriétés structurales, électroniques et magnétiques des nouveaux alliages Heusler quaternaires : CoFeCrP, NiMnCuSb, LuCoVGe et NbRhCrAl par la méthode ab-initio et les simulations Monte Carlo," Thèse de doctorat, Université Mohammed V - Rabat, Maroc, 2019.

[2] K. Schwarz and P. Blaha, "Solid state calculations using WIEN2k," Computational Materials Science, vol. 28, no. 2, pp. 259-273, Oct. 2003.

[3] S. Chahra, "Etude des propriétés structurales, électroniques, optiques et thermodynamiques des composés PbS, PbSe, PbTe et leurs alliages $Pb_{(1-x)}$ CaxS, $Pb_{(1-x)}$ CaxSe," Thèse de Doctorat d'État, Université Badji Mokhtar, Annaba, Algérie, 2010.

[4] N. Belkadi, "Propriétés Ferromagnétiques dans les Composés Demi-Heusler XSbB(X=K,Rb)," Mémoire de Master, Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou, Algérie, 2019.

[5] H. E. Belhouchi, "Étude des propriétés électroniques des composés LiAlSi et LiAlGe," Master's thesis, Univ. 08 mai 1945 Guelma, Guelma, Algeria, Jun. 2022.

[6] A. Nacer and R. N. kherkhachi, "Calcul ab-initio structural et électronique de V2CoZ (Z=Al, In)," Mémoire de Master, Université Mohamed Khider de Biskra, Biskra, Algeria, 2021.

[7] O. K. Andersen, "Linear methods in band theory," *Phys. Rev. B*, vol. 12, no. 8, pp. 3060-3083, Oct. 1975.

[8] Y. Saadi, "Contribution à l'étude des propriétés physiques de X_2GdIn (X= Au, Ag, Cu)," Thèse de doctorat en sciences, Université de Sétif 1, Sétif, Algérie, 2013.

[9] H. E. Belhourchi, "Etude des propriétés électroniques des composés LiAlSi et LiAlGe," Mémoire de Master, Université 8 Mai 1945 Guelma, Guelma, Algérie, Juin 2022.

[10] B. Fardoun, "Structure électronique et propriétés magnétiques statiques et dynamiques d'alliages d'Heusler potentiellement demi-métalliques et d'hétéro structures tout-Heusler," Thèse de doctorat, Université de Toulouse, HAL Open Science, 2017. Disponible : [En ligne] https://hal.science/tel-01668719.

[11] P. Blaha, K. Schwarz, F. Tran, R. Laskowski, G. K. H. Madsen, et L. D. Marks, "WIEN2k: An APW+lo program for calculating the properties of solids," J. Chem. Phys, vol. 152, no. 7, p. 074101, 2020.

[12] P. Blaha, K. Schwarz, G. K. H. Madsen, D. Kvasnicka, J. Luitz, R. Laskowski, et al., User's Guide, WIEN2k_23.2 (Release 07/24/2024): An Augmented Plane Wave + Local Orbitals Program for Calculating Crystal Properties.

[13] A. Bouhlala, "Investigation des propriétés physiques de l'oxyde de cérium dopé par des métaux de transition via la méthode ab-initio FP-LAPW," Thèse de doctorat 3ème cycle, Université 8 Mai 1945 Guelma, Guelma, Algérie, 2024.

[14] N. Chouit, "Etude ab-initio des différentes propriétés structurales, électroniques, optiques et thermiques des composés ternaires (CaLiF3 et SrLiF3) par la méthode FP-LAPW," Thèse de doctorat, Université Badji Mokhtar Annaba, Annaba, Algérie, 2014.

Chapitre IV.

Résultats et discussions

IV. 1. Introduction

Dans ce chapitre nous allons étudier les propriétés structurales telles que (le module de compressibilité, le paramètre du réseau) et les propriétés électroniques telles que (la structure de bandes, la densité d'états totale et partielle) des alliages Full-Heusler et Half-Heusler (Co_2ZrSn, CoZrSn). Les résultats sont obtenus à partir de la méthode des ondes planes augmentées (FP-LAPW) implémentée dans le code Wien2k. Pour déterminer le potentiel d'échange et de corrélation, nous avons utilisé l'approximation GGA. En effet, les variations de ces constituants ont un impact important sur les propriétés physiques de ces alliages, et les informations de ces propriétés recueillies pourront servir à l'élaboration de données fondamentales basées sur les calculs de l'ab-initio [1] afin de gérer au mieux l'incorporation de ces matériaux magnétiques dans les dispositifs électroniques intégrés.

IV. 2. Structure cristalline de Co2ZrSn et CoZrSn

En général, les alliages Heusler cristallisent dans des structures cubiques du réseau de Bravais cubique à faces centrées, dans lequel les atomes X occupent les sites A (0, 0, 0) et C (1/2, 1/2, 1/2), l'atome Y occupe le site B (1/4, 1/4, 1/4), et l'atome de Z occupe le site D (3/4, 3/4, 3/4).

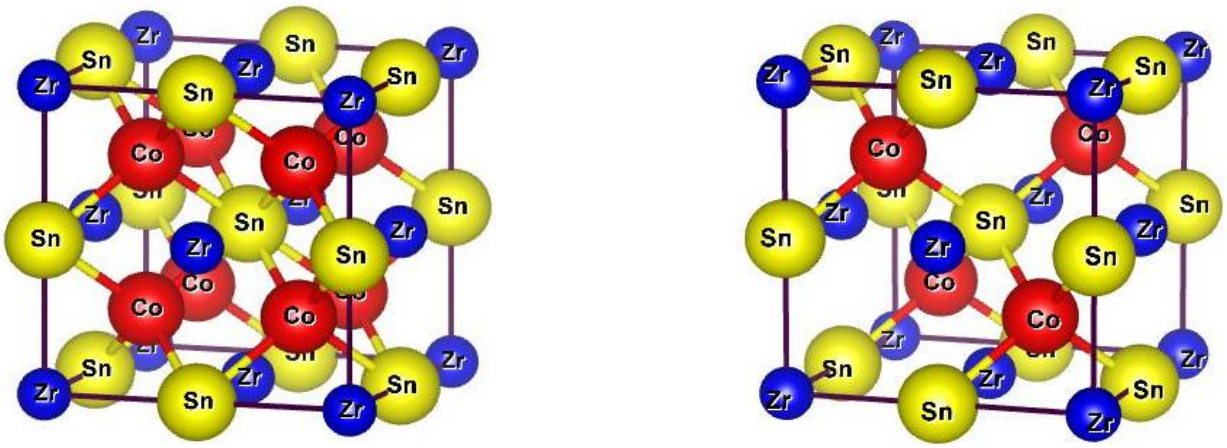
La configuration électronique des éléments chimiques est donnée sous la forme :

[Co]: [Ar] $3d^7$ $4s^2$
[Zr]: [Kr] $4d^2$ $5s^2$
[Sn] : [Kr] $4d^{10}$ $5s^2 5p^2$
Les données d'entrée sont nécessaires au code telles que : les éléments du matériau, le système cristallin, le réseau de Bravais (groupe d'espace), les paramètres du réseau (a, b, c, α, β, γ), les positions des atomes. Ces paramètres d'entrée sont rassemblés dans le tableau**(**IV.1) :

Composé	Co_2ZrSn	CoZrSn
Type de structure	CFC	CFC
Groupe d'espace	Fm-3 m (225) (a=b=c α=β=γ=90°)	F -4 3 m (216) (a=b=c α=β=γ=90°)
Les positions des atomes	Co : (1/4, 1/4, 1/4) Co :(3/4, 3/4, 3/4) Zr :(0,0,0) Sn :(1/2,1/2,1/2)	Co : (1/4, 1/4, 1/4) Zr :(0, 0,0) Sn :(1/2,1/2,1/2)

Tableau IV.1 : Quelques propriétés des deux composés Co_2ZrSn, CoZrSn.

Les structures cristallines des composés à base de cobalt Co_2ZrSn et CoZrSn sont présentées dans la figure(IV.1) suivante :



a) Co_2ZrSn **b) CoZrSn**

Figure IV.1 : Représente la structure cristalline des composés a) Full-Heusler Co_2ZrSn et b) Half-Heusler CoZrSn

IV. 3. Détails de calcul

Les propriétés dans ce travail sont calculées dans le cadre de la DFT à l'aide de la méthode FP-LAPW qui est intégrée dans le code WIEN2k. Pour le potentiel d'échange et de corrélation nous avons utilisé l'approximation du gradient généralisé (GGA : Generalized Gradient Approximation).

Avant de se lancer dans des calculs longs et coûteux, il est nécessaire d'optimiser les paramètres d'entrée qui contrôlent la convergence des calculs :

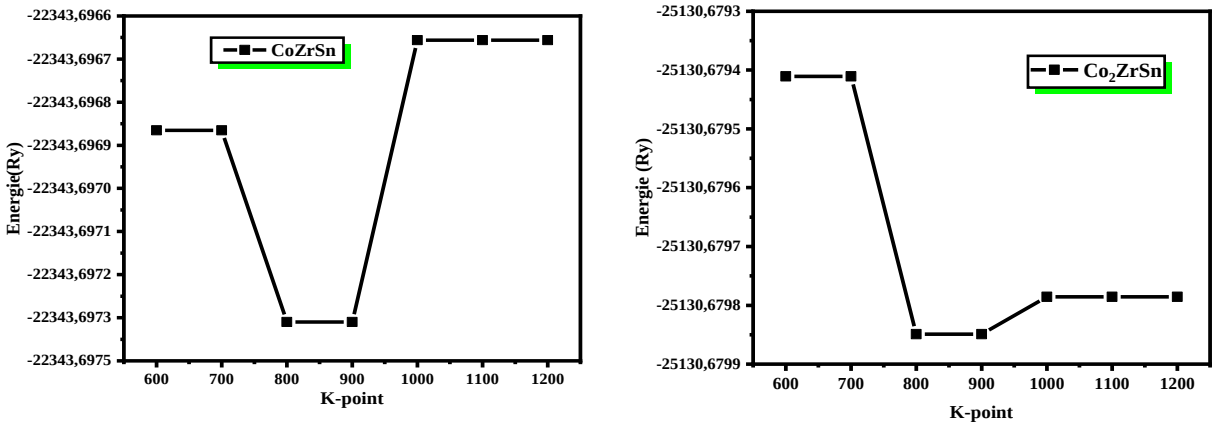
- Les rayons de Muffin-tin (R_{MT}), donnés en unités atomiques (u.a). Les valeurs de (R_{MT}) que nous avons utilisé pour Co, Zr, et Sn représentent un bon choix pour notre calcul. Ce choix est basé sur deux critères :
- ✓ Assurer l'intégration de la majorité des électrons de cœur dans la sphère (Muffin- tin).
- ✓ Eviter le chevauchement des sphères (Muffin-tin).
- Le nombre de points K est le plus petit nombre pour atteindre la convergence

Le paramètre de coupure $R_{MT} * K_{Max}$, 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 d'ondes planes des fonctions propres. [2]

Ces grandeurs ont été précisées pour les deux composés Co2ZrSn et CoZrSn pour chaque type d'alliage en utilisant l'approximation GGA, comme suit :

IV.3.1. Tests de convergence pour k-point

Afin de trouver la valeur de K-point où la valeur de l'énergie est constante (avec une précision énergétique de 0.001 Ry), nous fixons la valeur de $R_{MT} * K_{Max}$ que nous avons prise à 9. Nous avons fait varier la valeur de K-point par étapes, dans une plage allant de 600 à 1200. À chaque étape, nous avons recalculé la boucle SCF en réinitialisant le calcul (initialize calc) jusqu'à ce que l'énergie devienne constante Les courbes de la figure (IV.2) ont été obtenues pour les deux alliages :



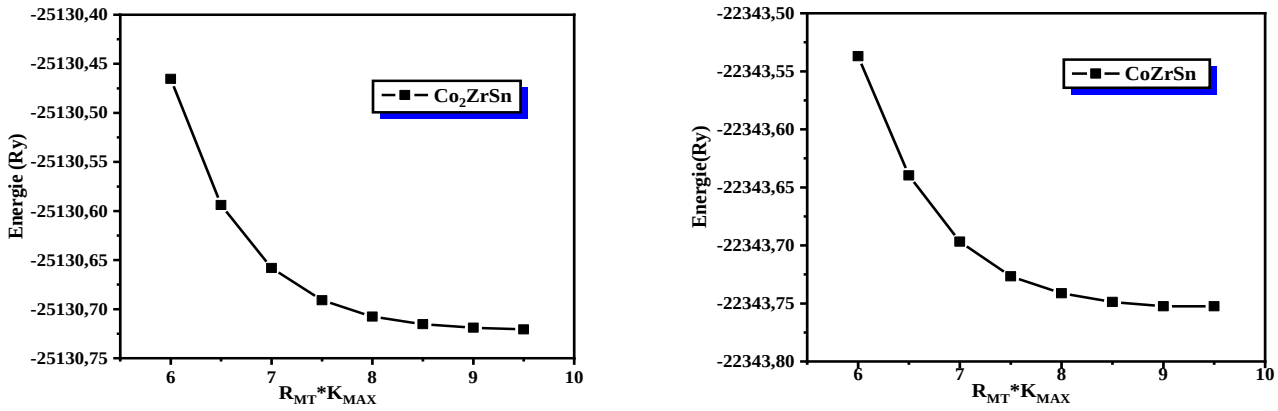
a) CoZrSn **b) Co_2ZrSn**

Figure IV.2 : La variation de l'énergie en fonction du nombre de K_{point} pour les composé a)Co_2ZrSn et b) CoZrSn.

La figure**(**IV.2) montre la variation de l'énergie en fonction du nombre de K-point. On remarque que les courbes se stabilisent à partir de 1000 K-point. Au-delà de cette valeur, le temps de calcul augmente sans amélioration significative de la précision.

IV.3.2 Tests de convergence pour$R_{MT}*k_{max}$

Nous répétons les mêmes étapes que nous avons effectuées précédemment dans les tests de convergence pour k-points, mais dans cette étape, nous modifions la valeur de $R_{MT}*k_{max}$ à chaque fois et sa plage est d'environ 5 à 9,5. Nous fixons la valeur de K dans la première région Brillon 1000 obtenue précédemment. Jusqu'à ce que l'énergie devienne constante. Les courbes de la figure (IV.3) sont obtenues pour les deux alliages :



a) Co_2ZrSn b) CoZrSn

Figure IV.3 : La variation de l'énergie en fonction de $R_{MT}*k_{max}$ pour les composé a)Co_2ZrSn et b) CoZrSn.

La figure (IV.3) montre la puissance en fonction de $R_{MT}*k_{max}$. Nous constatons que puissance diminue proportionnellement à $R_{MT}*k_{max}$. Pour améliorer la valeur $R_{MT}*k_{max}$, nous avons choisi la valeur 9 car après cette valeur, nous n'avons observé aucun changement significatif.

Le tableau **(**IV.2) résume tous les paramètres obtenus à travers les tests de convergence :

Composés	$\mathbf{R_{MT} * K_{Max}}$	$\mathbf{K_{point}}$	$\mathbf{R_{MT}}$**(u.a)**		
			Co	**Zr**	**Sn**
Co_2ZrSn	9	1000	2.3	2.5	2.3
CoZrSn	9	1000	2	2.2	2.5

Tableau IV.2 : Les valeurs desR_{MT}, K_{point} et $R_{MT} * K_{Max}$ des composés Co_2ZrSn et CoZrSn calculés par l'approximation GGA.

IV. 4. Propriétés Structurales :

L'étude des propriétés structurales est une étape essentielle dans l'analyse des matériaux, car elle permet de déterminer la structure et la constante de réseau les plus stables à l'équilibre, ce qui aide à comprendre leurs différentes propriétés physiques, telles que les propriétés mécaniques, électroniques et magnétiques.

Pour déterminer les paramètres d'équilibre tels que le paramètre de réseau (a_0), le module de compressibilité B et sa dérivéeB', l'énergie totale a été calculée en fonction du volume, la courbe obtenue a été ensuite interpolée par l'équation d'état de Murnaghan [3] donnée par:

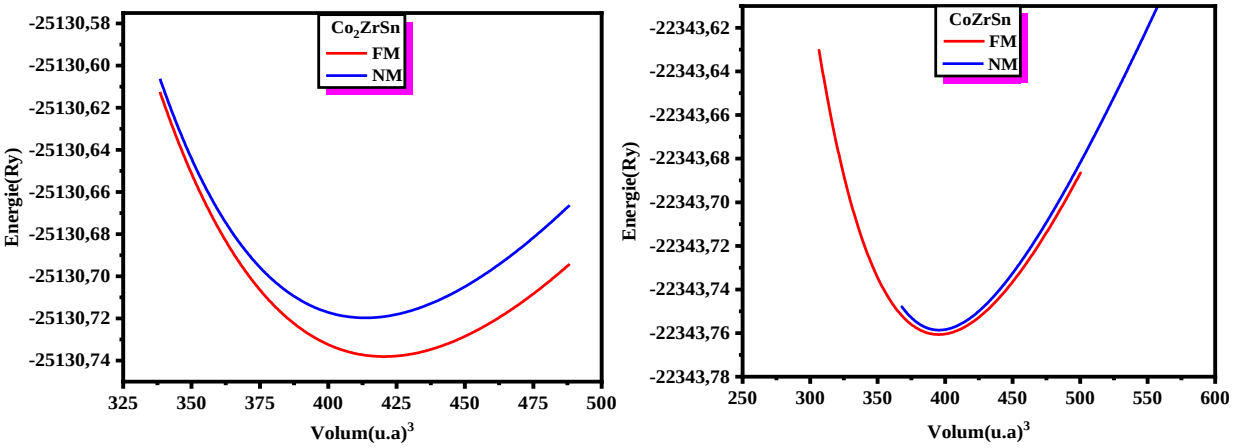
$$E_{tot}(V) = E_0 + \frac{B_0 V}{B'(B'-1)}\left[B\left(1-\frac{V_0}{V}\right) + \left(\frac{V_0}{V}\right)^{B'} - 1\right] \qquad \text{(III-1)}$$

Où E_0,V_0, B et B' sont respectivement :l'énergie totale, le volume a l'équilibre, le module de compression et sa dérivée.

Le module de rigidité volumique, mesure la résistance à une compression ou à une dilatation uniforme, due à un changement du volume de la maille par rapport à celui de l'équilibre et il est donné par :

$$B = -\mathrm{V}\frac{\partial \mathrm{P}}{\partial \mathrm{V}} = V\frac{\partial^2 E}{\partial V^2} \qquad \text{(III-2)}$$

Sur la base des calculs précédents, nous avons calculé l'énergie totale pour les états ferromagnétique(FM) et non magnétique (NM) pour les composés Co_2ZrSn et CoZrSn, par l'approche GGA (figures IV.4).



a) Co_2ZrSn b) CoZrSn

Figure IV.4 : La variation de l'énergie totale en fonction du volume en états FM et NM pour le composé a) Co_2ZrSn et b) CoZrSn.

Les figures (IV.4) montrent clairement que l'état ferromagnétique et l'état le plus stable pour les deux composés. Une autre étude confirme également que l'énergie des deux composés dépend de leur état magnétique, ce qui démontre que les interactions magnétiques jouent un rôle important dans la stabilité de leurs structures.

Nous avons résumé nos résultats ferromagnétiques dans le tableau (IV.3), en les comparants à d'autres valeurs théoriques et expérimentales disponibles, afin de faciliter la comparaison. Ce tableau inclut des paramètres tels que la constante de réseau a (en Å), le module de compressibilité B et sa dérivée B′, ainsi que l'énergie totale. Nous avons constaté que nos résultats sont en bon accord avec les données rapportées dans la littérature.

Compounds	CoZrSn		Co_2ZrSn	
	Ce travail	Autres calculs	Ce travail	Autres calculs
$\boldsymbol{a}$ $(\boldsymbol{A}°)$	6.1646	6.15 [4] 6.1698 [5]	6.2930	6.302 [6]
$\boldsymbol{B}(\boldsymbol{GPa})$	118.0017	120.8567 [5]	153.3507	155.71 [6]
$\boldsymbol{B'}$	4.5125	4.3006 [5]	4.4218	4.60 [6]
$\boldsymbol{E_0}(\boldsymbol{Ry})$	-22343.760647		-25130.7380	

Tableau IV.3 : Paramètre de maille $a(\mathring{A})$module d'incompressibilité B (GPa)et sa dérivéeB' de composés Co_2ZrSn et CoZrSn**.**

IV. 5. Les Propriétés électroniques

Ces propriétés sont essentielles pour fournir des informations sur la conductivité électronique et thermique, et permettent également d'analyser et de comprendre la nature des liaisons entre les différents éléments de ce matériau. Ces propriétés comprennent les structures de bande, les densités de charge et les densités d'états.

IV. 5. 1. Structures de bandes :

Nous avons calculé la structure de bandes de Co_2ZrSn et CoZrSn dans l'approximation GGA en utilisant de meilleurs paramètres de réseau calculés dans nos travaux précédents. Les bandes d'énergie donnent des énergies possibles d'un électron en fonction du vecteur d'onde. Ces bandes sont donc représentées dans l'espace réciproque, et pour simplifier, seules les directions de plus hautes symétries dans la première zone de Brillouin sont traitées. Pour les semi-conducteurs, le spectre est caractérisé par la présence de bandes de valence et de bandes de conduction qui sont séparées par une bande interdite ou gap [7]. 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, comme l'illustre la figure (IV.5).

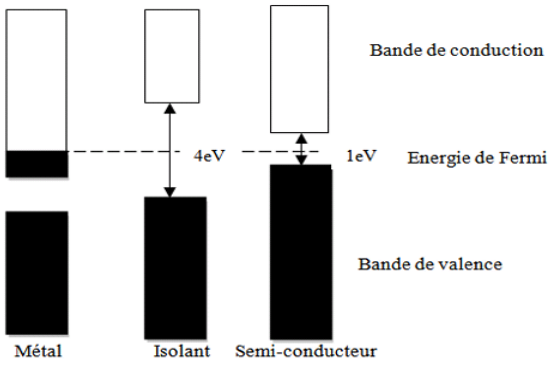


Figure IV.5 : Relation entre la position des bandes d'énergie et le niveau de Fermi, qui détermine le comportement électronique des métaux, des semi-conducteurs et des isolants. [2]

Pour étudier les propriétés électroniques de Co_2ZrSn et CoZrSn, nous avons effectué une analyse de structure de bande prenant en compte l'effet de la polarisation magnétique. Cela impliquait d'effectuer des calculs séparés pour la polarisation dominante (spin up) et la polarisation moins dominante (spin down) dans l'espoir de déterminer la nature du matériau et de déterminer ses propriétés magnétiques. Les figures (IV.6) et (IV.7) illustrent les structures de bandes électroniques calculées du composé Co_2ZrSn et CoZrSn selon les orientations de spin majoritaire et minoritaire, à l'aide de l'approximation GGA.

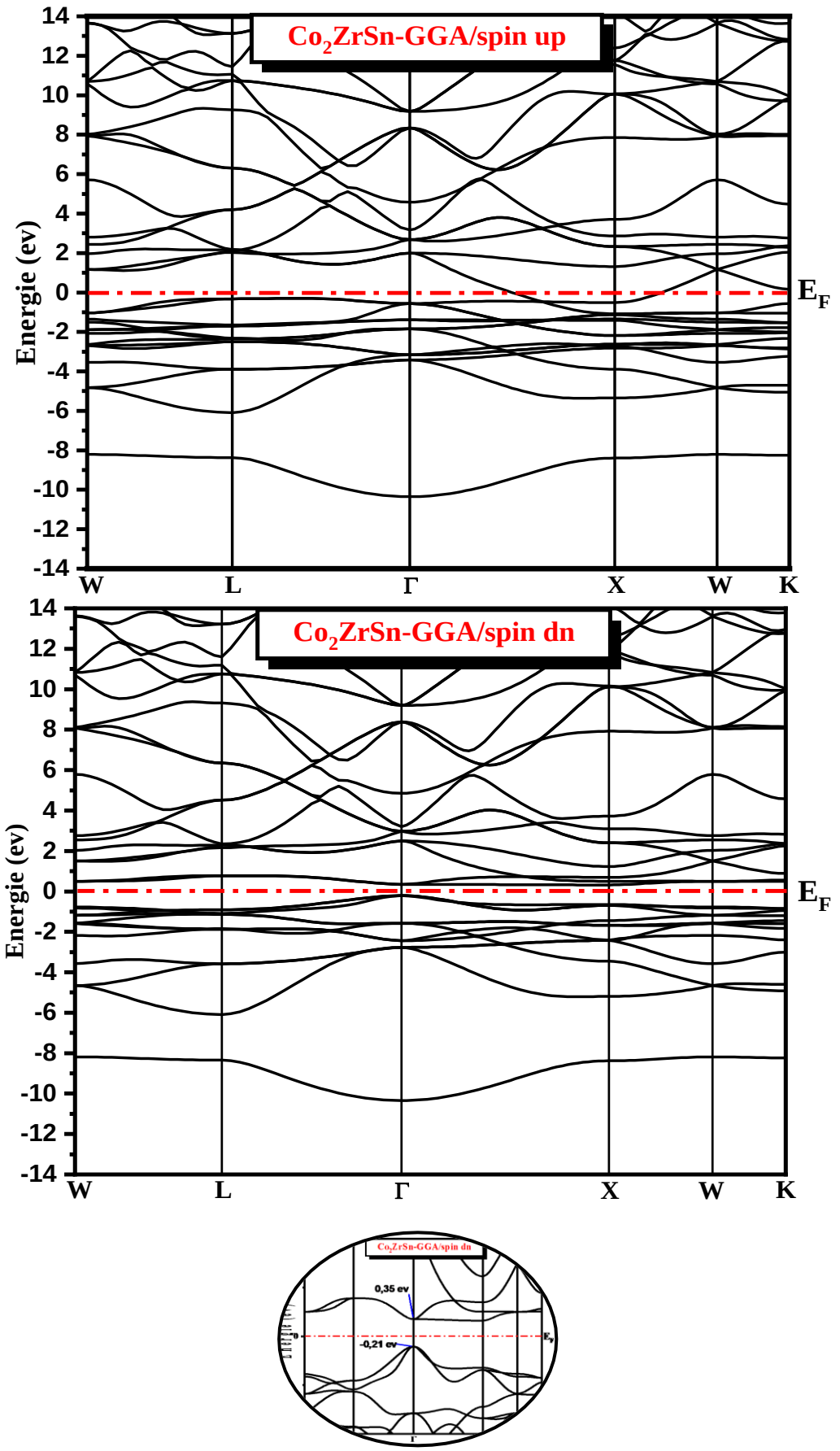


Figure IV.6 : Structure de band de Co_2ZrSn calculée par l'approche GGA.

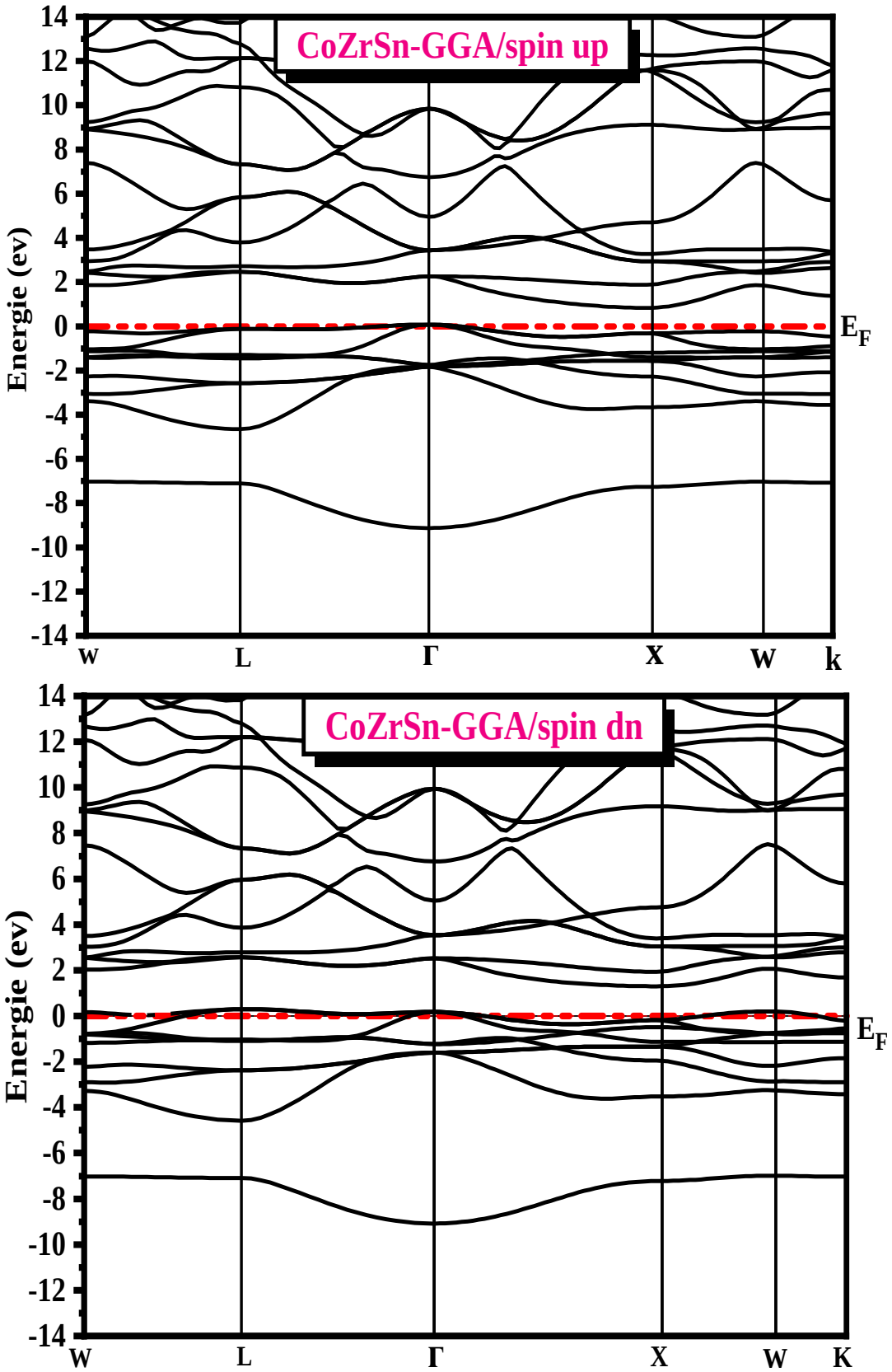


Figure IV.7 : Structure de band de CoZrSn calculée par l'approche GGA.

Nous pouvons dire que sur ces figures les bandes de valence présentent moins de dispersion que les bandes de conduction. Ceci est dû au fait que les électrons dans les bandes de conduction sont plus libres donc moins localisés.

Comme pour tous les conducteurs, le chevauchement entre les bandes de valence et de conduction constitue une caractéristique fondamentale. D'après la Figure (IV.6), Le composé Co_2ZrSn présente un comportement métallique dans l'état de spin-up. L'observation la plus significative réside dans la présence d'états électroniques au niveau de Fermi dans la structure de bandes pour les électrons de spin-up, ce qui confirme le caractère métallique du système**.**En revanche, pour l'état spin-down, on observe une faible densité d'états au niveau de Fermi. Le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction sont tous deux situés au point Γ, ce qui indique l'existence d'un gap direct. La valeur de l'énergie de gap pour le composé Co_2ZrSn dans cet état est de 0,56 eV. On peut donc dire que Co_2ZrSn se comporte comme un semi-conducteur dans l'état spin-down.

Cela signifie que le système présente un caractère demi-métallique. Les résultats obtenus à partir de la structure de bandes confirment clairement ce comportement demi-métallique pour les deux projections de spin.

D'après la Figure (IV.7), nous remarquons qu'il y a des bandes croisant le niveau de Fermi dans la direction de spin-dn, tandis que la direction de spin-up montre également un croisement des bandes avec le niveau de Fermi uniquement au point Γ. Par conséquent, le composé CoZrSn présente un caractère métallique.

IV. 5. 2. Densités d'états totale et partielle

L'importance des propriétés électroniques d'un matériau réside dans le fait qu'elles facilitent l'étude et la détermination du type de liaisons entre les différents éléments constituant le matériau. La densité d'états (DOS) permet de mesurer le nombre d'états électroniques ayant une énergie spécifique dans le matériau étudié. Dans la méthode FP-LAPW utilisée ici, nous distinguons deux types de densité d'états : la densité d'états totale (Total DOS - TDOS) et la densité d'états partielle (Partial DOS - PDOS), où la première représente tous les électrons du système, tandis que la seconde met l'accent sur la contribution des différents atomes ou orbitales. Dans le cadre de notre étude, nous avons calculé la densité d'états électroniques des composés Co_2ZrSn et CoZrSn en utilisant l'approximation GGA. Les résultats de ces calculs sont présentés dans les figures (IV.8) et (IV.9).

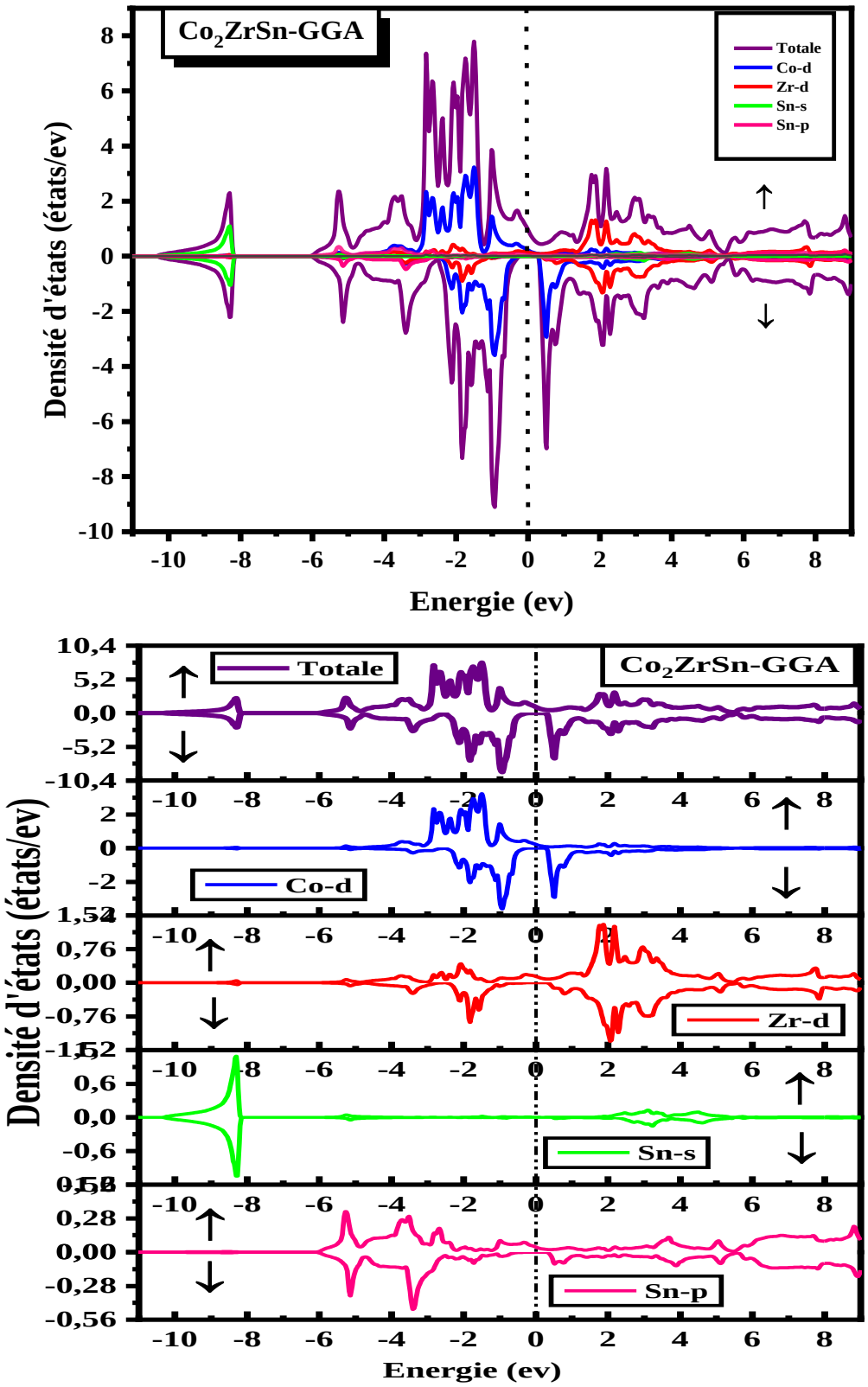


Figure IV.8 : Densités d'états totales et partielles pour Co_2ZrSn.

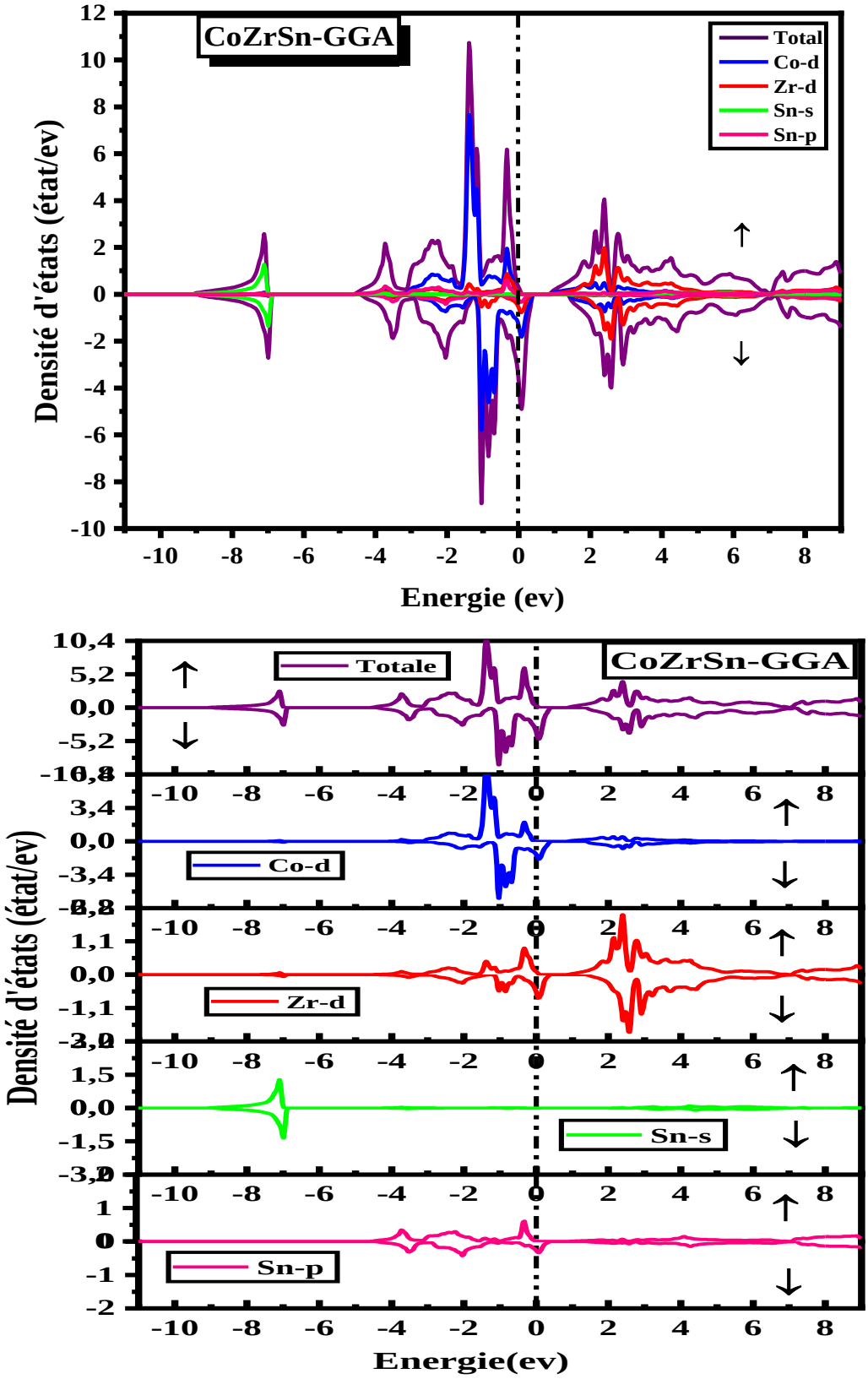


Figure (IV.9) : Densités d'états totales et partielles pour CoZrSn.

L'analyse des densités d'états partielles permet de caractériser les différentes régions électroniques des composés étudiés. Il apparaît clairement que les deux matériaux présentent un caractère magnétique marqué, comme en témoigne l'antisymétrie entre les états de spin majoritaire et minoritaire.

Les résultats obtenus, présentés dans la figure (IV.8) pour le composé Co_2ZrSn, sont discutés comme suit :

Dans les deux directions de spin : La première région est située entre [-10, -8eV], en dessous de niveau de Fermi. Elle est entièrement constituée des états 's' du Sn, ce qui indique que cet élément contribue principalement aux niveaux d'énergie profonds. Au-dessus de cette région, on trouve les bandes formées par les états 'd' du Co et du Zr, ainsi que les états 'p' du Sn, localisés entre [-6, 0 eV]. On observe que les états proches du niveau de Fermi sont dominés principalement par les orbitales 'd' du cobalt (Co-d) et 'd' du zirconium (Zr-d), indiquant une forte hybridation entre ces états. Les contributions des orbitales 's' et 'p' de l'étain Sn sont très faibles dans cette région.

La troisième région, comprise entre [0, 8eV], correspond à la bande de conduction, qui est constituée principalement des orbitales 'd' du Co et Zr**.**

À proximité du niveau de Fermi, la densité d'états est essentiellement dominée par les états d des métaux de transition (TM), en raison d'une forte hybridation entre les états 'd' du Cobalt Co et du zirconium Zr.

Un demi-métallicité est nettement observée dans le matériau Co_2ZrSn. L'origine du gap dans les états de spin minoritaire peut s'expliquer par de fortes répulsions entre les états 'd-d' des métaux de transition.

Les densités d'états confirment le caractère métallique pour les spins majoritaires et une absence d'états électroniques au niveau de Fermi pour les spins minoritaires, ce qui nous rapproche du caractère semi-conducteur. Ceci indique un comportement demi-métallique pour les deux projections de spin pour le composé Co_2ZrSn.

Les résultats obtenus, présentés dans la figure (IV.9) pour le composé CoZrSn, sont discutés comme suit :

Dans les deux directions de spin : La première région est située entre [–9, –6 eV] est une région isolée des autre, elle provient principalement d'une contribution importante des états 's' du Sn.

La seconde région d'énergie entre [-4, 0eV] est la région la plus importante dans la (TDOS).Elle provient principalement des états 'd' de l'atome Co, des états 'd' de l'atome Zn, ainsi que d'une faible contribution de s états des états 'p' de l'atome Sn, spécifiquement pour les états de spin minoritaire 'p' de l'atome Sn.

La troisième région d'énergie, située au-dessus du niveau de Fermi, entre [0, 1 eV], provient d'une contribution importante des états 'd' de l'atome Co, d'une forte contribution des états 'd' de l'atome Zr, ainsi que d'une faible contribution des états 'p' du l'atome Sn.

La quatrième région d'énergie, située entre [1,8 eV], est dominée par les états 'd' de l'atome Zr, avec de faibles contributions des états 'd' de Co et des états 'p' de Sn, pour les deux orientations de spin.

À proximité immédiate du niveau de Fermi, les électrons issus des orbitales 'd' contribuent de manière dominante à la densité d'états totale, participant ainsi à la formation des bandes de valence les plus élevées. Cette forte contribution suggère une hybridation significative entre les orbitales d des atomes de (Co) et de Zr. En revanche, au-dessus du niveau de Fermi, les orbitales 'd' anti-liantes du cobalt deviennent prépondérantes, ce qui traduit la présence d'électrons libres dans la structure CoZrSn. La densité d'états n'est pas nulle au niveau de Fermi donc le matériau est métallique. Les résultats sont conformes à ceux d'autres recherches. [5]

IV. 6. Propriétés magnétiques

Les propriétés magnétiques jouent un rôle important dans la détermination du moment magnétique, qui représente un critère de grande importance pour évaluer l'intensité relative du champ magnétique entre différents matériaux, ou pour estimer la variation du moment magnétique entre les éléments constitutifs d'un même matériau.

Le moment magnétique de spin est défini comme la différence entre le nombre total d'électrons qui occupent des orbitales avec un spin aligné avec le champ, et le nombre total d'électrons qui occupent des orbitales avec un spin opposé à la direction du champ. [8]

Le tableau (IV.4) énumère les moments magnétiques totaux et partiels. En utilisant l'approximation (GGA) le moment magnétique total est prédominé par le moment magnétique de Co et Zr et une faible contribution de Sn.

Une étude a rassemblé dans le tableau (IV.4) les valeurs des moments magnétiques totaux et locaux (en μ_B) à l'état d'équilibre pour les deux composés Co2ZrSn et CoZrSn. En utilisant l'approximation (GGA), de plus l'étude a mentionné d'autres résultats obtenus à partir de travaux antérieurs.

Composé	**μ_{tot}**		**μ_{Co}**		**μ_{Zr}**		**μ_{Sn}**	
	Ce travail	Autres calculs	Ce travail	Autres calculs	Ce travail	Autres calculs	Ce travail	Autres calculs
Co_2ZrSn	2.0071	1.81 [9]	1.0848	0.94 [10]	-0.065	-0.14 [10]	0.01138	0 [10]
CoZrSn	0.97768	0.94556 [5]	0.57607	0,66602 [5]	0.10623	0,84311 [5]	0.05128	0,03939 [5]

Tableau IV.4 : Moments magnétiques totaux et partiels calculés pour les composés Co_2ZrSn et CoZrSn en utilisant l'approximation GGA.

Les résultats du tableau (IV.4) montrent que le composé Co_2ZrSn possède un moment magnétique total de 2.0071 μ_B, et que le composé CoZrSn a un moment magnétique total de 0.997768 μ_B. Le moment magnétique total est prédominé principalement par le moment magnétique de Co et une faible contribution de Sn.

IV. 7. Conclusion

En conclusion, les études sur Co_2ZrSn et CoZrSn montrent une excellente concordance avec les données expérimentales, confirmant leurs propriétés ferromagnétiques stables. Co_2ZrSn est classé comme un demi-métal, tandis que CoZrSn est métallique, ce qui souligne l'importance significative du cobalt dans leurs applications potentielles pour les dispositifs de spintronique.

Référence

[1] B. N. Brahmi, "Etude ab-initio des propriétés structurales et électroniques des alliages ternaires des semi-conducteurs II-VI à base de zinc," Thèse de Doctorat, Département de physique, Université de Tlemcen, Tlemcen, Algérie, 2013.

[2] A. Nacer and R. Nouar Kherkhachi, "Calcul ab-initio structural et électronique de V_2CoZ (Z=Al, In)," Mémoire de Master, Université Mohamed Khider, Biskra, Algérie, 2021.

[3] F. D. Murnaghan, "Proc. Nat. Acad. Sci. USA," vol. 30, p. 244, 1944.

[4] E. Şaşıoğlu, M. Taş, S. Ghosh, W. Beida, B. Sanyal, S. Blügel, I. Mertig, and I. Galanakis, "Spin gapped metals: A novel class of materials for multifunctional spintronic devices," 2024.

[5] K. Belkhoddam et H. Guilal, "Etude des propriétés structurales, électroniques, Magnétiques, Elastiques et thermodynamiques d'un alliage semi-Heusler," Mémoire de Fin d'Etudes de Master Académique, Université Abdelhamid Ibn Badis - Mostaganem, Mostaganem, Algérie, 2021.

[6] R. Belkofsi, "Etude ab-initio des propriétés structurales, magnétiques, électroniques et thermiques des matériaux: Co_2YSn (Y=V, Zr et Ti)," Mémoire de Master, Université de M'sila, M'sila, Algérie, 2013.

[7] S. Idrissi, "Etude des propriétés structurales, électroniques et magnétiques des nouveaux alliages Heusler quaternaires : CoFeCrP, NiMnCuSb, LuCoVGe et NbRhCrAl par la méthode ab-initio et les simulations Monte Carlo," Thèse de doctorat, Université Mohammed V - Rabat, Maroc, 2019.

[8] H. Gourari, "Etude ab-inition des propriétés structurales électroniques et magnétiques des alliages quaternaires d' Heusler CoFeMnSi," Mémoire de Master, Université Ibn Khaldoun-Tiaret, Algérie, 2019.

[9] J. von Barth and L. Hedin, *J. Phys. C*, vol. 5, p. 1629, 1972.

[10] A. S. Slebarski, L. Jasienski, M. Neumann, and S. Piegmann, "Influence of vacancies on the electronic structure of $Co_{2-x}ZrSn$ Heusler alloys," *The European Physical Journal B*, vol. 12, pp. 518-523, 1999.

Conclusion générale

Conclusion générale

Dans ce travail, nous avons mené une étude théorique approfondie des propriétés structurales, électroniques et magnétiques des composés de Heusler Co_2ZrSn et CoZrSn. Ces matériaux ont été étudiés à l'aide de la méthode des ondes planes augmentées et linéarisées (FP-LAPW**)**, telle qu'implémentée dans le code **WIEN2k**, et en utilisant **l'**approximation GGA**.** Notre étude a inclus l'examen des propriétés structurales (telles que la stabilité des phases, le paramètre de maille, le module de compressibilité et l'énergie totale à l'équilibre), ainsi que l'analyse des propriétés électroniques (structure de bandes, densité d'états totale et partielle) et magnétiques (moment magnétique), le tout à température nulle (T=0 K).

L'étude des composés Co_2ZrSn et CoZrSn révèle des différences fondamentales dans leurs propriétés électroniques et magnétiques. Les valeurs de paramètre de maille (a) dans l'état d'équilibre qui étaient de 6.2930 $\AA$ pour Co_2ZrSn et de 6.1646 $\AA$ pour CoZrSn sont en bon accord avec les données expérimentales. Les deux présentent un état ferromagnétique stable, les résultats indiquant que l'état ferromagnétique est le plus stable pour les deux composés par rapport à l'état non magnétique. Cependant, leur comportement électronique diffère : Co_2ZrSn est classé comme un demi-métal, étant métallique dans la direction de spin-up et semi-conducteur dans la direction de spin-down avec une bande interdite de 0,56 eV. En revanche, CoZrSn présente un comportement métallique dans les deux directions de spin. Cette distinction se reflète également dans le moment magnétique total, qui est de 2,0071 μ_B pour Co_2ZrSn et d'environ 0,97768 μ_B pour CoZrSn. Le cobalt Co est l'élément principal responsable de la conductivité et du magnétisme dans les deux composés. Les valeurs dans l'état d'équilibre sont en bon accord avec les données expérimentales. L'importance de ces matériaux à base de cobalt réside dans leur potentiel d'intégration dans les dispositifs électroniques magnétiques intégrés, contribuant ainsi au développement de données fondamentales basées sur des calculs ab initio.

Sur la base de ces résultats, nous recommandons d'élargir les recherches futures en étudiant ces composés avec des approximations plus précises comme MBJ. Il sera également important d'approfondir l'étude des propriétés thermiques et optiques afin de mieux définir leurs domaines d'application.

Abstract

Ce travail porte sur une étude théorique prédictive des propriétés structurales, électroniques et magnétiques des composés de Heusler **Co_2ZrSn** et **CoZrSn**. La méthode de l'onde plane augmentée linéarisée (FP-LAPW), implémentée dans le code WIEN2k, a été utilisée dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) avec l'approximation du gradient généralisé (GGA). Structurellement, les résultats ont montré que les deux composés sont stables dans l'état ferromagnétique (FM). Électroniquement, les structures de bandes et les densités d'états ont révélé un caractère demi-métallique (Half-metallic) distinct pour le Co_2ZrSn, tandis que le CoZrSn présente un caractère métallique. Magnétiquement, le comportement ferromagnétique des deux composés a été confirmé, le magnétisme étant principalement attribué aux atomes de Co et de Zr.Cette étude met en évidence les propriétés uniques de ces deux composés en tant que candidats prometteurs pour les applications spintroniques et les technologies futures.

Mots-clés : Alliages de Heusler, Co_2ZrSn, CoZrSn, Théorie de la fonctionnelle de la densité, Ferromagnétique, Demi-métallique, Spintronique.

الملخص

اللغة العربية

يتناول هذا العمل دراسة نظرية تنبؤية للخصائص الهيكلية، الإلكترونية، والمغناطيسية لمركبي هيسلر **Co_2ZrSn** و **CoZrSn**تم استخدام طريقة الموجة المستوية المتزايدة خطياً (FP- LAPW) المطبقة في كود WIEN2k، وذلك في إطار نظرية الكثافة الدالية (DFT) مع تقريب التدرج العام المعمم(GGA) . أظهرت النتائج هيكليًا أن كلا المركبين مستقران في الحالة الفيرومغناطيسية (FM) .أما إلكترونيًا، كشفت هياكل النطاقات وكثافات الحالات عن طابع نصف معدني(Half-metallic) مميز لـCo_2ZrSn بينما يُظهر CoZrSn طابعًا معدنيًا. مغناطيسيًا، تأكد السلوك الفيرومغناطيسي للمركبين، وتُعزى هذه المغناطيسية بشكل أساسي لذرات Co و Zr تُبرز هذه الدراسة الخصائص الفريدة لهذين المركبين كمرشحين واعدين لتطبيقات الإلكترونيات المغزلية والتقنيات المستقبلية.

الكلمات المفتاحية :سبائك هيسلر، Co_2ZrSn، CoZrSn، نظرية الكثافة الدالية، فيرومغناطيسية، نصف معدني، إلكترونيات مغزلية.

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE MOHAMED KHIDER - BISKRA
Faculté des SE

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي
جامعة محمد خيضر بسكرة
كلية العلوم الدقيقة

Département des Sciences de la matière

قسم :علوم المادة

Fillère: Physique

تصريح شرفي

خاص بالالتزام بقواعد النزاهة العلمية لإنجاز بحث

(ملحق القرار 1082 المؤرخ في 2021/12/27)

أنا الممضي أسفله،

السيد(ة):.....جوامس مسعودة.....

تخصص:...فيزياء صواد... الصفة: طالب سنة ثانية ماستر

الحامل(ة) لبطاقة التعريف الوطنية رقم: ..211454594.. الصادرة بتاريخ:...2025/03/20

المسجل بكلية: ..العلوم الدقيقة..... قسم: ..علوم المادة.....

والمكلف بانجاز أعمال بحث : مذكرة

عنوانها: .....Etude des propriétés structurales, électroniques

.....et magnétiques d'alliages Heusler.....

أصرح بشرفي أني ألتزم بمراعاة المعايير العلمية والمنهجية ومعايير الأخلاقيات المهنية والنزاهة الأكاديمية المطلوبة في انجاز البحث المذكور أعلاه وفق ما ينص عليه القرار رقم 1082 المؤرخ في 2021/12/27المحدد للقواعد المتعلقة بالوقاية من السرقة العلمية ومكافحتها.

التاريخ: .....2025/05/25...

إمضاء المعني بالأمر