

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية  
REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي  
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE  
SCIENTIFIQUE

جامعة عمار ثلجي بالأغواط  
UNIVERSITE AMAR TELIDJI DE LAGHOUAT



كلية العلوم

Faculté des Sciences

Département: Sciences de la matière

## Mémoire de Master

**Domaine** : Sciences de la matière

**Filière** : Physique

**Option** : Physique appliquée

**Présenté par:**

HAFSI DJAOUHARE

### THEME

*Etude Ab-initio des propriétés magnétiques des  
Composés Heusler  $Rh_2TMSn$  ( $TM=Cr, Mn$  et  $Fe$ )*

Soutenu publiquement devant le jury composé de:

Mr. BOUCHENAFI Mohamed	Président
Mr. MAABED Said	Examineur
Mr. FAID Fares	Examineur
Mr. BOUROUROU Yahia	Encadreur
Mr. BOULABDA Hicheme	Co- Encadreur

Année Universitaire 2019-2020

# REMERCIEMENT

*Avant tout, je remercie ALLAH qui m'a aidé à réaliser ce travail.*

*Je remercie mon encadreur Monsieur **BOUROUROU Yahia** M.C.B à l'université de Laghouat, et Co - encadreur Monsieur **BOULABDA HOCHAME**, doctorant l'université de Laghouat pour m'avoir proposé un sujet de mémoire, ainsi que pour leur dirigé et suivi ce travail.*

*J'adresse toute ma reconnaissance à Monsieur **BOUCHENAFI Mohamed**, MCA à l'université de Laghouat, pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de ce mémoire. Je tiens à exprimer ma gratitude à Monsieur **MAABED Said**, MAB et à Monsieur **Faid Feres**, MCB à l'Université de Laghouat d'avoir acceptés d'être examinateurs de ce travail.*

*Je remercie également tous mes collègues et mes amis pour leur soutien, leur présence, et leur encouragement.*

*Je tiens à remercier tous ceux qui m'ont aidé de près ou de loin.*

## DÉDICACE

*Je dédie ce modeste travail*

*A mon père qui reste toujours à mon cœur.*

*A celle qui m'a donné la vie, le symbole de tendresse,*

*Qui s'est sacrifiée pour mon bonheur et ma réussite, à ma mère.*

*A mes frères et à mes sœurs,*

*A toute la famille,*

*A tous mes amis,*

*A tous qui m'ont aidé de près ou de loin.*

*Hafsi djaouhare*

---

# Table des matières

---

Remerciement.....	I
Dédicace.....	II
Liste des figures.....	III
Liste des tableaux.....	IV
Introduction générale.....	1

---

## Chapitre I: Magnétisme et matériaux Heusler

---

I.1. Les classes des matériaux magnétiques.....	7
I.1.1 Introduction.....	7
I.1.2 Les diamagnétiques.....	7
I.1.3 Les paramagnétiques.....	8
I.1.3 Les ferromagnétiques.....	8
I.1.4 Les antiferromagnétiques.....	9
I.1.5 Les ferrimagnétiques.....	10
I.2. Généralité sur les alliages Heusler.....	10
I.2.1. Introduction.....	10
I.2.2 Alliages Heusler.....	11
I.2.3 Structure cristalline.....	11
I.2.3.1 Les alliages full-Heusler.....	11
I.2.3.2 Les alliages Half-Heusler.....	12
I.2.3.3 Les alliages d'Heusler inverses.....	13
I.2.4 comportement magnétique des alliages Heusler.....	14
I.2.5 Matériaux Heusler demi-metalliques Ferromagnétiques.....	16
I.2.6 La règle de Slater-Pauling (SP).....	17
I.2.7 Intérêts et applications des alliages Heusler.....	18
Références.....	21

---

## Chapitre II : La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)

---

II.1 Introduction.....	24
II.2 Les approximations.....	25

---

II.2.1 Approximation de Born-Oppenheimer .....	25
II.2.2 Approximation de Hartee .....	25
I.2.3 Approximation Hartree-Fock (HF) .....	25
II.3 La théorie de la fonctionnelle de densité (DFT) .....	26
II.3.1 Introduction .....	26
I.3.2 Théorèmes de Hohenberg et Kohn:.....	26
II.3.3 Les équations de Kohn et Sham.....	27
II.3.4 La Fonctionnelle d'échange et de corrélation.....	27
II.3.5 L'approximation de la densité Locale (LDA).....	28
II.3.6 L'approximation de Gradient généralisé (GGA) .....	28
II.4 Paramètres de calcul .....	29
II.4.1 Echantillonnage de la zone de Brillouin et point k.....	29
II.4.2 L'énergie de coupure ECUT .....	29
II.5 La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW) .....	30
II.6 Le code de calcul Wien2k.....	31
II.7 Conclusion .....	32
Références .....	33

---

## Chapitre III : Résultats et discussions

---

III. 1 Introduction .....	35
III.2 Détails de calcul .....	35
III.3 Etude de convergence.....	37
III.4 Propriétés structurales .....	42
III.5 Propriétés magnétiques.....	47
III.5.1 Le moment magnétique.....	47
III.5.2 Les interactions d'échange et la température de Curie .....	48
Conclusion générale .....	51
Références .....	52

# Liste des Figures

## Chapitre I : Magnétisme et matériaux Heusler

<b>Figure I.1 :</b> Variations sous champ magnétique de l'aimantation (a) et variation thermique de la susceptibilité magnétique (b) pour une substance diamagnétique	7
<b>Figure I.2 :</b> Paramagnétisme des atomes libres	8
<b>Figure I.3 :</b> Ferromagnétisme : (a) Réseau de spins ; (b) Variation sous champ de l'aimantation ( $T_1 < T_c < T_2 < T_3$ ) ; (c) Variation thermique de $1/\chi$ ; (d) Variation thermique de l'aimantation spontanée	9
<b>Figure I.4 :</b> Antiferromagnétisme : (a) réseau de spins ; (b) Variation sous champ de l'aimantation ; (c) Variation thermique de $1/\chi$	9
<b>Figure I.5:</b> (a) Répartition des moments magnétiques élémentaires d'un ferrimagnétique formé de deux réseaux de moments magnétiques opposés, et d'amplitudes différentes. (b) Dépendance en température de $1/\chi_m$	9
<b>Figure I.6:</b> La maille conventionnelle de la phase ordonnée $L2_1$ de la structure $X_2YZ$ , le site bleu est occupé par $X=$ •, le site rouge par $Y=$ • et le site vert par $Z=$ •	12
<b>Figure I.7:</b> Structure cristalline des alliages Half-Heusler XYZ: Le site rouge est occupé par $X=$ •, le site bleu par $Y=$ • et le site vert par $Z=$ •	12
<b>Figure I.8:</b> Les différents types de structures Full Heusler, Heusler inverse. Les positions des atomes $X=$ •, $Y=$ • et $Z=$ • sont en coordonnées Wyckoff	14
<b>Figure I.9 :</b> Schéma représentatif de bandes d'énergies des matériaux en spins polarisés.	17
<b>Figure I.10 :</b> La courbe de Slater-Pauling pour certains alliages Heusler et les métaux de transition $3d$ / leurs alliages	18
<b>Figure I.11 :</b> schéma d'une MRAM	19

## Chapitre II : La théorie de la fonctionnelle de La densité (DFT)

<b>Figure II.1 :</b> potentiel « Muffin-Tin »	30
---	----

## Chapitre III : Résultats et discussions

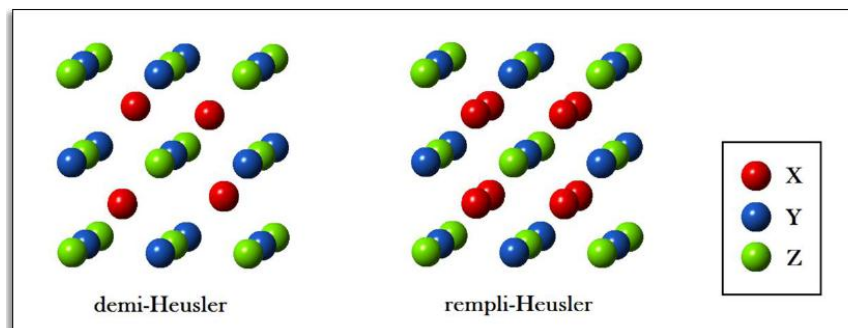
<b>Figure III.1 :</b> Ordre ferromagnétique dans un alliage full Heusler	36
<b>Figure III.2 :</b> Ordre Antiferromagnétique dans un alliage full Heusler (a) AFM de type I (b) AFM de type II	37
<b>Figure III. 3 :</b> Test de convergence de calcul de l'énergie totale en fonction Le paramètre de coupure $RK_{max}$ spéciaux sélectionnés dans la première zone irréductible de Brillouin	39
<b>Figure III. 4:</b> Convergence de l'énergie totale en fonction de $k$ -points du $Rh_2MnSn$ dans la phase ferromagnétique (FM). Antiferromagnétique-I (AFM-I) et Antiferromagnétique-II (AFM-II).	41
<b>Figure III.5</b> Les énergies totales en fonction des volumes dans les trois phases (FM, AFM-I et AFM-II) pour $Rh_2CrSn$ en utilisant les deux approches GGA et GGA + U	41
<b>Figure III.6</b> Les énergies totales en fonction des volumes dans les trois phases (FM, AFM-I et AFM-II) pour $Rh_2MnSn$ en utilisant les deux approches GGA et GGA + U	44
<b>Figure III.7</b> Les énergies totales en fonction des volumes dans les trois phases (FM, AFM-I et AFM-II) pour $Rh_2MnSn$ en utilisant les deux approches GGA et GGA + U	44
<b>Figure III.6 :</b> couplage premier proche voisin ( $J_1$ ) et second proche voisin ( $J_2$ ).	48

# Liste des Tableaux

<b>Chapitre I : Magnétisme et matériaux Heusler</b>	
<b>Tableau I.1 :</b> Les principales combinaisons des alliages Heusler de formule XYZ ou X <sub>2</sub> YZ	<b>11</b>
<b>Tableau I.2 :</b> Nombre, nature et distance des premiers voisins de chaque type d'atomes dans un alliage full-Heusler X <sub>2</sub> YZ de structure L2 <sub>1</sub> , a <sub>0</sub> est le paramètre de maille de l'alliage	<b>12</b>
<b>Tableau I.3 :</b> Les sites atomiques des combinées inéquivalentes des alliages demi-Heusler	<b>13</b>
<b>Tableau I.4:</b> Composition, magnetic order and crystal structure of Heusler alloys the experimental information is taken from the reference	<b>15</b>
<b>Chapitre III : Résultats et discussions</b>	
<b>Tableau III.1 :</b> RMT des différents sites atomiques donnés en unité du rayon de Bohr	<b>36</b>
<b>Tableau III. 2 :</b> de l'énergie totale en fonction de l'énergie cinétique de coupure ( $R^*K_{max}$ ) du Rh <sub>2</sub> MnSn dans la phase FM	<b>38</b>
<b>Tableau III. 3 :</b> Convergence de l'énergie totale en fonction de l'énergie cinétique de coupure ( $R^*K_{max}$ ) du Rh <sub>2</sub> MnSn dans la phase AFM-I	<b>38</b>
<b>Tableau III. 4 :</b> Convergence de l'énergie totale en fonction de l'énergie cinétique de coupure ( $R^*K_{max}$ ) du Rh <sub>2</sub> MnSn dans la phase AFM-II	<b>38</b>
<b>Tableau III.5 :</b> Convergence de l'énergie totale en fonction de <i>k-points</i> du Rh <sub>2</sub> MnSn dans la phase ferromagnétique	<b>40</b>
<b>Tableau III .6 :</b> Convergence de l'énergie totale en fonction de <i>k-points</i> du Rh <sub>2</sub> MnSn dans la phase Antiferromagnétique-I (AFM-I)	<b>40</b>
<b>Tableau III .7 :</b> Convergence de l'énergie totale en fonction de <i>k-points</i> du Rh <sub>2</sub> MnSn dans la phase Antiferromagnétique-II (AFM-II)	<b>40</b>
<b>Tableau III.8 :</b> Paramètre du réseau a <sub>0</sub> , module de compressibilité B, sa dérivée B' et l'énergie totale E pour les matériaux étudiés	<b>42</b>
<b>Tableau III.9 :</b> Energie de cohésion de nos composés Rh <sub>2</sub> TMSn (TM=Cr, Mn, Fe) calculées par GGA dans la phase FM	<b>45</b>
<b>Tableau III.10:</b> Le Moments magnétiques en ( $\mu_B$ ) de Rh <sub>2</sub> TMSn (TM=Cr, Mn et Fe) obtenus par GGA et GGA+U comparer avec d'autre résultat	<b>47</b>
<b>Tableau III.11 :</b> Interactions d'échange $J_1$ et $J_2$ et température Curie pour Rh <sub>2</sub> CrSn et Rh <sub>2</sub> MnSn et de Néel pour Rh <sub>2</sub> FeSn calculé par GGA+U	<b>49</b>

## Introduction générale

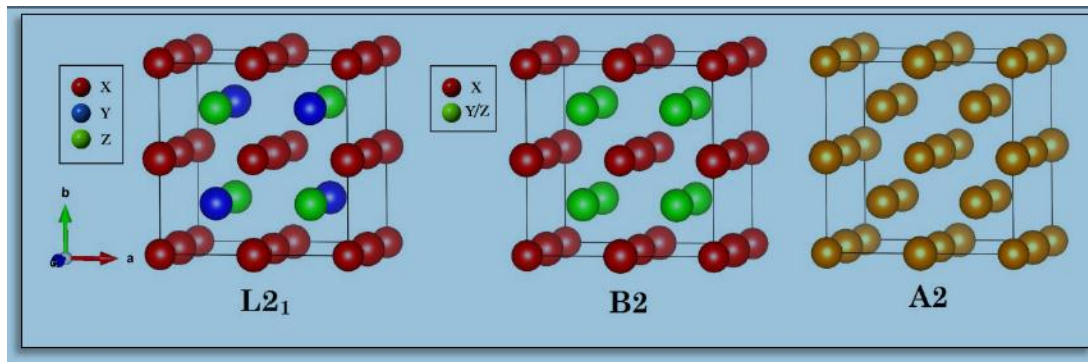
Le sujet de notre étude consiste à étudier l'une des catégories des matériaux magnétiques les plus intéressants remonte à l'année 1903, lorsque Fritz Heusler [1-3] a découvert qu'un alliage de composition  $Cu_2MnAl$  se comporte comme un matériau ferromagnétique, bien qu'aucun de ses éléments constitutifs est magnétique. Il a fallu attendre jusqu'en 1963 pour comprendre que c'est le Mn qui contribue au moment magnétique de spin dans ces alliages [4] sachant que ce dernier est lui-même de type Antiferromagnétique. Ceci a été expliqué par le mécanisme de double échange entre les éléments magnétiques voisins. Ainsi les propriétés magnétiques des alliages Heusler sont fortement dépendantes de la structure cristalline car c'est l'arrangement des atomes entre eux qui donne lieu au Ferromagnétisme. Le composé  $Cu_2MnAl$  et d'autre de même famille sont maintenant appelés composés Heusler. Le terme Heusler est attribué à un groupe de composés constitue de demi-Heusler (avec une formule générale XYZ) et Heusler complet ( $X_2YZ$ ) où X et Y sont des métaux de transition et Z est un élément des groupes III ou V (Figure 1).



**Figure.1** : Structure cristalline de demi-Heusler et de rempli-Heusler.

Une nouvelle classification a vu le jour, se fait en fonction de l'ordre des atomes au sein de la maille cristalline. Ainsi les atomes peuvent s'arranger sous trois phases cristallographiques différentes. La phase  $L2_1$  où tous les atomes sont parfaitement arrangés. La phase  $B_2$  où les sites correspondants aux atomes Y et Z sont occupés de façon aléatoire par ces deux atomes. La phase  $A_2$  où tous les sites atomiques sont occupés de façon aléatoire par les trois types d'atomes. Les trois phases sont représentées sur la Figure 2. Cette dernière classification est importante par ce que les composés

Heusler complets, de formule chimique  $X_2YZ$ , où X, Y sont un métal de transition et Z est un élément du groupe p, sont principalement ferromagnétiques, mais ils peuvent être transformés de l'état FM à l'état AFM en modifiant la composition atomique. Par exemple, dans le cas de l'alliage  $Ni_2MnAl$  ou les atomes de Mn sont placés dans la structure ordonnées  $L2_1$ , si les atomes de Mn sont également placés sur les sites Al, ces atomes de Mn interagissent de manière antiferromagnétique avec les atomes de Mn du voisin le plus proche (NN) sur les sites d'origine et le matériau devient un anti-ferromagnétique dans la structure désordonné B2 [5], qui est appelé antiferromagnétisme induit par la structure [6]. Expérimentalement, et dans ce cas particulier de l'alliage  $Ni_2MnAl$ , où un degré élevé de désordre chimique peut être atteint par un traitement thermique approprié.



**Figure.2 :** La structure Heusler ordonnée  $L2_1$ , et les structures Heusler désordonnées B2 et A2 respectivement

De nombreuses applications sont à prévoir de la part de Heusler composés. L'une des caractéristiques qui mérite d'être mentionné est la capacité de certains alliages Heusler à modifier leur forme avec un champ appliqué. Sous l'effet d'un champ magnétique, la maille cristalline se déforme et lorsque le champ est enlevé, l'alliage reprend sa forme initiale. Cette caractéristique, appelée mémoire à forme magnétique [7], a été beaucoup étudiée dans l'alliage  $Ni_2MnGa$  qui peut atteindre jusqu'à 9% de déformation sous des champ relativement faibles. Cette déformation entière de l'élément conduit à un changement de la résistance électrique. En 2010, Trudel et al. [8] ont résumé un article compilant la plupart des travaux concernant les alliages Full-Heusler à base de Co. Une autre propriété

impressionnante est la propriété semi-métallique où on trouve un gap d'énergie au niveau de Fermi, le caractère isolant est présenté dans une sous-bande de spin, et le caractère métallique dans l'autre, conduisant à une polarisation de spin de 100%. Une autre caractéristique importante de ces alliages est leur température de Curie élevée, notamment dans les alliages Full-Heuslers.

Ces composés ont été largement étudiés expérimentalement et théoriquement au cours de ces dernières années. La plupart de ces travaux ont été concentrés sur les composés Heusler à base de Cobalt (Co), tandis que les composés à base des métaux de transition 4d sont moins étudiés. En fait, en 1976, James C. Suits [9], a étudié les propriétés structurales de  $Rh_2MnZ$  ( $Z = Al, Ga, In, Tl, Sn, Pb$  et  $Sb$ ) par les rayons X et l'analyse magnétique et il a constaté que  $Rh_2MnSn$  cristallise dans la structure  $L2_1$ , il présente un comportement ferromagnétique avec une température de Curie supérieures à la température ambiante et présentent de grand moment magnétique à basse température. M. Pugacheva et A. Jeziński (1995) [10] ont étudié la structure électronique et le moment magnétique de trois alliages Heusler,  $Rh_2MnX$  avec ( $X = Ge, Sn$  et  $Pb$ ) à l'aide de la méthode linéaire des orbitales de muffin tin (LMTO). Les résultats montrent que le moment magnétique total augmente avec l'augmentation du nombre atomique X. Dans les densités d'états (DOS), il existe un gap d'énergie entre les états  $s$  de l'atome X et les états  $p$  et  $d$  de Rh et Mn. Pour l'alliage  $Rh_2(MnX)$  désordonné, le calcul montre que la distribution des atomes dans la cellule influence la structure électronique ainsi que les moments magnétiques. Saadi Berri et al.(2013) [11] ont effectué des calculs de premier principe des propriétés structurales, électroniques, magnétiques et thermiques des alliages  $Rh_2MnAl$ ,  $Rh_2MnGe$  et  $Rh_2MnSn$  Heusler, en utilisant la méthode des ondes planes augmentées et linéarisées (FP-LAPW) avec les deux approches GGA-WC et du GGA + U. La structure électronique, les propriétés magnétiques et thermiques des alliages Heusler  $Rh_2MnZ$  ( $Z=Ge, Sn, Pb$ ) sous pression, ont été investigués par la méthode (FP-LAPW), F.Z.Benkhefifa et al. (2014) [12]. Les propriétés électroniques des composés Heusler complets  $Rh_2TMSn$  ( $TM = Cr, Mn, Fe, Co, Ni$  et  $Cu$ ) ont été calculées par la méthode Full potentiel implémenté dans le code FPLO avec l'approximation de la densité locale [13]. Les résultats des calculs basés sur la théorie fonctionnelle de la densité montrent que la structure

cubique de tous les composés sauf  $\text{Rh}_2\text{CuSn}$  est instable et les distorsions tétraogonales peuvent réduire considérablement l'énergie de l'état fondamental. L'instabilité structurale s'explique essentiellement par l'effet Jahn–Teller, Wenxu Zhang et al. (2015) [13]. Aguilera-Granja et al. (2019) [14], ont fait une étude systématique des propriétés structural, électronique, et magnétiques des Heusler  $\text{X}_2\text{MnZ}$  avec  $\text{X} = \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}, \text{Cu}, \text{Ru}, \text{Rh}, \text{Pd}, \text{Ag}, \text{Pt}, \text{Au}$  et  $\text{Z} = \text{Al}, \text{Si}, \text{Ga}, \text{Ge}, \text{In}$  et  $\text{Sn}$ , et par la méthode Pseudo-potential implémenté dans le code SIESTA.

Le but de ce travail est de voir l'effet de la corrélation électronique sur les propriétés structural et magnétiques des composés Heusler complet  $\text{Rh}_2\text{TMSn}$  ( $\text{TM} = \text{Cr}, \text{Mn}$  and  $\text{Fe}$ ), par la méthode des ondes planes augmentées et linéarisées (FP-LAPW) avec les deux approches GGA et GGA + U. la GGA + U est utilisé pour inclure explicitement l'interaction de Coulomb entre les électrons  $d$  fortement localisés dans le cadre de modèle d'Hubbard, tandis que les interactions entre les électrons  $s$  et  $p$  les moins localisés sont traitées dans l'approximation du gradient généralisé GGA.

Notre manuscrit est organisé comme suit dans le premier chapitre, nous effectués une recherche bibliographique succincte sur le magnétisme et les alliages Heuler. Dans le deuxième chapitre, nous rappelons les principes fondamentaux de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) et la méthode FP-LAPW. Dans le troisième chapitre, nous présenterons les propriétés structurales et magnétiques et l'effet de la corrélation électronique sur ces matériaux étudiés. Nous finirons par une conclusion générale.

## Références

- [1] F. Heusler, *Angewandte Chemie*, 17 (1904) 260-264.
- [2] A. Knowlton, O. Clifford, *Transactions of the Faraday Society*, 8 (1912) 195-206.
- [3] R. De Groot, F. Mueller, P. Van Engen, K. Buschow, *Physical Review Letters*, 50 (1983) 2024.
- [4] G. Felcher, J. Cable, M. Wilkinson, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 24 (1963) 1663-1665.
- [5] M. Acet, E. Duman, E.F. Wassermann, L. Manosa, A. Planes, *Journal of Applied Physics*, 92 (2002) 3867-3871.
- [6] I. Galanakis, E. Şaşıoğlu, *Applied Physics Letters*, 98 (2011) 102514.
- [7] C.G.F. Blum, S. Ouardi, G.H. Fecher, B. Balke, X. Kozina, G. Stryganyuk, S. Ueda, K. Kobayashi, C. Felser, S. Wurmehl, B. Büchner, *Applied Physics Letters*, 98 (2011) 252501.
- [8] S. Trudel, O. Gaier, J. Hamrle, B. Hillebrands, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 43 (2010) 193001.
- [9] J.C. Suits, *Physical Review B*, 14 (1976) 4131.
- [10] M. Pugacheva, A. Jezierski, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 151 (1995) 202-206.
- [11] S. Berri, D. Maouche, M. Ibrir, F. Zerarga, L. Louail, Y. Medkour, *Physica B: Condensed Matter*, 418 (2013) 58-64.
- [12] F. Benkhelifa, A. Lekhal, S. Méçabih, B. Abbar, B. Bouhafs, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 371 (2014) 130-134.
- [13] W. Zhang, T. Yu, Z. Huang, W. Zhang, *Journal of Alloys and Compounds*, 618 (2015) 78-83.
- [14] F. Aguilera-Granja, R. Aguilera-del-Toro, J. Morán-López, *Materials Research Express*, 6 (2019) 106118.

# *Chapitre I*

*Magnétisme et matériaux*

*Heusler*

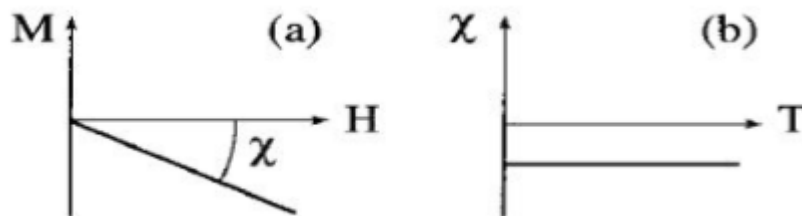
## I.1. Les classes des matériaux magnétiques

### I.1.1 Introduction

A l'état libre, nous disant qu'un atome est magnétique s'il a un moment magnétique permanent représenté par un vecteur de module constante. Toute substance matérielle est fournie d'un ensemble d'atomes qui peuvent être soit magnétique, soit non magnétique. Dans le cas où les atomes sont magnétiques, la direction par fois du module de moment magnétique peuvent dépendre de l'environnement particulier de chaque atome (nature et position des atomes voisins, température, champs magnétique appliquée). Nous présentons dans ce chapitre, les principaux comportements magnétiques des matériaux.

### I.1.2 Les diamagnétiques

Le diamagnétisme caractérise les substances qui ne comportent que des atomes non magnétiques leur aimantation, induite par le champ, est très faible et opposée à ce dernier. La susceptibilité est pratiquement indépendante du champ et de la température, est négative (c'est-à-dire que l'intensité de l'aimantation  $M$  induite dans le corps, par un champ  $H$ , sera dans la direction opposée  $\mathbf{M} = -\chi \mathbf{H}$ ; où  $\chi$  est la susceptibilité magnétique) et habituellement de l'ordre de  $-10^{-5}$  (figure I.1). Ce magnétisme trouve son origine dans la modification du mouvement orbital des électrons sous l'effet du champ appliquée. Selon la loi de Lenz, les courants induits donnent naissance à un flux d'induction opposé à la variation du champ appliquée. Un très fort diamagnétisme existe enfin dans les substances supraconductrices, avec une susceptibilité égale à  $-1$ .



**Figure I.1** (a) Variations sous champ magnétique de l'aimantation et (b) variation thermique de la susceptibilité magnétique pour une substance diamagnétique.

### I.1.3 Les paramagnétiques

Si les interactions entre les moments magnétiques sont faibles, comparées à l'agitation thermique, les interactions deviennent négligeables. En absence d'un champ magnétique, les moments peuvent s'orienter dans n'importe quelle direction. Sous l'effet d'un champ magnétique extérieur, les moments magnétiques tendent à s'orienter suivant ce champ. L'aimantation est proportionnelle à l'excitation  $H$  appliquée :  $\mathbf{M} = \chi \mathbf{H}$  ; ou  $\chi$  est la susceptibilité magnétique. Le paramagnétisme est sensible à la température. La susceptibilité initiale est positive et devient infinie au zéro absolu. Elle décroît lorsque la température augmente [1].

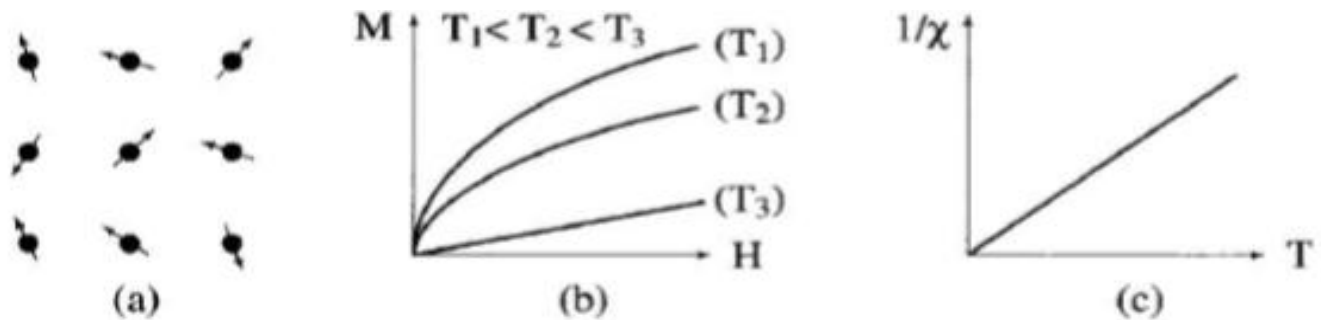
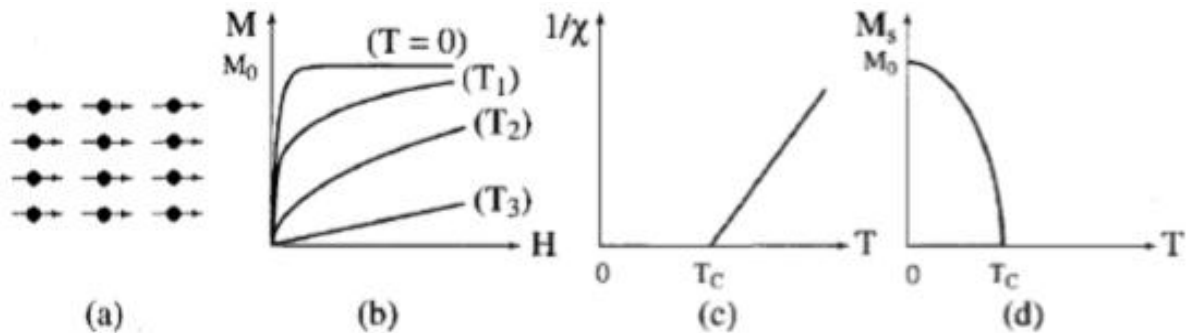


Figure I.2 Paramagnétisme des atomes libres

### I.1.3 Les ferromagnétiques

L'existence d'une aimantation spontanée même en l'absence de champ magnétique appliqué indique qu'il y a des interactions entre porteurs élémentaires qui tendent à s'aligner parallèlement entre eux. Tout se passe comme si elles équivalaient à un champ magnétique actif, appelé champ moléculaire, proportionnel à l'aimantation qui vient s'ajouter au champ appliquée c'est ce qu'on appelle le ferromagnétisme. Les propriétés des corps ferromagnétiques dépendent beaucoup de la température. Généralement, l'aimantation à saturation prend à  $T=0$  K une valeur maximale, correspondant au parallélisme des moments élémentaires, décroît régulièrement à mesure que la température s'élève et s'annule à une certaine température appelée la température de Curie [1, 2]. En dessous de cette température, les interactions magnétiques dominant l'agitation thermique et une aimantation spontanée ( $M_s$ ) apparaît en l'absence de champ appliqué, aimantation qui atteint à température nulle sa valeur maximale,  $M_0$  correspondant au

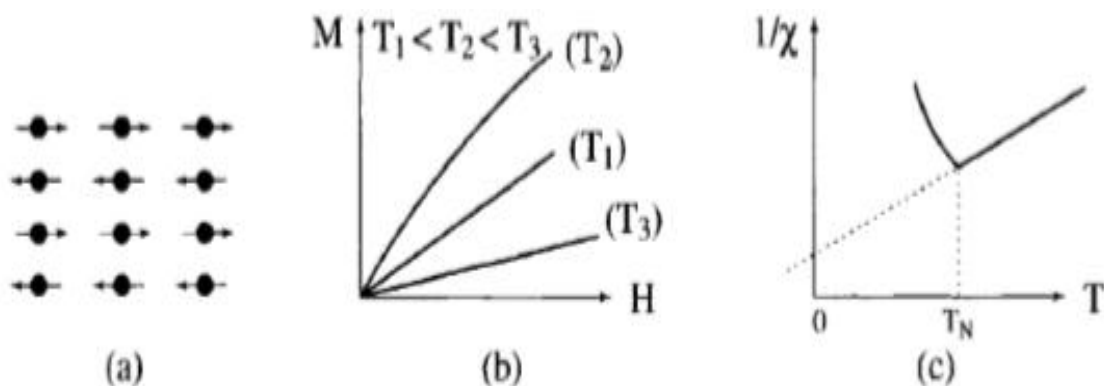
parallélisme de tous les moments individuels. La susceptibilité magnétique d'un matériau ferromagnétique est très élevée.



**Figure I.3** Ferromagnétisme : (a) Réseau de spins ; (b) Variation sous champ de l'aimantation ( $T_1 < T_c < T_2 < T_3$ ) ; (c) Variation thermique de  $1/\chi$  ; (d) Variation thermique de l'aimantation spontanée

### I.1.4 Les antiferromagnétiques

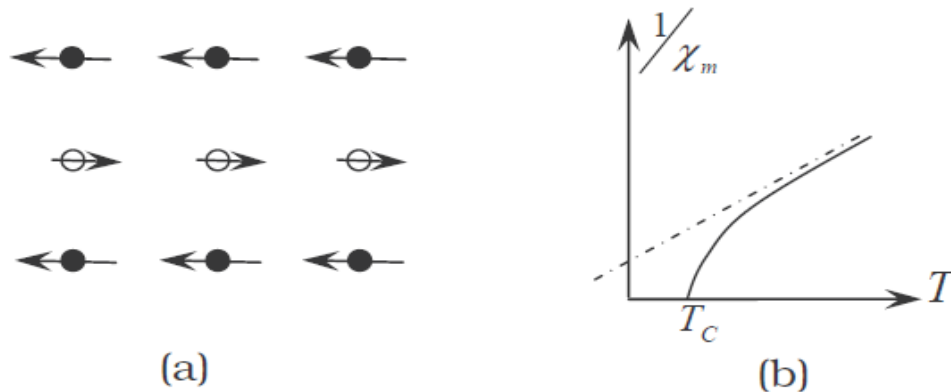
Dans un corps antiferromagnétique, l'état de plus basse énergie correspond à un alignement antiparallèle des moments magnétiques. Il en résulte un regroupement des moments en deux sous réseaux d'aimantation égale et opposée de sorte qu'en absence de champ l'aimantation totale est nulle [3]. La variation thermique de la susceptibilité magnétique présente un maximum correspondant à une certaine température, analogue à la température de Curie pour les ferromagnétiques, appelée la température de Néel  $T_N$ . Au-dessus de cette température, un matériau antiferromagnétique devient paramagnétique [4]



**Figure I.4** Antiferromagnétisme : (a) réseau de spins ; (b) Variation sous champ de l'aimantation ; (c) Variation thermique de  $1/\chi$ .

### I.1.5 Les ferrimagnétiques

Le ferrimagnétisme est une propriété magnétique de certains corps solides. Dans un matériau ferrimagnétique, les moments magnétiques sont antiparallèles mais d'amplitude différente (figurer I.5). Il en résulte une aimantation spontanée du matériau. Il se distingue donc à la fois de l'antiferromagnétisme, pour lequel le moment magnétique résultant est nul et du ferromagnétisme pour lequel l'aimantation spontanée résulte au niveau microscopique d'un arrangement parallèle des moments magnétiques. Le nom de cette propriété est tiré de celle des ferrites. Les ferrites comme la magnétite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) et  $\text{NiO}/\text{Fe}_2\text{O}_3$  [5] sont des exemples de matériaux Ferrimagnétiques.



**Figure I.5:** (a) Répartition des moments magnétiques élémentaires d'un ferrimagnétique formé de deux réseaux de moments magnétiques opposés, et d'amplitudes différentes. (b) Dépendance en température de  $1/\chi_m$

## I.2. Généralité sur les alliages Heusler

### I.2.1. Introduction

Depuis la découverte de la demi-métallicité ferromagnétique des alliages Heusler, ces derniers sont devenus un domaine d'intérêt de la recherche pour les applications de l'électronique de spin [6]. Le terme alliages Heusler est attribué à un groupe de composés qui contient à peu près de 3000 composés identifiés. Ces composés remarquables ont été découverts la première fois par Fritz Heusler en 1903 tandis qu'il travaillait sur le ferromagnétisme de l'alliage  $\text{Cu}_2\text{MnAl}$  [7]. Grâce à un large éventail de propriétés, ces composés peuvent avoir le comportement de métaux, de demi-métaux, de semi-conducteurs, de

supraconducteurs et bien d'autres. Les alliages Heusler ferromagnétiques demi-métallique ont de comportement des semi-conducteurs selon une orientation du spin, alors qu'ils sont métalliques pour l'orientation opposée du spin. Les alliages Heusler ont continuellement attiré l'intérêt en raison de leurs températures de Curie élevées [8].

Dans ce chapitre, nous prévoyons de donner une description générale des règles de base connues à propos des alliages Heusler et nous fournirons un aperçu général de cette classe des matériaux, leur structure cristalline, les relations qui existent entre leurs propriétés et quelques une de leurs applications envisagées.

### I.2.2 Alliages Heusler

Il existe deux groupes: les alliages dit demi-Heusler de formule chimique XYZ et ceux dit full-Heusler de formule  $X_2YZ$  où, dans les deux cas X et Y sont des métaux de transition et Z est un élément du groupe III, IV ou V dans le tableau périodique. Les principales combinaisons des alliages Heusler sont présentées dans le Tableau I.1

H 2.20																	He	
Li 0.98	Be 1.57											B 2.04	C 2.55	N 3.04	O 3.44	F 3.98	Ne	
Na 0.93	Mg 1.31											Al 1.61	Si 1.90	P 2.19	S 2.58	Cl 3.16	Ar	
K 0.82	Ca 1.00	Sc 1.36	Ti 1.54	V 1.63	Cr 1.66	Mn 1.55	Fe 1.83	Co 1.88	Ni 1.91	Cu 1.90	Zn 1.65	Ga 1.81	Ge 2.03	As 2.18	Se 2.55	Br 2.96	Kr 3.00	
Rb 0.82	Sr 0.95	Y 1.22	Zr 1.33	Nb 1.60	Mo 2.16	Tc 1.90	Ru 2.20	Rh 2.28	Pd 2.20	Ag 1.93	Cd 1.69	In 1.78	Sn 1.96	Sb 2.05	Te 2.10	I 2.66	Xe 2.60	
Cs 0.79	Ba 0.89	Hf 1.30	Ta 1.50	W 1.70	Re 1.90	Os 2.20	Ir 2.20	Pt 2.20	Au 2.40	Hg 1.90	Tl 1.80	Pb 1.90	Bi 1.90	Po 2.00	At 2.20	Rn		
Fr 0.70	Ra 0.90																	
		La 1.10	Ce 1.12	Pr 1.13	Nd 1.14	Pm 1.13	Sm 1.17	Eu 1.20	Gd 1.20	Tb 1.10	Dy 1.22	Ho 1.23	Er 1.24	Tm 1.25	Yb 1.10	Lu 1.27		
		Ac 1.10	Th 1.30	Pa 1.50	U 1.70	Np 1.30	Pu 1.28	Am 1.13	Cm 1.28	Bk 1.30	Cf 1.30	Es 1.30	Fm 1.30	Md 1.30	No 1.30	Lr 1.30		

Tableau I.1 Les principales combinaisons des alliages Heusler de formule XYZ ou  $X_2YZ$

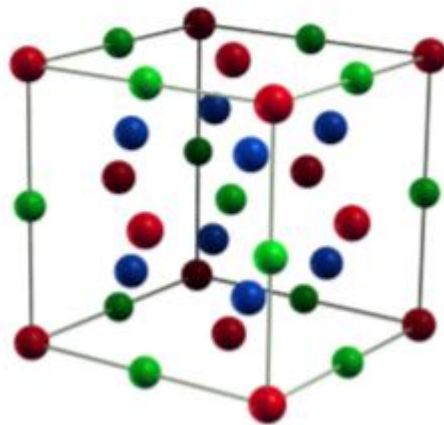
### I.2.3 Structure cristalline

#### I.2.3.1 Les alliages full-Heusler

Les alliages full-Heusler sont caractérisés par la formule chimique  $X_2YZ$  et la maille conventionnelle cubique de leur phase ordonnée  $L2_1$  est représentée sur la figure I.6. Le prototype de cette structure régulière est  $Cu_2MnAl$  [7, 9]. Dans cette phase cubique parfaitement ordonnée de groupe d'espace  $Fm\bar{3}m$  (N° 225), les atomes X, Y et Z occupent respectivement les positions 8c ( $1/4, 1/4, 1/4$ ), 4a ( $0, 0, 0$ ) et 4b ( $1/2, 1/2, 1/2$ ). Chaque atome est situé dans un environnement cubique. Les atomes X sont entourés, en premiers voisins, par 4 atomes Y et 4 atomes Z, alors que les espèces chimiques Y et Z sont chacune entourées par 8 atomes X. Toutes ces informations sont présentées dans le tableau I.2

atome	1 <sup>er</sup> voisins	$d/a_0$	2 <sup>nd</sup> voisins	$d/a_0$	3 <sup>e</sup> voisins	$d/a_0$
X	4Y et 4Z	0.433	6X	0.5	12X	0.707
Y	8X	0.433	6Z	0.5	12Y	0.707
Z	8X	0.433	6Y	0.5	12Z	0.707

**Tableau I.2** Nombre, nature et distance des premiers voisins de chaque type d'atomes dans un alliage full-Heusler  $X_2YZ$  de structure  $L2_1$ ;  $a_0$  est le paramètre de maille de l'alliage.



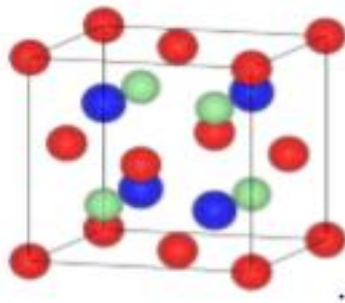
**Figure I.6** La maille conventionnelle de la phase ordonnée  $L2_1$  de la structure  $X_2YZ$ , le site bleu est occupé par X= •, le site rouge par Y= • et le site vert par Z= •.

### 1.2.3.2 Les alliages Half-Heusler

Les Half-Heusler cristallisent dans une structure cubique de groupe spatial ( $N^{\circ}216, F\bar{4}3m, C1_b$ ) [10] qui peut être dérivée de la structure tétraédrique de type ZnS par un remplissage des sites octaédriques du réseau. Ce type de structure demi-Heusler peut être caractériser par l'interpénétration de trois sous-réseaux cubique à faces centrées (cfc), dont chacun est occupé par les atomes X, Y et Z et les positions occupées sont 4a (0,0, 0), 4b (1/2,1/2,1/2), et 4c (1/4,1/4,1/4) [11, 12]. En principe, trois arrangements atomiques non équivalents sont possibles dans ce type de structure. Dans la structure Half-Heusler différents types de désordre atomique sont possibles. Voici le tableau qui résume les trois combinées inéquivalentes possible de ce type de matériaux (voir tableau 3).

**Tableau I.3** Les sites atomiques des combinées inéquivalentes des alliages demi-Heusler.

Eléments	X	Y	Z
Type I	4a (0, 0, 0)	4b (1/2,1/2,1/2)	4c (1/4,1/4,1/4)
Type II	4b (1/2,1/2,1/2)	4c (1/4,1/4,1/4)	4a (0, 0 ,0)
Type III	4c (1/4,1/4,1/4)	4a (0, 0, 0)	4b (1/2,1/2,1/2)

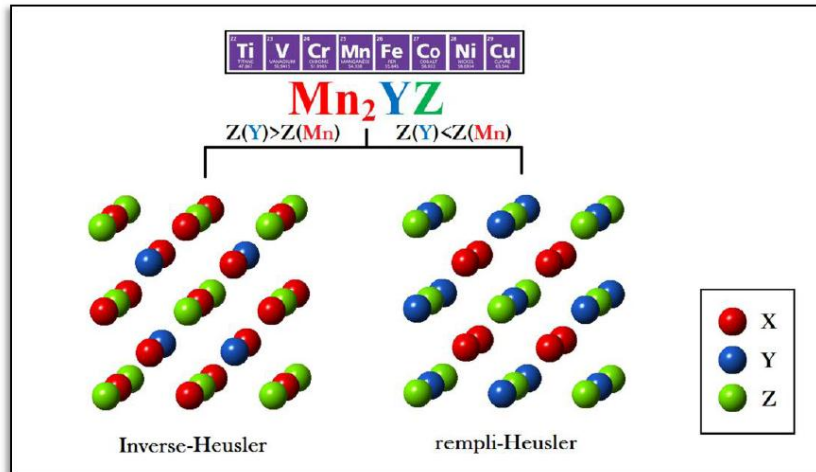


**Figure I.7:** Structure cristalline des alliages Half-Heusler XYZ: Le site rouge est occupé par X= •, le site bleu par Y= • et le site vert par Z= •.

### 1.2.3.3 Les alliages d'Heusler inverses

Les alliages rempli-Heusler sont basés sur un critère de stabilité des positions atomiques occupés par les éléments X et Y. Si le numéro atomique de Y est plus élevé que celui de X c'est-à-dire  $Z(Y) > Z(Mn)$  de la même période une autre structure dit *structure Heusler inverse est observée*. Cette structure présente le prototype  $Hg_2CuTi$  (groupe d'espace  $F\bar{3}m$ ,  $N^{\circ}216$ ) et encore décrite par quatre sous-réseaux cfc qui s'interpénètrent. Cette structure d'Heusler inverse est souvent observée pour les matériaux à base de  $Mn_2$

avec  $Z(Y) > Z(Mn)$  comme illustré dans la figure I.8. le X occupe  $4b (1/2, 1/2, 1/2)$  et  $(3/4, 3/4, 3/4)$  et les atomes Y et Z sont situés à  $4c (1/4, 1/4, 1/4)$  et  $4a (0, 0, 0)$  respectivement [13]. Un exemple qui a été bien étudié est le  $Mn_2CoSn$  [14, 15].



**Figure I.8:** Les différents types de structures Full Heusler ,Heusler inverse. Les positions des atomes  $X = \bullet$ ,  $Y = \bullet$  et  $Z = \bullet$  sont en coordonnées Wyckoff.

#### I.2.4 comportement magnétique des alliages Heusler

Les alliages Heusler possèdent des propriétés magnétiques très intéressantes. On peut étudier dans la même famille d'alliages une série de divers phénomènes magnétiques intéressants comme le magnétisme itinérants et localisés [16-18] et plusieurs types de magnétisme, tel que : le ferrimagnétisme, le ferromagnétisme et l'antiferromagnétisme.

La majorité des alliages Heusler ont un ordre ferromagnétique. Si le moment magnétique est porté par des atomes de Mn, comme c'est souvent le cas dans les alliages  $X_2MnZ$ , une valeur proche de  $4\mu_B$  est généralement observée. Bien qu'ils soient des métaux, ces composés ont des propriétés magnétiques localisées et sont des systèmes modèles idéaux pour étudier les effets du désordre atomique et les changements de concentration des électrons de valence sur les propriétés magnétiques. Afin de révéler le rôle des atomes  $3d$  (X) et  $sp$  (Z) sur les propriétés magnétiques des alliages Heusler, nombreuses mesures

magnétiques ont été effectuées sur des alliages Heusler [18]. Il a été démontré que la concentration des électrons *sp* est principalement importante dans l'établissement des propriétés magnétiques, influençant à la fois la formation du moment magnétique et le type d'ordre magnétique.

**Tableau I.4:** composition, ordre magnétique et structure cristalline des alliages Heusler [18]

Y	X	Z	Ordre Magnétique	Structure cristalline
V	Mn	Al, Ga	FM*	L21
	Fe	Al, Ga	FM	L21
	Fe	Si	FM	L21
	Co	Al, Ga, Sn	FM	L21
Cr	Co	Al, Ga	FM	L21
	Fe	Al, Ga	FM	L21
Mn	Cu	Al, In, Sn	FM	L21
	Cu	Sb	AFM	C1b
	Ni	Al	AFM	B2
	Ni	Sb	FM	C1b
	Ni	Al, Ga, In, Sn, Sb	FM	L21
	Co	Al, Si, Ga, Ge, Sn	FM	L21
	Co	Sb	FM*	C1b
	Fe	Al, Si	FM	L21
	bd	Al	AFM	B2
	bd	In	AFM	L2-B2
	bd	Ge, Sn, Sb	FM	L21
	bd	Sb	FM	C1b
	bd	Te	AFM	C1b
	Rh	Al, Ga, In	FM	B2
	Rh	Ge, Sn, Pd	FM	L21
	Rh	Sb	FM	C1b
	Ru	Ga	FM	C1b
	Au	Zn, Cu	AFM	B2
	Au	Al, Ga, In	AFM	L21
	Au	Sb	FM	C1b
bt	Al, Ga	AFM	L21	
bt	Ga	FM	C1b	
Ir	Al	AFM	L21	
Ir	Ga	AFM	C1	
Fe	Fe	Al, Si	FM	D03
	Cu	Al, Si, Ga	FM	L21
Co	Fe	Ga	FM	L21
Ni	Fe	Al, Ga	FM	L21

FM\*: Ferrimagnetic

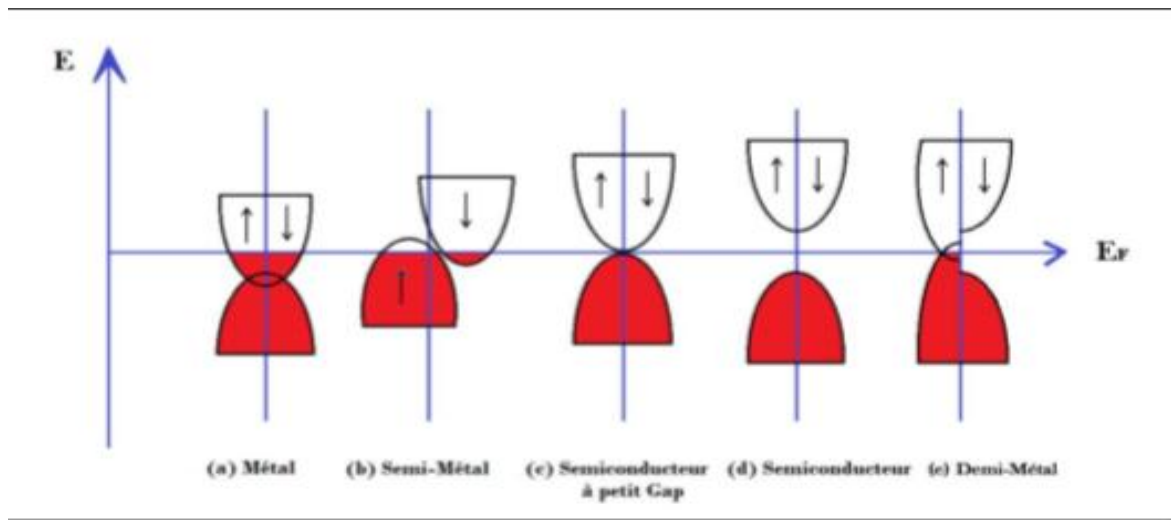
Certains d'alliages Heusler sont antiferromagnétiques, en particulier les composés contenant un élément 3d dans lesquels le moment est uniquement porté par les atomes de Mn au site Y. L'ordre antiferromagnétique expérimentalement est mesuré à la fois en semi-Heusler (structure  $C1_b$ ) et en alliages complets Heusler (structure  $L2_1$  et B2). L'antiferromagnétisme est plus favorable dans les alliages complets Heusler qui ont une structure cristalline de type B2 due à des courtes distances interatomiques entre Mn-Mn atomes. En effet, le comportement antiferromagnétique de plusieurs alliages Heusler désordonnés de type B2  $X_2MnZ$  ( $X = Ni, Pd$ ;  $Z = Al, In$ ) a été rapporté [18].

La situation est différente dans les alliages semi-Heusler. En raison des grandes distances Mn-Mn en  $C1$  structure l'interaction antiferromagnétique entre les atomes de Mn est supposée être Médie les atomes intermédiaires (X ou Z). L'ordre ferrimagnétique (couplage antiferromagnétique des atomes X et Y) est très rare dans les alliages Heusler par rapport aux alliages ferromagnétiques ou antiferromagnétiques. Le ferrimagnétisme a été détecté [18] uniquement dans les composés  $CoMnSb$ ,  $Mn_2VAl$  et  $Mn_2VGa$ .  $Mn_2VAl$  a reçu beaucoup d'attention expérimentale. L'expérience de diffraction neutronique de ce composé a donné l'état ferrimagnétique avec un moment magnétique de Mn  $1,5 \pm 0,3 \mu_B$  et un moment de V  $-0,9 \mu_B$  [19].

### 1.2.5 Matériaux Heusler demi-metalliques Ferromagnétiques :

Les applications de la spintronique ont élargi l'horizon de ce développement mondiale qui ne cesse pas à se progresser dans tous les secteurs de nos vies quotidiennes, en basant sur la demi-métallicité ferromagnétique des matériaux. Cette propriété a été découverte en 1983 par « Robert de Groot » sur  $NiMnSb$  et  $PtMnSb$  [6] qui a présenté une nouvelle classe de matériaux ferromagnétiques demi-métallique (HMFs), dont l'orientation de spin des électrons attribue une classification de ce type de matériaux par la structure de bandes qui montre un comportement métallique dans une direction de spin « majoritaire ou minoritaire » et un comportement semiconducteur dans l'autre direction (voir (e) Figure I.9). Cette structure de bandes particulière engendre une polarisation de spin à 100% au niveau de Fermi, qui donne

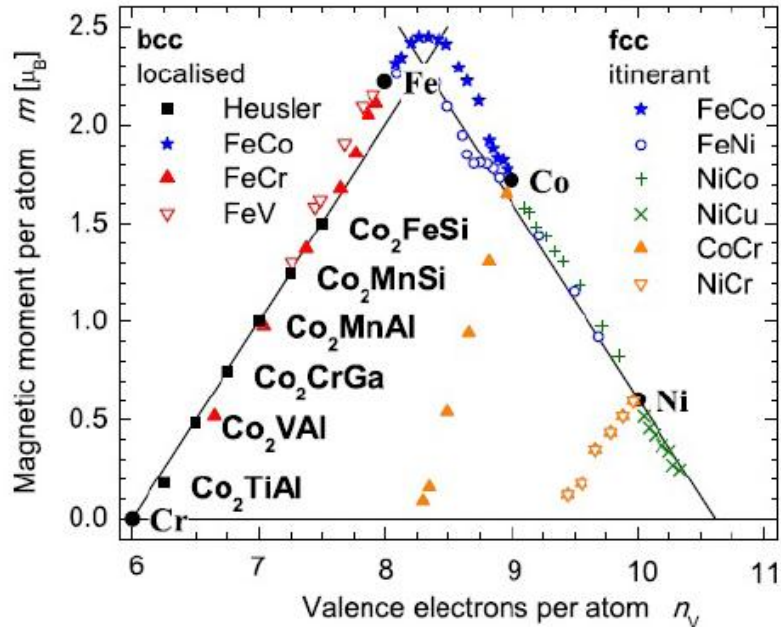
une efficacité maximale de ces dispositifs magnéto électroniques [20]. Jusqu'à présent beaucoup de matériaux (HMFs) ont été étudié expérimentalement et prédit théoriquement tels que les alliages Heusler ( $\text{Co}_2\text{MnGe}$  et  $\text{NiMnSb}$ ) [21-23] les oxydes ( $\text{CrO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ) [24, 25], les semiconducteurs magnétiques dilués (Mn dopé aux  $\text{AlN}$ ,  $\text{CdS/ZnS}$ ) [26, 27], les (perovskites  $\text{LaSrMnO}$ ) [28].



**Figure I.9** : Schéma représentatif de bandes d'énergies des matériaux en spins polarisés.

### I.2.6 La règle de Slater-Pauling (SP)

Slater et Pauling ont découvert que le moment magnétique  $M$  des éléments  $3d$  et de leurs alliages binaires peut être estimé sur la base du nombre moyen d'électrons de valence ( $N_v$ ) par atome [29, 30]. Les matériaux sont divisés en deux zones en fonction de  $M(N_v)$ . La première zone de la courbe Slater-Pauling est le domaine des faibles concentrations d'électrons de valence ( $N_v \leq 8$ ) et du magnétisme localisé. Ici, les structures liées principalement trouvées sont les bcc. Le second domaine est le domaine de concentrations élevées d'électrons de valence ( $N_v \geq 8$ ) et du magnétisme itinérant. Dans ce domaine, des systèmes avec des structures fermées sont trouvés (cfc et hcp). Le fer est situé à la frontière entre le magnétisme localisé et itinérant. La figure I.10 montre la courbe de Slater-Pauling pour les métaux de transition et certains alliages.



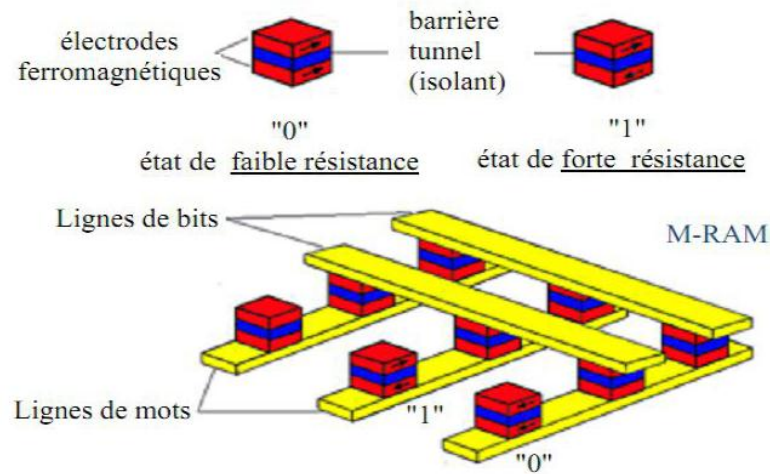
**Figure I.10** La courbe de Slater-Pauling pour certains alliages Heusler et les métaux de transition  $3d$  / leurs alliages.

Le moment de la région localisé peut être calculé comme suit:  $m_{XYZ} = N_V - 18$  pour les matériaux demi-Heusler XYZ (3 atomes par maille élémentaire) et  $m_{X_2YZ} = N_V - 24$  pour les matériaux complets Heusler  $X_2YZ$  (4 atomes par maille élémentaire). Toutes ces relations sont clairement expliquées dans l'article [31]. Les matériaux Heusler quaternaire peuvent être également décrits par la règle de Slater-Pauling [32].

### I.2.7 Intérêts et applications des alliages Heusler

Ces dernières décennies, les alliages Heusler ont reçu un grand intérêt qui s'explique par différentes propriétés qui sont bien adaptées pour des applications dans des dispositifs. L'une des propriétés qui a contribué à la multiplication des travaux sur ces alliages est le caractère demi-métallique. Ce caractère a été prédit par de Groot et al. en 1983, pour les Half-Heuslers [6]. Plus tard, en 2002, Galanakis et al. [2, 33] ont prédit que les alliages Full-Heusler sont également des demi-métaux. En effet, ce caractère les place comme des candidats idéaux pour des électrodes dans des Jonctions Tunnel Magnétiques. Ainsi, les

HMFs ont un courant 100% spin-polarisé et peuvent être utilisés comme injecteurs de spin pour les mémoires magnétiques MRAM (Magnetic Random Access Memories), voir la figure I.11.



**Figure I.11** schéma d'une MRAM

Des travaux récents ont montré qu'en utilisant des matériaux Heusler comme des électrodes dans des MTJ permettent d'atteindre des valeurs élevées de TMR. Wang et al. ont mesuré une valeur de 330% avec une électrode de  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  [3], et Ishikawa et al. une valeur de 182% avec des électrodes de  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  et une barrière de  $\text{MgO}$  [4]. Bien que ces valeurs de TMR soient élevées, elles restent éloignées des attentes d'après la théorie. Cela montre que les mécanismes qui prennent place dans les Heusler ne sont pas totalement compris et justifie l'intérêt d'une recherche actuelle sur ces alliages.

Une autre caractéristique importante de ces alliages est leur température de Curie élevée, notamment dans les alliages Full-Heuslers. Cela s'explique par un couplage interatomique robuste entre les différentes espèces formant l'alliage, d'où le fait que les Full-Heuslers, dont la maille ne possède pas de site vacant, montrent des températures de Curie plus élevées que les Half-Heuslers. Comme exemple, dans l'alliage  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ , la température de Curie a été déterminée égale à 985 K et dans l'alliage  $\text{Co}_2\text{FeGa}$ , supérieure à 1100 K [34]. A différence d'autres demi-métaux comme la magnétite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ), dont la température de

Curie est proche de la température ambiante, la température de Curie élevée des alliages Heusler les rend intéressants, d'un point de vue de la stabilité thermique, pour les applications dans des dispositifs.

Une autre caractéristique qui mérite d'être mentionné est la capacité de certains alliages Heusler à modifier leur forme avec un champ appliqué. Sous l'effet d'un champ magnétique, la maille cristalline se déforme et lorsque le champ est enlevé, l'alliage reprend sa forme originelle. Cette caractéristique, appelée *mémoire à forme magnétique* [35], a beaucoup été étudiée dans l'alliage  $\text{Ni}_2\text{MnGa}$  qui peut atteindre jusqu'à 9% de déformation sous des champs relativement faibles.

## Références

- [1] Z.-j. Wu, E.-j. Zhao, H.-p. Xiang, X.-f. Hao, X.-j. Liu, J. Meng, *Physical Review B*, 76 (2007) 054115.
- [2] I. Galanakis, P. Dederichs, N. Papanikolaou, *Physical Review B*, 66 (2002) 174429.
- [3] W. Wang, H. Sukegawa, R. Shan, S. Mitani, K. Inomata, *Applied Physics Letters*, 95 (2009) 182502.
- [4] T. Ishikawa, N. Itabashi, T. Taira, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Yamamoto, *Journal of Applied Physics*, 105 (2009) 07B110.
- [5] S. Blum, P.C. Li, *Journal of the American Ceramic Society*, 44 (1961) 611-617.
- [6] R. De Groot, F. Mueller, P. Van Engen, K.J.P.R.L. Buschow, 50 (1983) 2024.
- [7] F.J.V.d.D.P.G. Heusler, 5 (1903) 219.
- [8] S. Trudel, O. Gaier, J. Hamrle, B. Hillebrands, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 43 (2010) 193001.
- [9] P.J.J.o.P. Webster, *C.o. Solids*, 32 (1971) 1221-1231.
- [10] H.C. Kandpal, C. Felser, R. Seshadri, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 39 (2006) 776.
- [11] S. Skaftouros, K. Özdoğan, E. Şaşıoğlu, I. Galanakis, *Physical Review B*, 87 (2013) 024420.
- [12] G. Ding, G. Gao, L. Yu, Y. Ni, K. Yao, *Journal of Applied Physics*, 119 (2016) 025105.
- [13] J. Winterlik, G.H. Fecher, B. Balke, T. Graf, V. Alijani, V. Ksenofontov, C.A. Jenkins, O. Meshcheriakova, C. Felser, G. Liu, *Physical Review B*, 83 (2011) 174448.
- [14] V. Surikov, V. Zhordochkin, T.Y.J.H.I. Astakhova, 59 (1990) 469-472.
- [15] N. Lakshmi, A. Pandey, K.J.B.o.M.S. Venugopalan, 25 (2002) 309-313.
- [16] J. Pierre, R. Skolozdra, J. Toboła, S. Kaprzyk, C. Hordequin, M. Kouacou, I. Karla, R. Currat, E. Lelievre-Berna, *Journal of Alloys and Compounds*, 262 (1997) 101-107.
- [17] J. Toboła, J. Pierre, *Journal of Alloys and Compounds*, 296 (2000) 243-252.
- [18] P. Webster, K. Ziebeck, *Alloys and Compounds of d-Elements with Main Group Elements, Part 2 (Landolt-Börnstein New Series Group III vol 19/c)* ed HRJ Wijn, in, Berlin: Springer, 1988.
- [19] H. Itoh, T. Nakamichi, Y. Yamaguchi, N. Kazama, *Transactions of the Japan institute of metals*, 24 (1983) 265-271.
- [20] C. Felser, G.H. Fecher, B.J.A.C.I.E. Balke, 46 (2007) 668-699.

- [21] S. Trudel, O. Gaier, J. Hamrle, B.J.J.o.P.D.A.P. Hillebrands, 43 (2010) 193001.
- [22] I. Galanakis, P. Mavropoulos, P.H.J.J.o.P.D.A.P. Dederichs, 39 (2006) 765.
- [23] Z. Wen, T. Kubota, T. Yamamoto, K.J.S.r. Takanashi, 5 (2015) 18387.
- [24] R. Keizer, S. Goennenwein, T. Klapwijk, G. Miao, G. Xiao, A.J.N. Gupta, 439 (2006) 825-827.
- [25] V. Pardo, W.E.J.P.r.l. Pickett, 102 (2009) 166803.
- [26] H. Li, H. Bao, B. Song, W. Wang, X. Chen, L. He, W.J.P.B.C.M. Yuan, 403 (2008) 4096-4099.
- [27] Y. Yang, O. Chen, A. Angerhofer, Y.C.J.J.o.t.A.C.S. Cao, 128 (2006) 12428-12429.
- [28] W. Pickett, D.J.J.o.m. Singh, *m. materials*, 172 (1997) 237-246.
- [29] J.C.J.P.R. Slater, 49 (1936) 537.
- [30] L.J.P.R. Pauling, 54 (1938) 899.
- [31] T. Graf, C. Felser, S.S. Parkin, *Progress in solid state chemistry*, 39 (2011) 1-50.
- [32] I. Galanakis, P. Dederichs, *Half-Metallic Alloys (Lecture Notes in Physics vol 676)*, in, Berlin: Springer, 2005.
- [33] I. Galanakis, P. Dederichs, N. Papanikolaou, *Physical Review B*, 66 (2002) 134428.
- [34] P. Brown, K.-U. Neumann, P. Webster, K. Ziebeck, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 12 (2000) 1827.
- [35] C.G.F. Blum, S. Ouardi, G.H. Fecher, B. Balke, X. Kozina, G. Stryganyuk, S. Ueda, K. Kobayashi, C. Felser, S. Wurmehl, B. Büchner, *Applied Physics Letters*, 98 (2011) 252501.

## **Chapitre II**

# **La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) et la méthode FP-LAPW**

## II.1 Introduction

Dans ce chapitre nous allons présenter la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Cette méthode fait partie des méthodes ab-initio qui constituent un outil puissant pour prédire les propriétés physiques et chimiques des matériaux. Elle est basée principalement sur la résolution des équations de la mécanique quantique et en particulier l'équation de Schrödinger [1].

$$\hat{H}\Psi = E\Psi \quad (\text{II.1})$$

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

$\Psi$  : est la fonction d'onde du système.

$E$  : est l'énergie totale du système.

D'une façon condensée.  $\hat{H}$  pour un système solide de N électrons s'écrit :

$$\hat{H} = T_e + V_{e-e} + V_{N-e} + T_N + V_{N-N} \quad (\text{II.2})$$

$T_e$  : L'énergie cinétique des électrons.

$T_N$  : L'énergie cinétique des noyaux.

$V_{e-e}$  : L'énergie d'interaction électron-électron.

$V_{N-e}$  : L'énergie d'interaction noyau-électron.

$V_{N-N}$  : L'énergie d'interaction noyau-noyau.

La résolution analytique de l'équation de Schrödinger (II.1) d'un système de particules en interaction est impossible. Donc pour trouver une solution de cette équation on doit faire des approximations [2], parmi elles l'approximation de Born-Oppenheimer [3].

## II.2 Les approximations

### II.2.1 Approximation de Born-Oppenheimer

Selon Born et Oppenheimer le mouvement électronique peut être découplé de celui des noyaux. Ceci est justifié par le fait que la masse des noyaux est bien plus grande que celle des électrons. Les noyaux peuvent donc être considérés fixes pendant le déplacement des électrons. On néglige ainsi l'énergie cinétique  $T_N$  des noyaux et l'énergie potentielle noyaux-noyaux  $V_{N-N}$  devient une constante. D'après cette approximation l'équation (II.2) devient [3] :

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

### II.2.2 Approximation de Hartree

Malgré que l'approximation de Born-Oppenheimer traite la partie électronique seulement, nous sommes devant un problème à N corps à cause du terme d'interaction électron-électron. Douglas Hartree(1927) [2] proposa une méthode permettant de calculer les fonctions d'onde et les énergies approchées d'ions et d'atomes. Pour cela, l'idée de base de cette approximation consiste à considérer que les électrons se déplacent indépendamment les uns des autres, dans un champ de potentiel moyen. Ainsi, si on considère deux électrons 1 et 2, la probabilité de présence de l'électron de coordonnées  $r_1$  dans l'orbital est indépendant de celle de l'électron de coordonnées  $r_2$ . L'Hamiltonien d'un tel système s'écrit :

$$H = \sum_{i=1}^N h(i) \quad (\text{II.4})$$

Où  $h$  est le Hamiltonien mono-électronique [4]

La fonction d'onde du système à N électrons est écrite sous la forme appelée produit de Hartree qui est constitué d'un produit de n orbitales mono électronique et il s'écrit par :

$$\Psi(r_1, r_2, \dots, r_n) = (\varphi_i(r_1)\varphi_j(r_2)\dots\varphi_k(r_n)) \quad (\text{II.5})$$

L'approximation de Hartree ne prend pas en compte le principe de Pauli (spin) qui ajoute une autre difficulté de résoudre l'équation de Schrödinger.

### I.2.3 Approximation Hartree-Fock (HF)

Le système électronique dans l'approximation de Hartree est non complètement décrit. En 1930, Fock [5] a montré que la fonction d'onde de Hartree ne respecte pas le principe d'exclusion de Pauli

car elle n'est pas antisymétrique par rapport à l'échange de deux particules quelconques (les électrons sont des fermions donc la fonction d'onde totale doit être antisymétrique par rapport à l'échange de deux particules quelconques). Il a remplacé la fonction d'onde  $\psi(r_1, r_2, \dots, r_n)$  par un déterminant de Slater.

$$\psi(r_1, r_2, \dots, r_n) = \frac{1}{\sqrt{n!}} \begin{vmatrix} \varphi_1(r_1) & \varphi_1(r_2) & \cdots & \varphi_1(r_n) \\ \varphi_2(r_1) & \varphi_2(r_2) & \cdots & \varphi_2(r_n) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \varphi_n(r_1) & \varphi_n(r_2) & \cdots & \varphi_n(r_n) \end{vmatrix}$$

Où  $\frac{1}{\sqrt{n!}}$  Est la constante de normalisation

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

### II.3.1 Introduction

Le concept fondamental de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est que l'énergie d'un système électronique peut être exprimée en fonction de sa densité électronique. C'est en fait une idée ancienne basée sur le postulat proposé par Thomas [6] et Fermi. Cette théorie de la fonctionnelle de la densité électronique (DFT) a été élaborée pendant les années 1964 et 1965, par Hohenberg-Kohn [7] et Kohn-Sham [8]. Ils ont repris la théorie de Thomas-Fermi. L'objectif est de remplacer la fonction d'onde multiélectronique par la densité électronique en tant que quantité de base pour les calculs. Le principe consiste à une reformulation du problème à N corps à l'aide des équations type Schrödinger à une seule particule, nommées les équations de Kohn-Sham [8]. La résolution de ces équations conduit à l'énergie totale  $E[n(r)]$  et à la densité électronique  $n(r)$  de l'état fondamental.

### I.3.2 Théorèmes de Hohenberg et Kohn:

**Premier théorème :** Dans cette théorie, pour tout système d'électrons en interaction dans un potentiel externe  $V_{ext}$ , l'énergie de l'état fondamental est une fonctionnelle unique de la densité électronique.

$$E = E[n] \quad (\text{II.6})$$

**Deuxième théorème** : Pour chaque  $V_{ext}$  particulier, cette fonctionnelle  $(E[n])$  est minimisé par l'énergie de l'état fondamental du système  $E(n_0)$

$$E(n_0) = \min E[n] \quad (\text{II.7})$$

### II.3.3 Les équations de Kohn et Sham

**Kohn et Sham** [9] ont introduit un développement supplémentaire qui consiste à remplacer le système réel interactif en un système fictif non interactif. Cette approche réalise une correspondance exacte entre la densité électronique, l'énergie de l'état fondamental d'un système constitué de fermions non interactifs placés dans un potentiel effectif et le système réel à plusieurs électrons en interaction soumis au potentiel réel. De ce fait, la densité électronique et l'énergie du système réel sont conservées dans ce système fictif, les théorèmes de Hohenberg et Kohn s'appliquent également. La fonctionnelle de la densité  $E[\rho(r)]$  pour le système interactif peut être exprimée par l'expression suivante :

$$E[\rho(r)] = T_0[\rho(r)] + E_H[\rho(r)] + E_{xc}[\rho(r)] + V_{ext}[\rho(r)] \quad (\text{II.8})$$

$E_H[\rho(r)]$  : Le terme de Hartee.

$E_{xc}[\rho(r)]$  : L'énergie d'échange-corrélation est une fonctionnelle additionnelle qui décrit l'interaction inter-électronique.

$V_{ext}[\rho(r)]$  : inclut l'interaction coulombienne des électrons avec les noyaux.

$T_0[\rho(r)]$  : Le terme de l'énergie cinétique du gaz d'électrons non interagissant [10].

### II.3.4 La Fonctionnelle d'échange et de corrélation

L'élaboration des équations de Kohn et Sham [9] a permis de mettre en évidence le fait que la seule fonctionnelle de la densité demeurant inconnue au sein de ce formalisme correspond à la fonctionnelle d'échange-corrélation  $E_{xc}[\rho(r)]$  [11]. L'énergie d'échange et de corrélation  $E_{xc}$  est alors calculée à l'aide de fonctionnelles et généralement séparé en deux termes distincts, l'un d'échange  $E_x$  et l'autre de corrélation  $E_c$ .

$$E_{XC} = E_X + E_C \quad (\text{II.9})$$

Ainsi, le calcul de l'énergie et du potentiel d'échange-corrélation repose sur un certain nombre d'approximations tels que LDA, GGA, meta-GGA, Hybrides.

### II.3.5 L'approximation de la densité Locale (LDA)

Afin d'obtenir une bonne approximation de la fonctionnelle d'échange-corrélation  $E_{XC}[n]$ , Kohn et Sham proposait dès 1965 l'approximation de la densité local (LDA). Dans cette approximation, on suppose que la densité électronique varie suffisamment lentement à l'intérieur du système pour que l'on puisse écrire [12]

$$E_{XC}^{LDA} = \int \varepsilon_{XC}[n(r)]n(r) dr \quad (\text{II.10})$$

Où  $\varepsilon_{XC}$  est l'énergie d'échange-corrélation par électron d'un gaz homogène d'électrons de densité  $n(r)$ . En d'autres termes, on postule qu'autour de chaque point  $r$ , on peut remplacer le système réel par un gaz homogène d'électrons de densité [13].

### II.3.6 L'approximation de Gradient généralisé (GGA)

La plupart des corrections apportées à la LDA sont nées de l'idée consistant à tenir compte des variations locales de la densité  $n(r)$  à travers son gradient  $\nabla n(r)$  et cela dans le but de prendre en compte l'inhomogénéité du système. L'énergie d'échange-corrélation dans l'approximation du gradient généralisé (GGA) est une fonctionnelle des densités de charges locales et de leurs gradients qui s'écrivent de la forme générale suivante [14]

$$E_{XC}^{LDA}[n(r)] = \int \varepsilon_{XC}(n(r), \nabla n(r))n(r)dr \quad (\text{II.11})$$

Où  $\varepsilon_{XC}(n(r), \nabla(r))$  représente l'énergie d'échangé-corrélation par électron dans un système d'électrons en interaction mutuelle de densité non uniforme

## II.4 Paramètres de calcul

### II.4.1 Echantillonnage de la zone de Brillouin et point k

Le théorème de Bloch a permis de simplifier un système infini d'équations en un système fini mais pour un nombre infini de points k. l'énergie du système est calculée à partir d'intégration de zone de Brillouin (ZB) par un échantillonnage plus finement possible. Ceci nécessite l'utilisation d'un maillage très dense, ce qui prend un grand temps de calcul. Donc pour diminuer le nombre de points d'intégration, on peut utiliser les symétries du système. Monkhorst et Pack [15] ont proposés une méthode d'échantillonnage plus répandue qui admet d'obtenir une grille uniforme de points k de dimension choisie.

En pratique, les points k appartiennent au réseau réciproque qui a une relation de taille inverse avec le réseau direct, donc le réseau direct est de grand dimension, le réseau réciproque sera petite et le nombre de point k nécessaire pour un bon échantillonnage est donc plus faible. Par contre dans le cas où le réseau direct est petit le réseau réciproque sera grand le nombre de points k sera plus important pour intégrer la ZB correctement. De plus, le nombre de points k dans une direction de l'espace doit également être proportionnel à celui des autres directions.

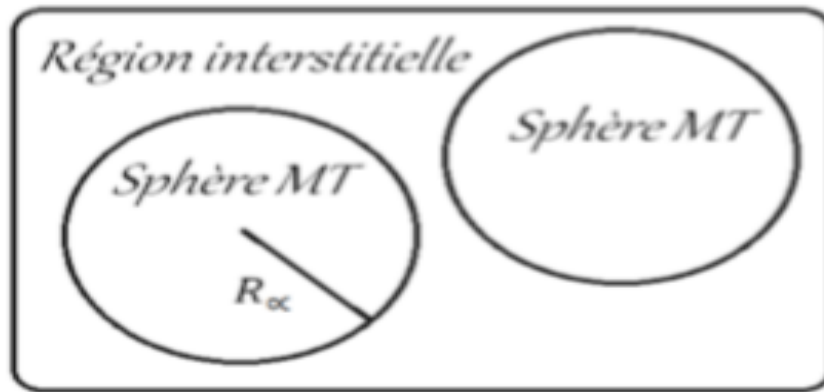
### II.4.2 L'énergie de coupure E<sub>CUT</sub>

Est une limite donnée à la base sphérique d'ondes planes [16] que l'on utilise pour développer les fonctions d'ondes de Bloch (périodicité des fonctions d'ondes du système est déterminée par la périodicité du réseau cristallin). Les fonctions d'ondes de Bloch s'écrivent naturellement, sous la forme d'une somme des ondes planes:

$$\Psi_{nk} = \sqrt{\frac{1}{\Omega}} \sum_{\mathbf{G}} C_{nk}(\mathbf{G}) e^{i(\mathbf{K}+\mathbf{G}) \cdot \mathbf{r}} \quad (\text{II.12})$$

G : les vecteurs du réseau réciproque ; K : les vecteurs d'onde appartenant à la première zone de Brillouin; n : l'index de bande ; Ω : le volume du système

## II.5 La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW)



**Figure II.1:** potentiel « Muffin-Tin »

En 1975, Anderson [17] a résolu les problèmes rencontrés dans la méthode APW en proposant une méthode de structure des bandes exactes par l'égalisation de l'énergie fixe et continue pour les fonctions de bases ainsi que leurs dérivés. Cette méthode est appelée la méthode linéaire des ondes planes augmentées LAPW. La fonction de base de la méthode FP-LAPW possède des ondes planes dans la région interstitielle comme dans la méthode APW et harmoniques sphériques dans les sphères (Figure II. 1).

Dans la méthode des ondes planes augmentées linéarisées à potentiel total (Full Potential Linearized Augmented Plane Waves : FP-LAPW) [18] aucune approximation n'est faite pour la forme du potentiel ni de la densité de charge. Ils sont plutôt développés en harmoniques du réseau à l'intérieur de chaque sphère atomique, et en séries de Fourier dans les régions interstitielles. Ce qui est à l'origine du nom Full-Potential. Cette méthode assure donc la continuité du potentiel à la surface de la sphère MT et le développe sous la forme suivante :

$$v(r) = \begin{cases} \sum_{lm} V_{Lm} Y_{Lm}(r) & r < R_\alpha \\ \sum_k V_k e^{ikr} & r > R_\alpha \end{cases} \quad (\text{II.13})$$

## II.6 Le code de calcul Wien2k

Dans ce travail, nous avons utilisé la méthode FP-LAPW, implémentée dans le code Wien2k. Le code Wien2k consiste en différents programmes indépendants qui sont liés par C. Shell Script [19] :

**NN** : C'est un programme qui donne les distances entre plus proches voisins, qui aide à déterminer le rayon atomique de la sphère.

**LSTART** : Un programme qui génère les densités atomiques et détermine comment les différentes orbitales sont traitées dans le calcul de la structure de bande, comme des états du cœur avec ou sans orbitales locales.

**SYMMETRY** : Il génère les opérations de symétrie du groupe spatial, détermine le groupe ponctuel des sites atomiques individuels, génère l'expansion LM pour les harmoniques du réseau et détermine les matrices de rotation locale.

**KGEN** : Il génère une maille k dans la zone de Brillouin.

**DSTART** : Il génère une densité de départ pour le cycle SCF par la superposition des densités atomiques générées dans LSTART. Alors un cycle self consistant est initialisé et répété jusqu'à ce que le critère de convergence soit vérifié. Ce cycle s'inscrit dans les étapes suivantes :

**LAPW0** : Génère le potentiel pour la densité.

**LAPW1** : Calcul les bandes de valence, les valeurs propres et les vecteurs propres.

**LAPW2** : Calcul les densités de valence pour les vecteurs propres.

**LCORE** : Calcul les états du cœur et les densités.

**MIXER** : Mélange les densités d'entrée et de sortie

## II.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu que la théorie de la DFT mise en place par Kohn, Hohenberg et Sham dans les années 60 permet d'approcher la densité électronique de l'état fondamental d'un gaz d'électrons sans avoir à calculer sa fonction d'onde exacte. Cette théorie très répandue en physique du solide est utile pour évaluer finement les propriétés des matériaux à l'échelle atomique. Il est important de pouvoir calculer quantiquement de tel système à moindre coût grâce à la DFT d'une part et aux méthodes physico numériques employées d'autre part.

---

## Références

- [1] E. Schrödinger, *Ann. Phys.*, 79 (1926) 489.
- [2] J.M. Thijssen, *Computational Physics*, Cambridge University press 1999
- [3] M. Born, R. Oppenheimer, *Annalen der Physik*, 389 (1927) 457-484.
- [4] E.j.Z. Z.j. Wu, H.p. Xiang, X.f. Hao, X.j. Liu, and J. Meng, *Physical Review B*, 76 (2007) 054115.
- [5] V.F.a.D.R. Hartree, *Z. Phys.*, 61 (1930) 126.
- [6] L.H. Thomas, *Proc. Cambridge Philos. Soc.* , 23 (1928) 542-548.
- [7] P. Hohenberg, W. Kohn, *Physical Review*, 136 (1964) B864-B871.
- [8] W. Kohn, L.J. Sham, *Physical Review*, 137 (1965) A1697-A1705.
- [9] W. Kohn, L.J. Sham, *Physical Review*, 140 (1965) A1133-A1138.
- [10] A. Zunger, A.J. Freeman, *Physical Review B*, 15 (1977) 5049.
- [11] J.P. Perdew, M. Ernzerhof, K. Burke, *The Journal of Chemical Physics*, 105 (1996) 9982-9985.
- [12] V. Sahni, *Physical interpretation of electron correlation in the local-density approximation*, in: *Density Functional Theory*, Springer, 1995, pp. 217-233.
- [13] S.H. Vosko, L. Wilk, M. Nusair, *Canadian Journal of physics*, 58 (1980) 1200-1211.
- [14] W. Kohn, *Reviews of Modern Physics*, 71 (1999) 1253-1266.
- [15] H.J. Monkhorst, J.D. Pack, *Physical Review B*, 13 (1976) 5188-5192.
- [16] M.C. Payne, M.P. Teter, D.C. Allan, T. Arias, a.J. Joannopoulos, *Reviews of Modern Physics*, 64 (1992) 1045.
- [17] O.K. Andersen, *Physical Review B*, 12 (1975) 3060-3083.
- [18] D. Hamann, *Physical Review Letters*, 42 (1979) 662.
- [19] M.D. Segall, J.D.L. Philip, M.J. Probert, C.J. Pickard, P.J. Hasnip, S.J. Clark, M.C. Payne, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 14 (2002) 2717.

# *Chapitre III*

## *Résultats et discussions*

### III. 1 Introduction

Nous allons présenter dans ce chapitre, en un premier lieu, la méthode et les différents paramètres utilisés dans nos calculs. Le reste de ce chapitre sera consacré aux résultats des calculs *ab-initio* de l'ensemble des propriétés structurales et magnétiques des composés Heusler complet  $Rh_2TMSn$  (TM=Cr, Mn et Fe), pour but de voir l'effet de la corrélation électronique sur les différentes propriétés.

### III.2 Détails de calcul

Les propriétés physico-chimiques sont calculées par une méthode *ab-initio* basée sur la théorie de la fonctionnelle de la densité électronique (DFT) en utilisant la méthode des ondes planes linéairement augmentées (FP-LAPW) implémentée dans le code Wien2k [1], en traitant l'énergie d'échange et de corrélation par l'approximation du gradient généralisé de Perdew [2] et al. (GGA). En effet la DFT seul ne peut pas rendre compte de la grande interaction de répulsion coulombienne dans les orbitales localisées d ou f de certains matériaux. Le problème est dû à l'utilisation de fonctionnelles d'échange corrélation conduisant à une mauvaise estimation de la corrélation électronique [3]. Pour résoudre ce problème, il est possible de tenir compte de la forte répulsion coulombienne entre deux électrons en ajoutant un terme d'Hubbard (U) dans la fonctionnelle GGA. On appelle cette nouvelle fonctionnelle GGA+U.

L'inclusion de corrélation électron-électron est nécessaire afin de respecter la localisation partielle des électrons d ( $3d$  de TM et  $4d$  de Rh) dans une meilleure façon. Dans ce travail, nous avons utilisé une valeur de Hubbard  $U=1.92$  eV,  $1.64$  eV tirées de l'article [4], pour Rh et Mn, respectivement.

Les fonctions de base, les densités électroniques, ainsi que les potentiels sont développés en combinaisons d'harmoniques sphériques autour des sites atomiques, c'est-à-dire dans les sphères atomiques et en série de Fourier dans les régions interstitielles. Le choix des rayons muffin-tin (RMT) est effectué de telle façon que la région interstitielle entre les différents sphères soit la

plus petite afin d'assurer la précision de nos calculs. Les valeurs choisies de RMT sont regroupées dans le tableau III.1.

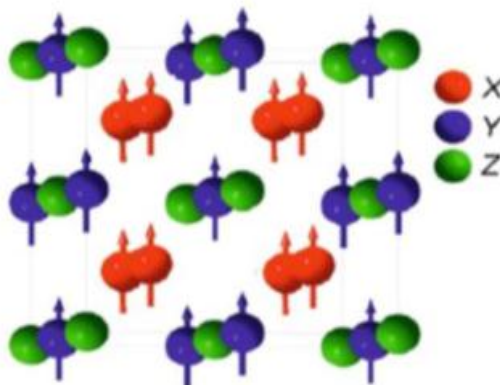
Après le test de convergence (§III.3) le paramètre  $RMT \cdot K_{max}$  (*Ecut*) est choisi égale à 9. Où RMT est le plus petit rayon muffin-tin de la sphère MT et  $K_{max}$  le module maximal de vecteur réciproque dans la première zone de Brillouin et le paramètre k-points est choisi égale à 3500.

**Tableau III.1** : RMT des différents sites atomiques donnés en unité du rayon de Bohr.

	<b>Rh<sub>2</sub>CrSn</b>	<b>Rh<sub>2</sub>MnSn</b>	<b>Rh<sub>2</sub>FeSn</b>
<b>RMT (u a)</b>	Rh : 2.35	Rh : 2.35	Rh : 2.35
	Cr : 2.24	Mn : 2.25	Fe : 2.26
	Sn: 2.32	Sn: 2.32	Sn : 2.32

Nous avons effectué un calcul auto-cohérent pour déterminer les paramètres de maille pour les trois phases magnétiques, ferromagnétique (FM), antiferromagnétique de type1 (AFM-I) et antiferromagnétique de type2 (AFM-II). Le cycle auto cohérent s'est accompli lorsque le calcul d'énergie totale converge pour  $10^{-4}$  Ryd.

Dans un alliage ferromagnétique, tous les atomes possèdent des spins orientés parallèlement les uns aux autres (Figure III.1).

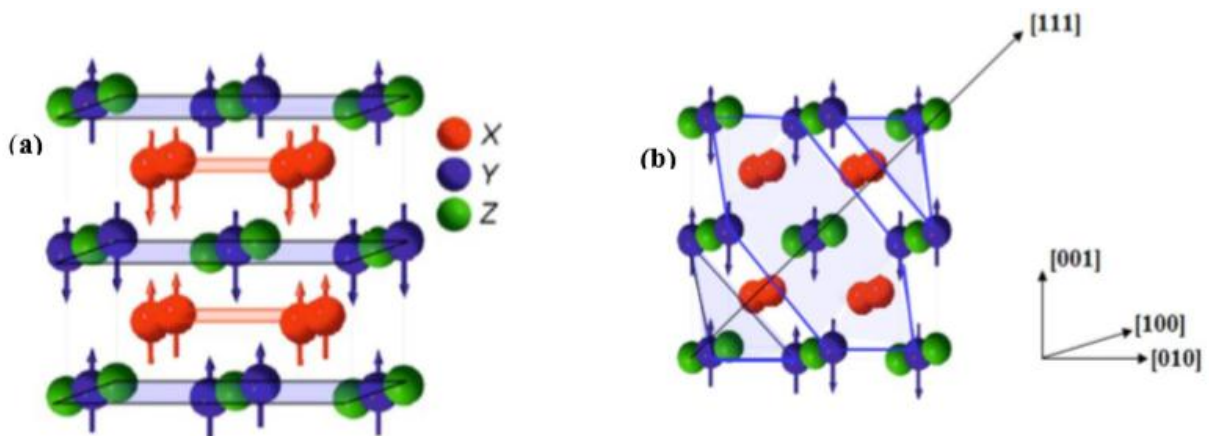


**Figure III.1** Ordre ferromagnétique dans un alliage full Heusler

Dans un alliage antiferromagnétique, tous les atomes se trouvant dans un même plan possèdent des spins orientés parallèlement les uns aux autres. Les orientations dans deux plans adjacents

sont antiparallèles et donc les moments se compensent exactement. Dans un alliage AFM de type I, les atomes de même orientation de spin sont disposés dans des plans (001) (Figure III.2.a). Tandis que pour un AFM de type II, ils sont disposés dans des plans (111) (Figure III.2.b).

L'aimantation nette et la périodicité microscopique de spin rendent un alliage antiferromagnétique beaucoup plus difficile à étudier expérimentalement qu'un alliage ferromagnétique.



**Figure III.2** Ordre Antiferromagnétique dans un alliage full Heusler

(a) : AFM de type I (b) : AFM de type II

### III.3 Etude de convergence

Dans la pratique, il faut toujours tester la convergence des résultats par rapport à la grille d'échantillonnage de la zone de Brillouin, appelée K-points (§II.4.1) et par rapport à l'énergie de coupure *E<sub>cut</sub>* (§II.4.2). D'habitude, on commence par certaines valeurs de ces deux paramètres puis on refait le même calcul en prenant une grille plus dense et/ou en augmentant *E<sub>cut</sub>* jusqu'à ce que l'énergie totale ne varie plus [5]. Les résultats de ces calculs sont présentés dans les tableaux III.2-III.7 et par les figures III.3-III.4

**Tableau III. 2** Convergence de l'énergie totale en fonction de l'énergie cinétique de coupure ( $R^*K_{max}$ ) du  $Rh_2MnSn$  dans la phase FM.

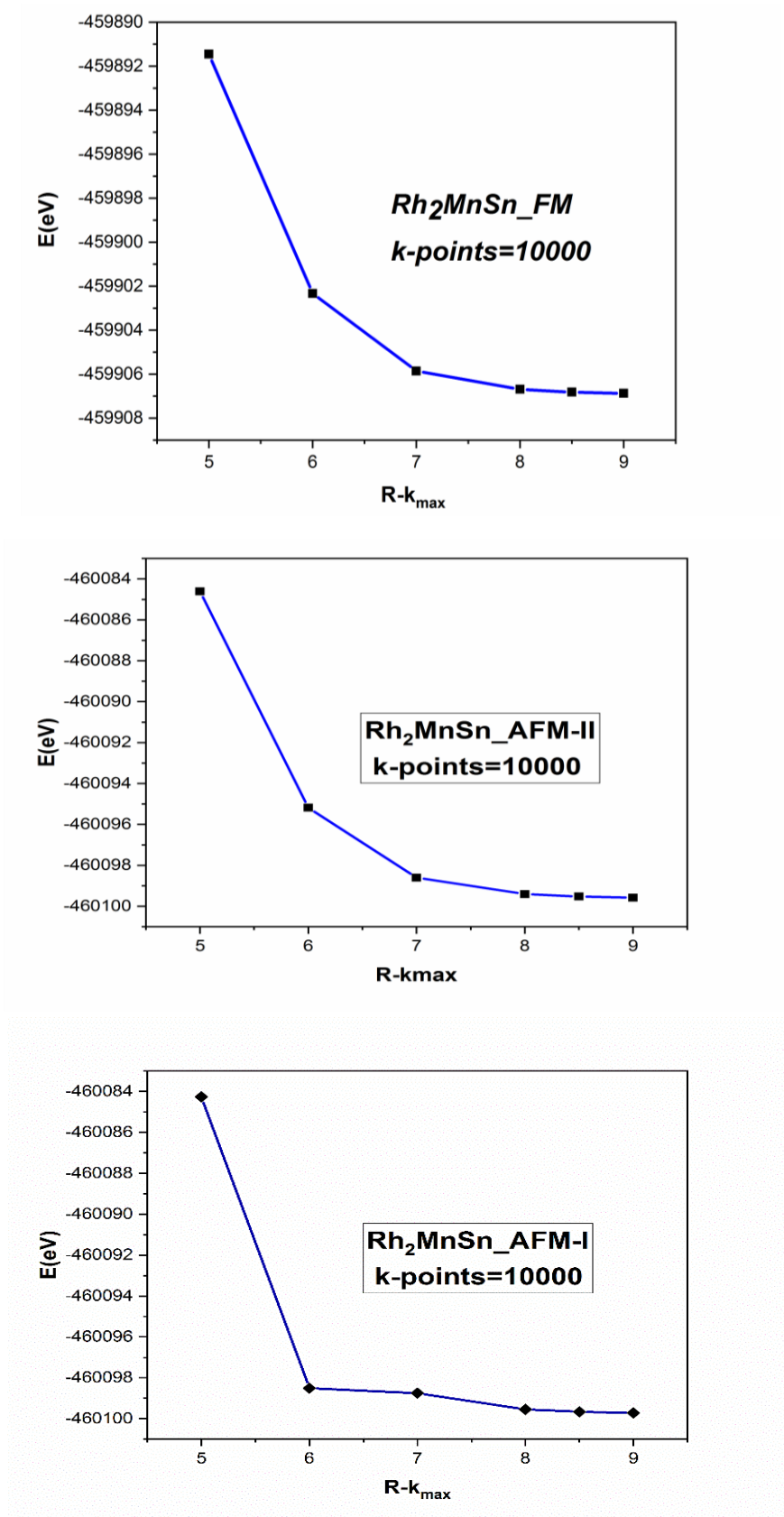
$R\text{-}k_{max}$	E (eV)
5	-459891.4476
6	-459902.32656
7	-459905.85428
8	-459906.68891
8.5	-459906.81598
9	-459906.87314

**Tableau III. 3** Convergence de l'énergie totale en fonction de l'énergie cinétique de coupure ( $R^*K_{max}$ ) du  $Rh_2MnSn$  dans la phase AFM-I.

$R\text{-}k_{max}$	E (eV)
5	-460084,25835
6	-460098,50325
7	-460098,74926
8	-460099,5426
8.5	-460099,66129
9	-460099,71524

**Tableau III. 4** Convergence de l'énergie totale en fonction de l'énergie cinétique de coupure ( $R^*K_{max}$ ) du  $Rh_2MnSn$  dans la phase AFM-II.

$R\text{-}k_{max}$	E (eV)
5	-460084,61049
6	-460095,18102
7	-460098,59985
8	-460099,40352
8.5	-460099,52384
9	-460099,57797



**Figure III. 3** Test de convergence de calcul de l'énergie totale en fonction l'énergie de coupure  $RK_{max}$  du  $Rh_2MnSn$  dans la phase ferromagnétique (FM). Antiferromagnétique-I (AFM-I) et Antiferromagnétique-II (AFM-II).

**Tableau III.5** Convergence de l'énergie totale en fonction de  $k$ -points du Rh<sub>2</sub>MnSn dans la phase ferromagnétique.

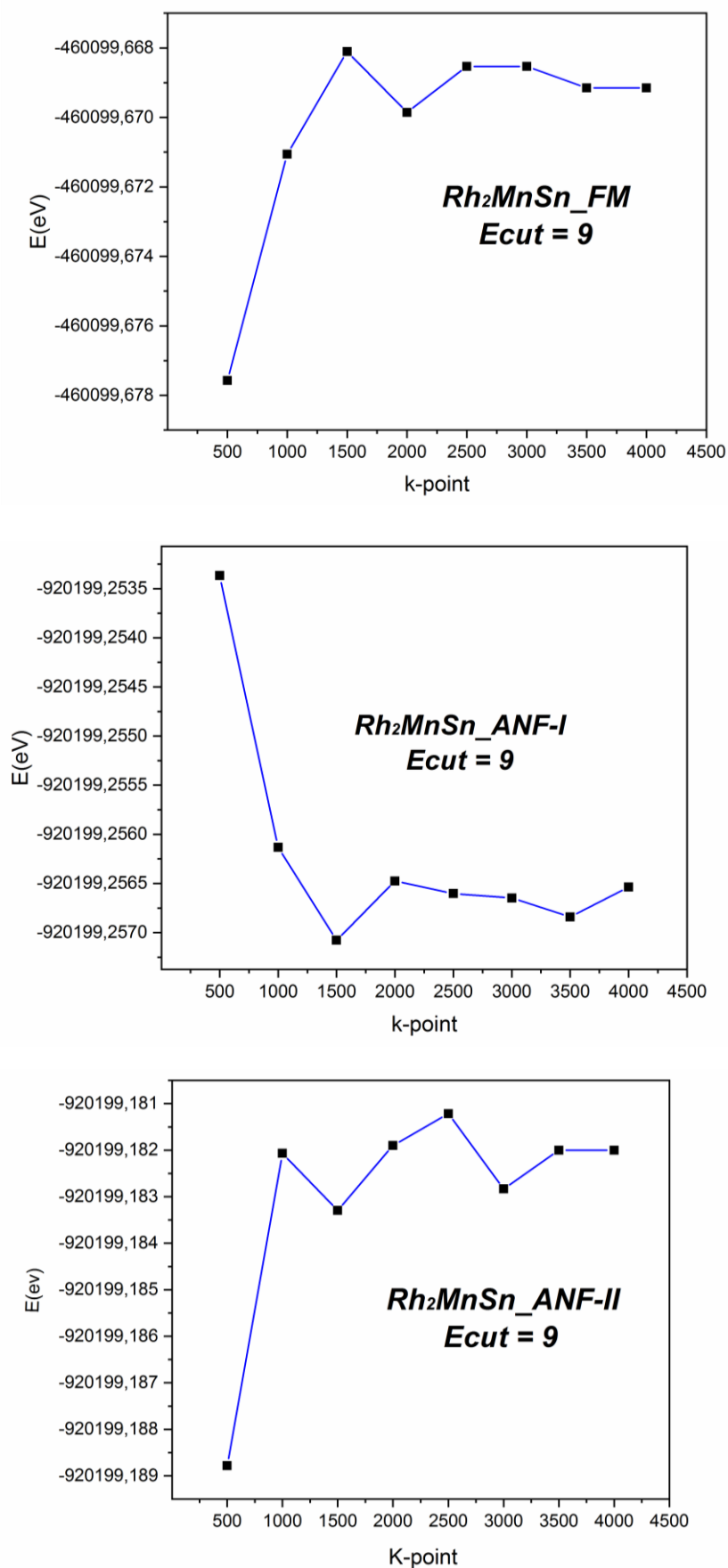
<i>K-point</i>	<i>E (eV)</i>
500	-460099.67757
1000	-460099.67106
1500	-460099.6681
2000	-460099.66986
2500	-460099.66853
3000	-460099.66853
3500	-460099.66915

**Tableau III .6** Convergence de l'énergie totale en fonction de  $k$ -points du Rh<sub>2</sub>MnSn dans la phase Antiferromagnétique-I (AFM-I).

<i>K-point</i>	<i>E (eV)</i>
500	-920199.25337
1000	-920199.25613
1500	-920199.25708
2000	-920199.25647
2500	-920199.2566
3000	-920199.25665
3500	-920199.25684
4000	-920199.25654

**Tableau III .7** Convergence de l'énergie totale en fonction de  $k$ -points du Rh<sub>2</sub>MnSn dans la phase Antiferromagnétique-II (AFM-II).

<i>K-point</i>	<i>E (eV)</i>
500	-920199.18878
1000	-920199.18207
1500	-920199.18329
2000	-920199.1819
2500	-920199.18122
3000	-920199.18283
3500	-920199.1828



**Figure III. 4** Convergence de l'énergie totale en fonction de  $k$ -points du  $Rh_2MnSn$  dans la phase ferromagnétique (FM). Antiferromagnétique-I (AFM-I) et Antiferromagnétique-II (AFM-II).

D'après les résultats ci-dessus, le calcul de l'énergie totale demande une valeur de  $R^*K_{\max}$  importante. Pour assurer une bonne convergence on a choisi une valeur de  $R^*K_{\max}=9$ . Pour le nombre des k-points l'énergie totale demande une densité de K-points relativement importante. Le calcul a été effectué avec un k-points=3500.

### III.4 Propriétés structurales

Nos calculs pour les différentes propriétés de  $Rh_2TMSn$  (TM=Cr, Mn, Fe) sont effectués dans la structure cubique de phase  $L2_1$  avec le groupe d'espace  $Fm\bar{3}m$  (N° 225). La maille conventionnelle de ses composés compte seize atomes par maille : 8 atomes de Rh, 4 atomes de TM et 4 atomes de Sn, les atomes Rh, TM et Sn occupent respectivement les positions 8c (1/4, 1/4, 1/4), 4a (0, 0, 0) et 4b (1/2, 1/2, 1/2).

On peut vérifier la stabilité de ces composés  $Rh_2TMSn$  (TM=Cr, Mn, Fe) à partir de l'énergie de cohésion. L'énergie de cohésion d'un solide est l'énergie qu'il faut fournir pour le séparer en ses constituants à l'état libre. L'énergie de cohésion est donnée par :

$$E_{coh} = \frac{1}{N} \left( E_{total}^{XYZ} - 2 \times E_{atom}^X - E_{atom}^y - E_{atom}^Z \right) \quad (III.1)$$

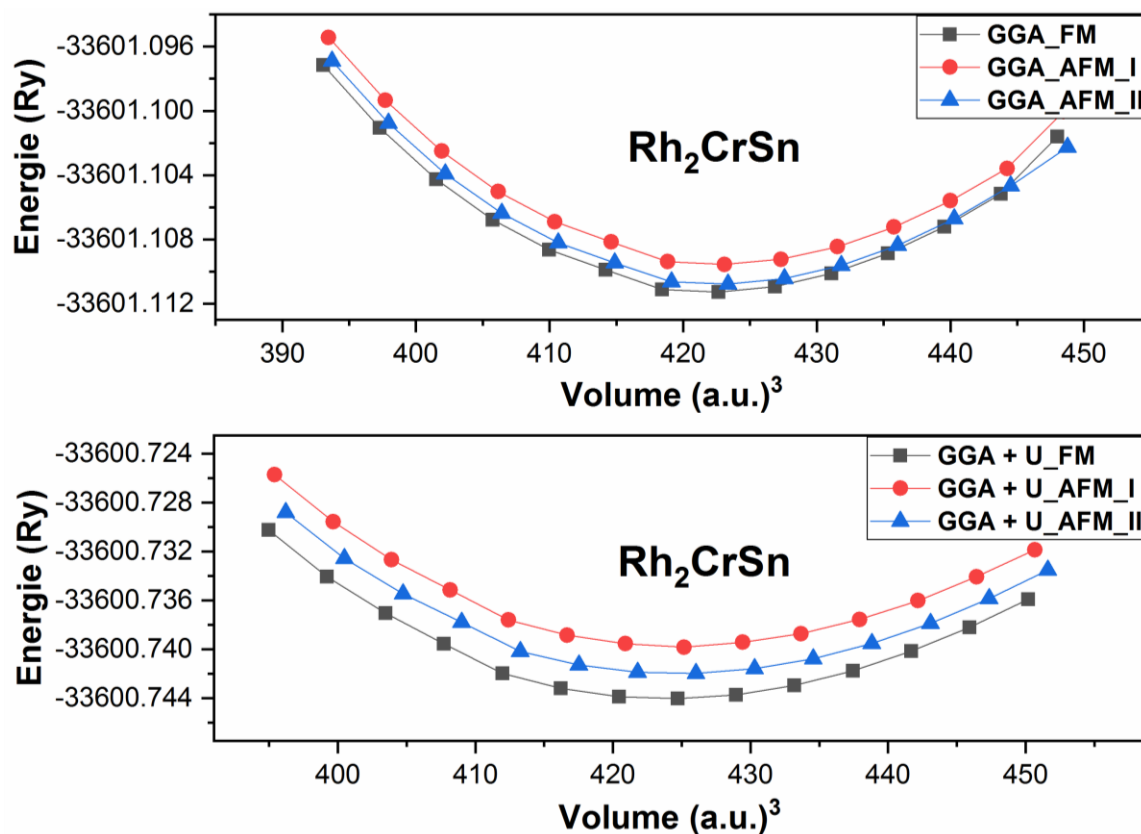
Où  $E_{total}^{XYZ}$  se réfère à l'énergie totale du composé à l'équilibre et  $E_{atom}^X$ ,  $E_{atom}^y$ ,  $E_{atom}^Z$  sont les énergies totales des atomes libres et  $N$  est le nombre d'atome par cellule unitaire. Les valeurs de l'énergie de cohésion calculées sont données dans le tableau III .8.

**Tableau III.8** Energie de cohésion de nos composés  $Rh_2TMSn$  (TM=Cr, Mn, Fe) calculées par GGA dans la phase FM.

	Energie de system	Energie de Rh	Energie de TM	Energie de Sn	Energie de cohésion
<b>Rh<sub>2</sub>CrSn</b>	-457160.37545		-28589.200969		-3.933
<b>Rh<sub>2</sub>MnSn</b>	-460093.59651	-130208.27585	-31524.696867	-168138.1294	-3.698
<b>Rh<sub>2</sub>FeSn</b>	-463198.79945		-34629.68069		-3.415

Nos résultats confirment la stabilité de ces composés dans la structure cubique, phase  $L2_1$ . On conclue que le composé  $Rh_2CrSn$  est le plus stable par rapport aux composés  $Rh_2MnSn$  et  $Rh_2FeSn$ . On note que la structure des composés  $Rh_2CrSn$  et  $Rh_2FeSn$  déterminées expérimentalement est la structure teragonal [6].

Afin de voir l'effet de la corrélation électronique sur la stabilité magnétique, nous avons varié l'énergie totale en fonction du volume de la maille dans chacune des trois phases les plus probables : ferromagnétique (FM) antiferromagnétique de type-I (AFM-I), antiferromagnétique de type-II (AFM-II) et pour les trois matériaux étudiés en utilisant les deux approches GGA et GGA + U. Pour bien mettre en évidence l'énergie la plus basse, nous avons présenté sur une même courbe l'évolution de l'énergie totale en fonction du volume de la cellule unitaire dans les trois phases considérées (FM, AFM-I et AFM-II). Les figures III.5, III.6 et III.7 présente la variation des énergies totales en fonction des volumes dans les trois phases (FM, AFM-I et AFM-II) et pour les trois composés étudiés en utilisant les deux approches GGA et GGA + U.



**Figure III.5** Les énergies totales en fonction des volumes dans les trois phases (FM, AFM-I et AFM-II) pour  $Rh_2CrSn$  en utilisant les deux approches GGA et GGA + U

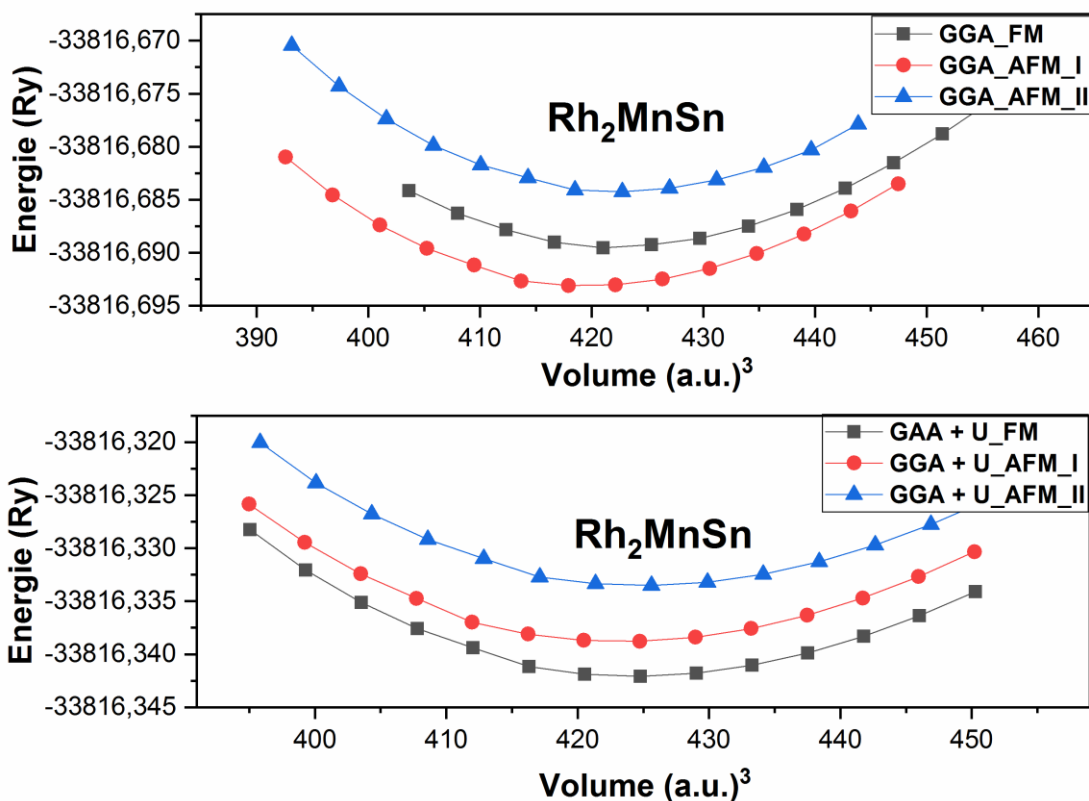


Figure III.6 Les énergies totales en fonction des volumes dans les trois phases (FM, AFM-I et AFM-II) pour  $Rh_2MnSn$  en utilisant les deux approches GGA et GGA + U

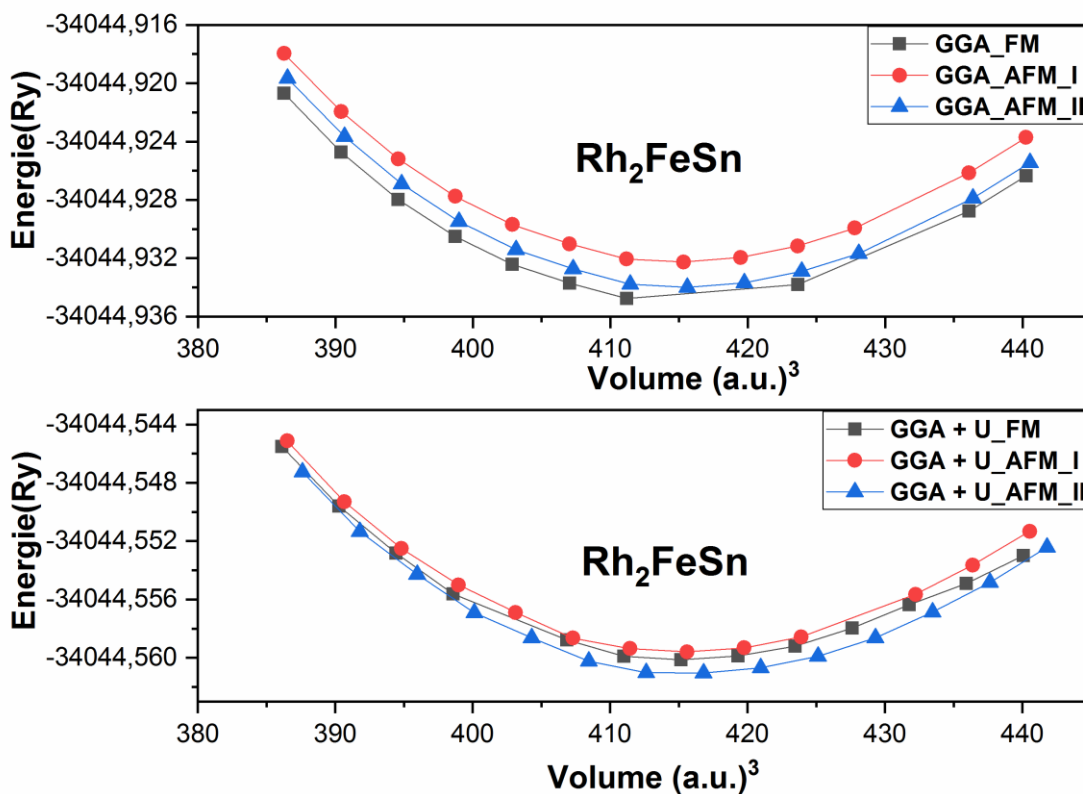


Figure III.7 Les énergies totales en fonction des volumes dans les trois phases (FM, AFM-I et AFM-II) pour  $Rh_2MnSn$  en utilisant les deux approches GGA et GGA + U

Les résultats obtenus de calculs GGA et GGA + U montrent bien que la phase magnétique la plus stable est la phase ferromagnétique pour le composé  $\text{Rh}_2\text{CrSn}$ . Pour le composé  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  le calcul GGA montre que la phase AFM-I est la plus stable tandis que le calcul GGA+U montre que la phase FM est la plus stable.  $\text{Rh}_2\text{FeSn}$  est plus stable dans la phase FM et AFM-II calculé par les deux approches GGA et GGA+U, respectivement.

Expérimentalement. James C. Suits [6] a trouvé que  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  est un ferromagnétiques avec une structure cubique ( $L2_1$ ). Nous remarquons que nos résultat concerne la stabilité magnétique pour le  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  (figure III- 6) calculés par l'approche GGA + U est en accord avec l'expérimental.

**Tableau III.9** Paramètre du réseau  $a_0$ , module de compressibilité B, sa dérivée B' et l'énergie totale E pour les matériaux étudiés.

		$a_0(\text{Å})$	B(GPa)	B'	E (eV)
<b><math>\text{Rh}_2\text{CrSn}</math></b>	GGA (FM)	6.3051	190.1865	4.7748	-457166.5748
	GGA+U (FM)	6.3129	173.3118	4.9166	-457160.375691
	Autres	-	-	-	-
	Exp.	-	-	-	-
<b><math>\text{Rh}_2\text{MnSn}</math></b>	GGA (AFM-I)	a=b=4.2370 c=6.9281	176.1951	4.0692	-460098.505148
	GGA+U (FM)	6.3149	171.3093	4.8513	-460093.734411
	Autres (GGA_WC)	6.23 [7]	195.55 [7]	5.55 [7]	-
	Autres (GGA+U)	6.31 [7]	171.82 [7]	5.20 [7]	-
	Exp.	6.252 [6]	-	-	-
	Exp.	6.24 [8]	-	-	-
<b><math>\text{Rh}_2\text{FeSn}</math></b>	GGA (FM)	6.2661	180.7244	3.9135	463203.883175
	GGA+U(AFM-II)	a=b=4.4140 c=21.9399	180.9878	4.3957	463198.791855
	Autres	-	-	-	-
	Exp.	-	-	-	-

Afin de calculer les différentes propriétés de nos composés à l'état fondamental, nous avons réalisé une optimisation de paramètre de réseau. Cette optimisation consiste à ajuster les courbes par une équation d'état. Dans notre étude, nous avons utilisé l'équation d'état de Murnaghan [9]. L'énergie totale, le paramètre de maille à l'équilibre, le module de compressibilité ainsi que sa dérivée de la phase magnétique la plus stable pour les trois composés en utilisant la GGA et la GGA +U, sont présentés dans le tableau III.9 avec les résultats théoriques et expérimentaux disponibles.

D'après les résultats obtenus, nous avons remarqué que nos résultats sont en accord avec les résultats expérimentaux disponibles (pour le composé  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$ ) et ceux trouvés dans la littérature. La valeur du module de compressibilité (B) calculé par GGA + U pour le composés  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  est plus proche à l'expérimental que la valeur calculé par GGA.

### III.5 Propriétés magnétiques

#### III.5.1 Le moment magnétique

Dans ce qui suit, nous allons étudier le comportement magnétique pour les différents composés avec des différentes concentrations des électrons de valence. Le tableau III.10 suivant regroupe les résultats et les valeurs obtenues pour le moment magnétique total et local en ( $\mu_B$ ) à l'équilibre pour les composés  $\text{Rh}_2\text{CrSn}$ ,  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  et  $\text{Rh}_2\text{FeSn}$  en utilisant les deux approches GGA et GGA+U. En plus, nous citons aussi des résultats obtenus par d'autres travaux.

Le moment magnétique dans les matériaux résulte de la somme des moments partiels des différents éléments et du moment de la zone interstitiel. Le moment magnétique total obtenu dans les deux approximations utilisées et les phases magnétiques considérées sont indiquées dans le tableau III.10.

Le magnétisme dans ces composés est dû en premier lieu à l'atome TM car c'est le principal contributeur au moment total. Ainsi l'atome Rh présente une petite contribution au moment magnétique total. Les moments magnétiques de l'atome de Mn obtenus avec GGA pour le

composé  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  sont plus proches aux résultats expérimentaux que celle obtenus par GGA+U.

Composés	$M_{tot}$	$M_{Rh}$	$M_{TM}$	$M_{Sn}$
$\text{Rh}_2\text{CrSn}$ (GGA+U_FM)	4.14	0.34	3.25	-0.03
$\text{Rh}_2\text{CrSn}$ (GGA_FM)	3.94	0.34	3.00	-0.01
Autre	-	-	-	-
$\text{Rh}_2\text{MnSn}$ (GGA+U_FM)	5.05	0.49	4.02	-0.02
$\text{Rh}_2\text{MnSn}$ (GGA_AFM-I)	0.00	0.43	3.78	-0.01
$\text{Rh}_2\text{MnSn}$ (GGA_FM)	4.79	0.43	3.78	-0.01
Autre (GGA_FM)	4.72	0.43	3.81	-0.01
Autre (GGA+U_FM)	5.18	0.93	3.69	-0.10
Exp. [6]	4.51	0.38	3.77	-0.01
$\text{Rh}_2\text{FeSn}$ (GGA+U_AFM-II)	0.00	0.31	3.35	0.00
$\text{Rh}_2\text{FeSn}$ (GGA_FM)	3.55	0.20	3.13	-0.004
Autre	-	-	-	-

**Tableau III.10:** Le Moments magnétiques en ( $\mu_B$ ) de  $\text{Rh}_2\text{TMSn}$  (TM=Cr, Mn et Fe) obtenus par GGA et GGA+U comparer avec d'autre résultat

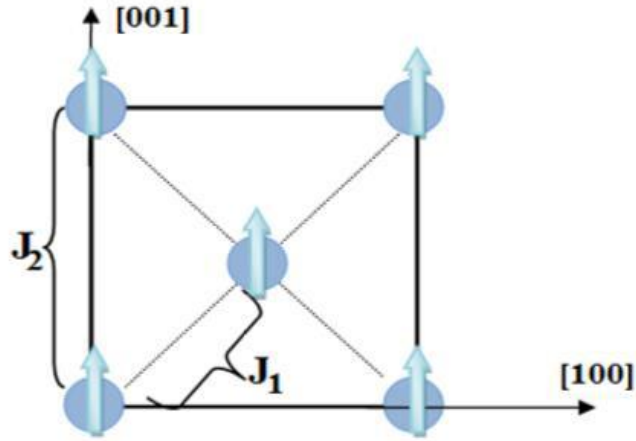
### III.5.2 Les interactions d'échange et la température de Curie

La différence d'énergie entre la configuration de spin parallèle et spin antiparallèle est définie comme l'énergie d'échange. L'idée est de calculer les énergies totales pour les différents arrangements magnétiques et les intervenir dans le modèle de Heisenberg. Dans ce modèle, l'Hamiltonien s'écrit comme

$$H = - \sum_{ij} \vec{s}_i \vec{s}_j J_{ij} \quad (\text{III.2})$$

Où  $i$  et  $j$  sont les sites des spins  $S$  et  $J_{ij}$  sont les interactions d'échange

En 1983, Kubler et al [10] ont réussi à calculer les interactions d'échange dans les matériaux full Heusler par l'approche de différence d'énergie. Cette approche est basée sur le modèle de Heisenberg. Les couplages premiers proches voisins ( $J_1$ ) et les couplages seconds proches voisins ( $J_2$ ). La Figure III.8 présente le couplage premier proche voisin ( $J_1$ ) et second proche voisin ( $J_2$ ). Ainsi ( $S_i$ ) est considéré comme le moment magnétique de l'atome occupant le site  $i$ . Cette approche est généralement appliquée dans les cas des composés à moment magnétique localisé.



**Figure III.8 :** couplage premier proche voisin ( $J_1$ ) et second proche voisin ( $J_2$ )

Pour calculer les interactions d'échange  $J_1$  et  $J_2$ , nous devons étudier trois différents arrangements magnétiques FM, AFM-I et AFM-II.

$$J_1 = \frac{1}{32S^2} (E_{AFM-I} - E_{FM}) \quad (III.3)$$

$$J_2 = \frac{1}{96S^2} (4E_{AFM-II} - 3E_{AFM-I} - E_{FM}) \quad (III.4)$$

Après avoir calculé les interactions d'échange  $J_1$  et  $J_2$  et à l'aide de modèle de Heisenberg, nous avons calculé la température de Curie des deux composés ( $Rh_2CrSn$  et  $Rh_2MnSn$ ) à l'aide de la relation suivante:

$$T_C = 2S(S+1) \frac{12J_1 + 6J_2}{3K_B} \quad (III.5)$$

L'étape qui suit les calculs des interactions d'échange, est l'estimation de la température de Néel, pour l'approche de différence d'énergie, seuls les deuxièmes proches voisins, sont pris en compte dans le calcul de la température de Néel.

$$T_N = \frac{4S(S+1)}{K_B} J_2 \quad (\text{III.5})$$

Les résultats des interactions d'échange  $J_1$  et  $J_2$  et température de Curie pour  $\text{Rh}_2\text{CrSn}$  et  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  et de Néel pour  $\text{Rh}_2\text{FeSn}$  calculé par GGA+U sont regroupés dans le tableau III.11

Nos calculs (GGA+U)					Autre	
	$J_1$ (mev)	$J_2$ (mev)	$T_c$ (K)	$T_N$ (k)	$T_c$ (K)	$T_N$ (k)
<b><math>\text{Rh}_2\text{CrSn}</math></b>	0.487	0.073	674	-	-	-
<b><math>\text{Rh}_2\text{MnSn}</math></b>	0.084	0.214	360	-	410 [11]	-
<b><math>\text{Rh}_2\text{FeSn}</math></b>	-3.874	-0.0005	-	338	-	-

**Tableau III.11** Interactions d'échange  $J_1$  et  $J_2$  et température Curie pour  $\text{Rh}_2\text{CrSn}$  et  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  et de Néel pour  $\text{Rh}_2\text{FeSn}$  calculé par GGA+U

Les deux constants d'échange  $J_1$  et  $J_2$  sont positives pour  $\text{Rh}_2\text{CrSn}$  et  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  du fait que ces composés se stabilisent dans une configuration FM.  $J_1$  et  $J_2$  sont négatives pour  $\text{Rh}_2\text{FeSn}$  du fait que ce composé se stabilise dans une configuration AFM. Ainsi, nous pouvons clairement remarquer que  $J_1$  constitue la partie majeure des interactions d'échange des composés  $\text{Rh}_2\text{CrSn}$  et  $\text{Rh}_2\text{FeSn}$  et la partie mineure pour le composé  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$ . On note que la température de Curie de  $\text{Rh}_2\text{MnSn}$  calculé par GGA+U est très proche à la valeur expérimentale.

## Conclusion générale

Dans ce mémoire, nous avons étudié les propriétés structurales et magnétiques de  $Rh_2TMSn$  (TM=Cr, Mn, Fe) en utilisant la méthode FP-LAPW (Full Potential Linearized Augmented Planes waves) basé sur la DFT implémentée dans le code de calcul Wien2k. Pour le potentiel d'échange et de corrélation, nous avons utilisé l'approximation (GGA) et (GGA+U) pour bien tenir en compte les fortes corrélations dans les orbitales  $3d$  de Mn et les orbitales  $4d$  de Rh.

Nous avons commencé par étudier la stabilité chimique des trois composés dans la structure cristalline  $L2_1$ , les résultats montrent qu'ils sont stables dans cette structure et le composé  $Rh_2CrSn$  est le plus stable. Nous avons aussi étudié l'effet de la corrélation électronique sur la stabilité magnétique pour les trois phases magnétiques (FM, AFM-I et AFM-II). Le calcul GGA montre bien que la phase magnétique la plus stable est la phase ferromagnétique pour les composés  $Rh_2CrSn$  et  $Rh_2FeSn$ . Pour le composé  $Rh_2MnSn$  la phase AFM-I est la plus stable. Le calcul GGA+U montre que les deux matériaux  $Rh_2CrSn$  et  $Rh_2MnSn$  se stabilisent dans la phase ferromagnétique tandis que pour le  $Rh_2FeSn$ , la phase AFM-II est la plus stable. Ces derniers résultats sont en accord avec les résultats expérimentaux disponibles.

A l'aide de la méthode de différence d'énergies, nous avons réussi à calculer les interactions d'échange et d'estimer la température de Curie des composés  $Rh_2CrSn$  et  $Rh_2MnSn$  et la température de Néel pour le composé  $Rh_2FeSn$ .

Une perspective intéressante est d'étudier l'effet de la corrélation électronique sur les propriétés électroniques et élastiques.

## Références

- [1] P. Blaha, K. Schwarz, G.K.H. Madsen, D. Kvasnicka, J. Luitz, WIEN2k, An Augmented Plane Wave Plus Local Orbitals Program for Calculating Crystal Properties, Vienna University of Technology, Austria, 2012.
- [2] J.P. Perdew, K. Burke, M. Ernzerhof, Physical Review Letters, 77 (1996) 3865-3868.
- [3] S. Blügel, G. Bihlmayer, Forschungszentrum Jülich GmbH, (2006) 85-129.
- [4] F. Benkhelifa, A. Lekhal, S. Méçabih, B. Abbar, B. Bouhafs, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 371 (2014) 130-134.
- [5] D. Vanderbilt, R. King-Smith, Physical Review B, 48 (1993) 4442.
- [6] J.C.J.P.R.B. Suits, 14 (1976) 4131.
- [7] S. Berri, D. Maouche, M. Ibrir, F. Zerarga, L. Louail, Y.J.P.B.C.M. Medkour, 418 (2013) 58-64.
- [8] Y. Adachi, H. Morita, T. Kanomata, A. Sato, H. Yoshida, T. Kaneko, H. Nishihara, Journal of Alloys and Compounds, 383 (2004) 37-39.
- [9] F.D. Murnaghan, Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 30 (1944) 5390.
- [10] J. Kübler, A. William, C.J.P.R.B. Sommers, 28 (1983) 1745.
- [11] S. Dhar, A. Grover, S. Malik, R.J.S.S.C. Vijayaraghavan, 33 (1980) 545-547.

## ملخص

في هذا العمل، قمنا بدراسة نظرية للخواص البنوية والمغناطيسية للمركبات  $Rh_2TMSn$  (TM=Cr, Mn et Fe). أجريت هذه الدراسة بواسطة طريقة FP-LAPW، في إطار نظرية الكثافة الوظيفية (DFT)، والتي هي مدرجة ضمن برنامج الحساب Wien2k. بالنسبة لكمون التبادل والارتباط، استخدمنا تقريب التدرج المعمم (GGA) و (GGA + U) لمراعاة الارتباطات القوية في مدارات  $3d$  لـ Mn و  $4d$  لـ Rh. أولاً، قمنا بدراسة الاستقرار الكيميائي للمركبات الثلاثة في التركيب البلوري  $L2_1$ . ثانياً، درسنا تأثير الارتباط الإلكتروني على الاستقرار المغناطيسي للهيئات المغناطيسية الثلاث (FM و AFM-I و AFM-II). قيم الشبكة، ومعاملات الضغط والعزوم المغناطيسية للهيئة المغناطيسية الأكثر استقراراً تم حسابها من خلال تقريب GGA و GGA + U. باستخدام طريقة فرق الطاقة، تمكنا من حساب تفاعلات التبادل وتقدير درجة حرارة كوري لـ  $Rh_2MnSn$  و  $Rh_2CrSn$  ودرجة حرارة نيل لمركب  $Rh_2FeS$ .

الكلمات المفتاحية:  $Rh_2TMSn$  (TM=Mn, Cr et Fe)، نظرية الكثافة الوظيفية، تقريب التدرج المعمم، تقريب التدرج المعمم + الارتباط الإلكتروني، طريقة الامواج المستوية المتزايدة خطياً، Wien2k، الخواص المغناطيسية.

## Résumé

Dans ce travail, nous avons présentés une étude théorique des propriétés structurale, et magnétique des composés  $Rh_2TMSn$  (TM=Cr, Mn et Fe). Cette étude est réalisée par la méthode FP-LAPW (Full Potential Linearized Augmented Planes waves), dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité DFT implémentée dans le code de calcul Wien2k. Pour le potentiel d'échange et de corrélation, nous avons utilisé l'approximation du gradient généralisée (GGA) et (GGA+U) pour bien tenir en compte des fortes corrélations dans les orbitales  $3d$  de Mn et les orbitales  $4d$  de Rh. Nous avons commencé par étudier la stabilité chimique des trois composés dans la structure cristalline  $L2_1$ . Nous avons présenté l'effet de la corrélation électronique sur la stabilité magnétique pour les trois phases magnétiques (FM, AFM-I et AFM-II). Les paramètres de maille optimisés, les modules de compressibilité et les moments magnétiques pour les phases magnétiques les plus stables sont calculé par les deux approche GGA et GGA+U. À l'aide de la méthode de différence d'énergies, nous avons réussi à calculer les interactions d'échange et d'estimer la température de Curie des composés  $Rh_2MnSn$  et  $Rh_2CrSn$  et la température de Néel pour le composé  $Rh_2FeSn$ .

**Mots clés :**  $Rh_2TMSn$  (TM=Mn, Cr et Fe), DFT, GGA, GGA+U, FP-LAPW, Wien2k, propriétés magnétiques.

## Abstract

In this work, we have presented a theoretical study of structural and magnetic properties of  $Rh_2TMSn$  (TM = Cr, Mn and Fe) compounds. This study is conducted by FP-LAPW (Full Potential linearized Augmented Planes waves) method, in the frame work of the density functional theory (DFT), which is implemented in the Wien2k calculation code. For the exchange and correlation potential, we have used the generalized gradient approximation (GGA) and (GGA+U) to take into account the strong correlations in  $3d$  orbitals of Mn and  $4d$  orbitals of Rh. First, we have studied the chemical stability of the three compounds in the  $L2_1$  crystal structure. Second, we have investigated the effect of electronic correlation on magnetic stability for the three magnetic phases (FM, AFM-I and AFM-II). The optimized lattice parameters, bulk moduli and magnetic moments for the most stable magnetic phases are calculated by the two approaches GGA and GGA + U. Using the energy difference method, we were able to calculate the exchange interactions and estimate the Curie temperature of the  $Rh_2CrSn$  and  $Rh_2MnSn$  compounds and the Néel temperature for the  $Rh_2FeSn$  compound.

**Key Words:**  $Rh_2TMSn$  (TM =Cr, Mn and Fe), DFT, GGA, FP-LAPW, Wien2k, magnetic properties.