MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITÉ MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU

FACULTÉ DES SCIENCES
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE

Mémoire de master-LMD

SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE
OPTION : Nanophysique

Présentée par :
Benchabane Thinhinane

Étude ab-initio des propriétés magnétique de l'alliage FePt $L1_2$

---

soutenu le / /2019

Devant le jury d'examen composé de :

UMMTO	présedent
UMMTO	Rapporteur
UMMTO	Examinateur

Remerciements

Ce travail a été réalisé au Laboratoire de Physique et Chimie Quantique (LPCQ) de l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou.

Je tiens à exprimer mes plus vifs remerciements à Monsieur BRAHIMI Samy d'avoir bien voulu m'encadrer . Il a dirigé ce travail avec beaucoup de patience et de compétence. Ses remarques ont été précieuses.

Je lui exprime ma gratitude pour ses orientations et pour son aide dans la rédaction du mémoire et l'interprétation des résultats.

Mes remerciements s'adressent aussi à Monsieur BOUZAR Hamid directeur du LPCQ , pour avoir mis à notre disposition les moyens et conditions nécessaires pour la réussite de notre stage de master .

Je remercie également tous mes collègues et amies et tout ceux qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

Mes sincères remerciements à tous les membres de ma famille en particulier mes parents qui n'ont jamais cessé de croire en moi et de m'encourager, mes soeurs, mes frères, pour leur soutien et leur aide tout au long de mes études.

Dédicaces

Je dédie ce travail à :

Mes très chers parents,

Mes sœurs Katia et Maissa et Rima,

Mes frères Lounes, Belkaceme .

Table des matières

Introduction générale **1**

1 Formalisme des calculs ab-initio et méthodologie **2**

1.1 Introduction 2

1.2 Equation de Schrödinger 2

1.3 Aproximation de Born-Oppenheimer 3

1.4 Aproximation du champ outo-cohérent 3

1.4.1 Approximation de Hartree 3

1.4.2 Approximation de Hartree-fock 4

1.5 Approximation de Thomas-Fermi 5

1.6 Fondements de la Théorie de la Fonctionnelle de la Densité 5

1.6.1 Théorèmes de Hohenberg et Kohn 6

1.6.1.1 Premier théorème 6

1.6.1.2 Deuxième théorème 6

1.6.2 Équation de Kohn-sham 6

1.7 Approximation de la fonctionnelle d'échange-corrélation 8

1.7.1 Approximation de la densité locale (despin)(L(S)DA) 8

1.7.2 Aproximation du gradient généralisé (GGA) 8

1.8 pseudopotentiels 8

1.8.1 Le code de calcul VASP 9

1.9 conclusion 9

2 Étude des propriétés magnétiques du volume de l'alliage FePt $L1_2$ **10**

2.1 Introduction 10

2.2 phase préliminaire 11

2.3 Propriétés magnétiques et structurales de l'alliage FePt $L1_2$ 14

2.3.1 Fe_3Pt 14

2.3.2 $FePt_3$ 15

2.4 Conclusion 18

3 Étude des propriétés magnétiques du surface de l'alliage FePt $L1_2$ 19

3.1 Introduction 19

3.2 Surfaces (001) de l'alliage FePt $L1_2$ 19

3.2.1 Surfaces de Fe_3Pt $L1_2$ 20

3.2.2 Surfaces de $FePt_3$ $L1_2$ 23

3.3 Conclusion 26

Table des figures

1.1 Processus itératif "self consistant" permettant de résoudre les équations de Kohn et Sham 7

2.1 Maille conventionnelle de l'alliage FePt $L1_2$. Les sphéres rouges et mgentas représentent respectivement les atomes de Fe et Pt 10

2.2 Influence du nombre de points k sur l'énergie totale de l'alliage $FePt$ $L1_2$ en volume : (a)alliage Fe_3Pt ; (b) alliage $FePt_3$ 12

2.3 Énergie totale de l'alliage $FePt$ $L1_2$ en volume , en fonction de l'énergie de coupure : (a) alliage Fe_3Pt ; (b) alliage $FePt_3$ 13

2.4 Énergie en fonction du paramètre de maille cubique pour du Fe_3Pt 14

2.5 Densités d'états partielles de l'alliage $Fe3Pt$. La ligne verticale représente le niveau de Fermi 15

2.6 Énergie en fonction du paramètre de maille pour le $FePt_3$ 17

2.7 $FePt_3$ $L1_2$ antiferromagnétique (AFM-II) . Les sphéres rouges et magentas représentent respectivement les atomes de Fe et de Pt . Les nombres 1,2,3,4,5 et 6 référent aux atomes inéquirealents 17

2.8 Densités d'états partielles de l'alliage $FePt_3L1_2$. La ligne verticale représente le niveau de Fermi 18

3.1 Variation de l'énergie totale des slabs (001) de l'alliage FePt$L1_2$, en fonction de l'épaisseur du vide (d). 20

3.2 Super-cellules utilisées pour les calculs de surfaces dans le Fe_3Pt $L1_2$.À gouche :slab(001), surface terminaison Fe . À droite : slab (001) , surface trminaison mixte . Les sphéres rouges et magentas représentent respectivement les atomes de Fe et Pt . 21

3.3 Densités d'états électroniques projetées par atome pour les surfaces de l'alliage Fe_3Pt : (a) surface pure ; (b) surface mixte. 23

3.4 Super-cellules utilisées pour les calculs de surfaces dans le FePt$L1_2$.la cellule à gouche présente la surface mixte,et la cellule à doite présente la surface pure . . 24

3.5 Densités d'états électroniques projetées par atome pour les surfaces de l'alliage Fe_3Pt : (a) surface pure ; (b) surface mixte. 26

Liste des tableaux

2.1 Propriétés physiques du Fe (cc) et Pt(cfc).Le paramètre de maille(a) et le moment magnétique par atome(m)y sont donnés. Les valeurs entre parenthèses représentent les résultats théoriques et expérimentaux.. 11
2.2 Les valeurs de l'énergie totale du $FePt_3$ dans le cas antiferromagnétique et ferromagnitique 16
2.3 profile magnétique de l'alliage $FePt_3$ antiferromanétique , en volume 16

3.1 Profile magnétique de la surface mixte 21
3.2 Profile magnétique de la surface pure 22
3.3 Profile magnétique de la surface mixte 25
3.4 Profile magnétique de la surface pure 25

Introduction générale

De nos jours, les alliages binaires font objet de beaucoup d'attention de la part de la communanté scientifique. Effectivement, leurs propriétés interéssantes notamment magnétiques, font d'eux des candidats potentiels pour diverses applications. particuliérament dans le domaine du stockage magnétique d'information de haute densité. Parmi ces matériaux nous trouvons le NiPt, FePd, CoPt et FePt .Dans le cadre de ce travail de master, nous nous intéresserons à ce dernier cet alliage est très attractif, pas seulement dans le domaine de l'enregistrement d'information mais aussi dans le domaine médical, sous forme de nanoparticules(diaguastic et traitement) [1–4].

Selon le diagramme de phase du FePt [5], nous distinguons trois phases ordonnées de cet alliage , $FePt_3$ et Fe_3Pt ($L1_2$ cubique) et FePt($L1_0$ tétragonale).Sons sa structure tétragonale $L1_0$, le FePt présente une énorme énergie d'anisotropie magnétique (MAE) de l'ordre de [2.7-3.9] meV [6–10] . la structure $L1_0$du FePt a fait objet de plusieurs études théoriques et expérimentales [11–21] . Nous nous proposons dans le coutexte de ce travail d'étudier la structure $L1_2$ sous ses deux variantes Fe_3Pt et $FePt_3$ qui présentent des stoechiométries différentes .

En effet , dans le Fe_3Pt nous avons concentration de 75 et 25 respectivement pour le Fe et le Pt , alors que l'inverse se produit dans le cas du $FePt_3$.

Ce mémoire comporte trois chapitres . Dans le premier nous donnerons un bref operçu concernant la théorie de la fonctionnelle de la Densité (DFT) , sur laguelle reposent les calculs ab-initio .

Le second chapitre quant à lui sera consacré à l'étude des propriétés structurales et magnétiques des alliagesFe_3Pt et $FePt_3$ en volume .

Dans le troisième chapitre nous étudierons les propriétés magnétiques de surface de ces même alliages (Fe_3Pt et $FePt_3$).

Enfin nous terminerous ce travail par une conclusion générale qui mettra en revue les résultats les plus importants obtenus .

Chapitre 1

Formalisme des calculs ab-initio et méthodologie

1.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous donnerons un bref aperçu sur la théorie de la fonctionnelle de la densité(DFT). C'est la méthode la plus utilisée pour l'étude quantique de la structure électronique de la matière (atomes, molécules, solide), et permet de simplifier énormément le problème à N corps décrit par l'équation de Schrödinger.

1.2 Equation de Schrödinger

Les solides sont constitués par une association d'atomes. Déterminer les états et énergies propres de tels systèmes revient à résoudre l'équation de Schrödinger qui s'écrit :

$$\hat{H}\Psi(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j = E\Psi(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j), \text{ [1]} \tag{1.1}$$

où Ψ et $\hat{H}$ sont réspectivement la fonction d'onde et l'hamiltonien du systéme.

Ce dernier regroupe toutes les contributions cinétiques et intractions coulombiennes :

$$\hat{H}_T = \hat{T}_n + \hat{T}_e + \hat{V}_{n-e} + \hat{V}_{n-n} + \hat{V}_{e-e} \tag{1.2}$$

avec :

$\hat{T}_e = -\frac{\hbar^2}{2}\sum_i \frac{\Delta^2_{\mathbf{r}_i}}{m_e}$:Énergie cinétique des éléctrons.

$\hat{V}_{e-e} = \frac{1}{8\pi\varepsilon_0}\sum_{i\neq j} \frac{e^2 Z_i Z_j}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}$:Ènergie d'interaction éléctrons-éléctrons.

$\hat{V}_{e-n} = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\sum_{i,j} \frac{e^2 Z_i}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j}$:Ènergie d'interaction éléctrons-noyau.

$\hat{T}_n = -\frac{\hbar^2}{2}\sum_i \frac{\Delta^2_{\mathbf{R}_i}}{M_n}$:Énergie cinétique des noyaux .

1. Les lettres en gras dans les équation resvoientà des grandeurs vectorielles.)

$\hat{V}_{n-n} = \frac{1}{8\pi\varepsilon_0}\sum_{i\neq j}\frac{e^2 Z_i Z_j}{|\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j|}$:Ènergie d'interaction noyaux-noyaux

$$\hat{H}_T = -\frac{\hbar^2}{2}\sum_i \frac{\Delta^2_{\mathbf{R}_i}}{M_n} - \frac{\hbar^2}{2}\sum_i \frac{\Delta^2_{\mathbf{r}_i}}{m_e} - \frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\sum_{i,j}\frac{e^2 Z_i}{|\mathbf{R}_i - \mathbf{r}_j|} + \frac{1}{8\pi\varepsilon_0}\sum_{i\neq j}\frac{e^2 Z_i Z_j}{|\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j|} + \frac{1}{8\pi\varepsilon_0}\sum_{i\neq j}\frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \tag{1.3}$$

sous cette forme l'équation de Schrödinger est complexe. De sorte à simplifier sa resolution Max Born et Robert Oppenheimer ont proposé une approximation abrégeaut en question.

1.3 Aproximation de Born-Oppenheimer

L'hamiltonien défini par l'équation (1.3) se simplifie si l'on considère la différence d'inertie entre les électrons, et les particules composant le noyaux ($\frac{m_e}{M_n} << 1$). Les électrons sont ainsi trés mobiles par rapport aux noyaux, et répliquent immédiatement au mouvement des noyaux . C'est l'approximation de Born-Oppenheimer [22] . Ce qui nous amène à sépares le mouvement des électronique du mouvement nucléaires ; c'est-à-dire considères le mouvement des électrons pour des positions fixes des noyaux, et ainsi faire abstraction du terme relatif à l'énergie cinétique nucléaire. La fonction d'onde peut se réécrire sous forme d'un produit de deux fonction d'onde une élecrtonique, $\psi_e(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j)$, et l'autre nucléaire , $\psi_n(\mathbf{R}_j)$.

$$\psi(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j) = \psi_e(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j)\psi_n(\mathbf{R}_j) \tag{1.4}$$

Notous que la fonction d'onde éléctronique dépend paramétriquement des positions des noyaux.

Bien que cette approximation apporte une simplification du pronléme à N corps , l'équation de Schrödinger reste toujours insoluble analytiquement. D'où la nécessite de penser à d'autres formalismes tels que celui de Harteé-Fock, donnaut la fonction d'onde comme une déterminant de slater.

1.4 Aproximation du champ outo-cohérent

1.4.1 Approximation de Hartree

Cette approximation a été introduite par Hartree en 1928 [23] , Elle consiste à écrire l'Hamiltonien et la fonction d'onde comme étant respectivement, la somme d'Hamiltonien mano-éléctronique et le produit de fonctions d'onde à un électron :

$$\hat{H}_T = \sum_i \hat{h}_i \tag{1.5}$$

et

$$\psi(\mathbf{r}_1, ...\mathbf{r}_N) = \prod_{i=1}^{N} \psi_i(\mathbf{r}_i) \tag{1.6}$$

Cette nouvelle forme d'écrire l'hamiltonien et la fonction d'onde , est due au fait que le mouvement des électrons est non corrélé . Par conséquent,le mouvement des électrons se réduit à la dynamique d'une particule évoluent dans le champ moyen créé par les autres particules. C'est l'approximation du champ moyen. À noter que chaque fonction d'onde mono-éléctronique est solution de l'équation de Schrödinger

$$(-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta_i + V_{eff}(\mathbf{r}))\psi_i(\mathbf{r}) = E_i\psi_i(\mathbf{r}), \tag{1.7}$$

avec

$$V_{eff}(\mathbf{r}) = V_N(\mathbf{r}) + V_e(\mathbf{r}). \tag{1.8}$$

V_N est le potentiel du aux noyaux

$$V_N(\mathbf{r}) = -Z\sum_{\mathbf{R}} \frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{R}|} \tag{1.9}$$

et $V_{el}(\mathbf{r})$ le champ moyen dû aux autres particules constituaut une distribution de négative de charges de densité ρ .

$$V_{el}(\mathbf{r}) = \frac{-e}{4\pi\varepsilon_0}\int \rho(\mathbf{r'})\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r'}|}d\mathbf{r'} \tag{1.10}$$

avec :

$$\rho(\mathbf{r'}) = -e\sum_{i\neq j} |\psi_j(\mathbf{r'})|^2 \tag{1.11}$$

Ces les équations de Hartree . Cette approximation introduit une solution auto-cohérente au problème à N corps . Ce pendant , elle fait abstraction de l'anti-symétrisation de la fonction d'onde due au principe d'exclusion de pauli [24]. C'est Fock [25] en 1930 qui a pris connaissance de cette anomalie, et a proposé une amélioration de la méthode de Hartree.

1.4.2 Approximation de Hartree-fock

La méthode Hartrée-Fack [25]donne la fonction d'onde sous forme d'un déterminant de slater [26] :

$$\Psi(\mathbf{r}_1, s_1, \ldots, \mathbf{r}_N, s_N) = \frac{1}{\sqrt{N!}}\begin{vmatrix} \psi_1(\mathbf{r}_1, s_1) & \cdots & \psi_N(\mathbf{r}_1, s_1) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \psi_1(\mathbf{r}_N, s_N) & \cdots & \psi_N(\mathbf{r}_N, s_N) \end{vmatrix}, \tag{1.12}$$

oú$\frac{1}{\sqrt{N!}}$: est un coefficient de normalisation

Grace à cette méthode , un degré supplémentaire de précision est atteint avec l'émergence d'un terme additionnel dans les équations . Ce terme est relatif à l'interaction d'échange entre spins parallèles uniquement .

$$-\frac{1}{2}\nabla^2\psi_i(\mathbf{r}) - [Z\sum_{\mathbf{R}}\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{R}|}]\psi_i(\mathbf{r}) + [\sum_{i\neq j}\int|\psi_j(\mathbf{r'})|^2\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r'}|}d\mathbf{r'}]\psi i(\mathbf{r})$$

$$-\sum_{i\neq j}\delta_{s_i s_j}\int\psi_j^*(\mathbf{r'})\psi_i(\mathbf{r'})\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r'}|}d\mathbf{r}]\psi_j(\mathbf{r}) = \varepsilon_i\psi_i(\mathbf{r}) \tag{1.13}$$

Cette approximation tient compte partiellement des interactions , comme cité précédement . Elle conduit aussi à des résultats erronés concernant les solides [27] par conséquent , une théorie plus élaborée tenant compte de manière plus exhaustive des interactions électroniques s'impose . Cette théorie s'intitule théorie de la fonctionnelle de la densité (Density Fenctionnal Theory(DFT)).

1.5 Approximation de Thomas-Fermi

Llewellyn Thomas [28] et Enrico Fermi [29] [30] furent les premiers à jeter les balbutiements de la DFT.

En effet , leur formalisme permet d'écrire l'énergie totale en tout que fonctionelle de la densité électronique :

$$E_{TF}[\rho(\mathbf{r})] = \frac{3}{10}(3\pi^2)^{2/3}\int\rho^{5/3}(\mathbf{r})d^3\mathbf{r} + \int V_{ext}(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r})d\mathbf{r} + \frac{1}{2}\int\int\frac{\rho(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r'})}{|\mathbf{r}-\mathbf{r'}|}d\mathbf{r}d\mathbf{r'} \tag{1.14}$$

oú le premier et le deuxième termes sont respectivement l'énergie cinétique des éléctrons, et l'énergie d'interaction des électrons avec un potentiel externe ($V_{ext}(\mathbf{r})$). Quant au troisième terme , il représente la répulsion électrique entre les électrons.

Cette approximation constitue une bonne introduction au cadre théorique développé par Hohenberg , Kohn et Sham [31] [32] en dépit du fait qu'elle présente certaines limites , notamment concernant la description de la liaison moléculaire [33] .

1.6 Fondements de la Théorie de la Fonctionnelle de la Densité

Hohenberg et Kohn [31]ont été à l'origine de la fondation d'un formalisme exact, basé sur la densité électronique. Il est énoncé sous formes de deux théorémes.

1.6.1 Théorèmes de Hohenberg et Kohn

1.6.1.1 Premier théorème

Il existe une application bijective , entre la densité électronique $\rho(\mathbf{r})$et le potentiel externe $V_{ext}(\mathbf{r})$dans lequel baignent les électrons :

$$\rho \leftrightarrow V_{ext}(\mathbf{r}) \tag{1.15}$$

La seule connaissance de la densité électronique de l'état fondamental, permet d'accédés à toutes les propiétès du système de particules en interaction.

1.6.1.2 Deuxième théorème

Puisque toutes les propiétès du système peuvent être déterminées si l'on connait la densité électronique , alors l'énergie peut être écrite sous forme d'une fonctionnelle de cette dernière :

$$E[\rho\mathbf{r}] = F[\rho(\mathbf{r})] + \int V_{ext}(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r})d\mathbf{r}, \tag{1.16}$$

où $F[\rho(\mathbf{r})]$ est la fonctionnelle universelle de Hohenberg et Kohn :

$$F[\rho(\mathbf{r})] =< \psi[\rho(\mathbf{r})]|\hat{T} + \hat{V}_{e-e}|\psi[\rho(\mathbf{r})] > . \tag{1.17}$$

$\hat{V}_{e-e}$ et $\hat{T}$ sont respectivement l'énergie cinétique des électons, et l'énergie potentiel d'interaction électronique .

La fonction $E[\rho\mathbf{r}]$ vérifie un principe variatinnel, à condition que la fontinnelle $F[\rho(\mathbf{r})]$ soit comme :

$$E[\rho(\mathbf{r})] > E[\rho_0(\mathbf{r})] \tag{1.18}$$

Malgré que les théorèmes de Hohenberg et Kohn [31] simplifient énormément l'étude des systèmes électroniques en interaction ; ce pendant un problème de taille reste d'actualité . Ce dernier est relatif à la formulation analytique de la fonctionnelle $F[\rho(\mathbf{r})]$. pour contourner cette difficulté , Kohn et Sham [32]out proposé une approche que se fonde sur trois équations .

1.6.2 Équation de Kohn-sham

Kohn et sham [31] ont en l'idée de faire une analogie entre le système réel d'électrons en interaction , et un système fictif de particules saus interaction . Mais en imposant à ce dernier d'évoluer dans un potentiel effectif V_{eff}, qui est déterminé de tel sorte à ce Le système d'électrons sous interaction soit caractérisé par la densité électronique du système réel .

Cette démarche a conduit Kohn et Sham à proposer trois équation :

- La première définit le potentiel effectif :

$$V_{eff}(\mathbf{r}) = V_{ext}(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r}) + \int \frac{\rho(\mathbf{r'})}{\mathbf{r} - \mathbf{r'}} d\mathbf{r'} + \frac{\delta E_{xc}[\rho(\mathbf{r})]}{\delta \rho(\mathbf{r})} \tag{1.19}$$

  oú le deuxième et le troisième termes sont respectivement , le potentiel de Hartree et le potentiel d'échange et corrélation.
- La seconde utilise le potentiel effectif dans l'optique de déterminer les fonctions d'onde mono-électronique ψ_i

$$[-\frac{1}{2}\nabla_i^2 + Veff(\mathbf{r})]\psi_i(\mathbf{r}) = \varepsilon_i \psi_i(\mathbf{r}) \tag{1.20}$$

- La troisième quant à elle , est relative au calcul de la densité électronique :

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_i |\psi_i(\mathbf{r})|^2 \tag{1.21}$$

Ces équation se résolvent de manière auto-cohérente , en prenant une densité électronique $\rho(\mathbf{r})$ de départ arbitraire , dans le potentiel effectif . La nouvelle densité électronique obtenu à travers les équation (1,20)et (1,21) permet d'avoir une nouvelle forme du potentiel . La procédure est répétée fis qu'à ce qu'il y ait une convergence satisfaisante relativement à la densité électronique.

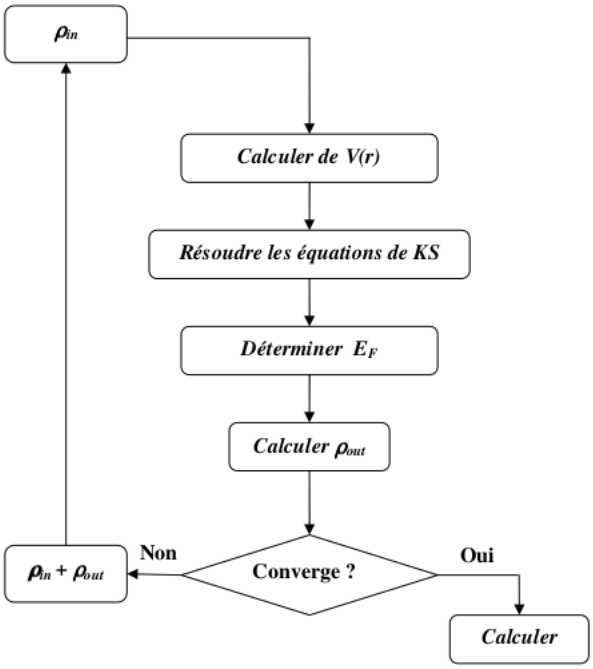

FIGURE 1.1 – Processus itératif "self consistant" permettant de résoudre les équations de Kohn et Sham

Comme on est dans l'impossibilité de donner une expression exacte à l'énergie d'échange et corrélation un recours à des approximations s'impose .

1.7 Approximation de la fonctionnelle d'échange-corrélation

1.7.1 Approximation de la densité locale (despin)(L(S)DA)

Pour approximation l'énergie d'échange et corrélation , Kohn et Sham [32] ont proposé la méthode LDA en se basant sur le modèle d'un gaz électronique uniforme . Dans le cadre de cette approximation , l'énergie d'échange et corrélation est donnée par :

$$E_{xc}[\rho(\mathbf{r})] = \int \rho(\mathbf{r})\varepsilon_{xc}[\rho(\mathbf{r})]d\mathbf{r} \tag{1.22}$$

Lene extension de cette approximation aux système magnétique existe. c'est la LSDA. Il existe plusieurs fonctionnelle dans le cadre de la LSDA. Parmi elles : Hedin et Lundqvist [34] ,von Barth et Hedin [35] et Janak [36].

1.7.2 Aproximation du gradient généralisé (GGA)

Cette méthode consiste à introduire le gradient de la densité électronique dans la description des effets d' échange et corrélation . Cette méthode est plus adaptée à l'étude des système polyélectroniques . La L(S)DA présente certaines incohérences à cause du fait qu'elle considère que la densité électronique est homogène ; ce qui reflète pas la réalité . Elle sous estime le paramètre de réseau des métaux de transition , et donne une structure cubique faces centrées (cfc) pour le fer (Fe) ; alors que la structure cubique centrée est plus stable [37] . C'est cette approximation que nous avons considérer dans le contexte de ce travail . Ainsi dans le cadre de la GGA l'énergie d'échange et corrélation s'écrit en fonction de la densité électronique et de son gradient :

$$E_{xc}^{GGA}[\rho(\mathbf{r})] = \int \rho(\mathbf{r})f_{xc}[\rho(\mathbf{r}), \nabla\rho(\mathbf{r})]d\mathbf{r} \tag{1.23}$$

Il y a plusieurs paramétrisation pour la fonctionnelle d'échange et corrélation D'outres approximations pour la fonctinnelle d'échange et corrélation Perdew [38],Becke [39] et et Perdew, Burke et Ernzerhof [40] [41]. D'autres approximations pour la fonctionnelle d'échange et corrélation existe : Meta-GGA(m-GGA) [42] [43] [44] et les fonctionnelles hybrides [45].

1.8 pseudopotentiels

La méthode des pseudo-potentiels est une technique visant à substituer le potentiel d'interaction coulombien du noyau et les effets des électrons dits « de cœur » considérés comme fortement liés, par un potentiel effectif interagissant uniquement avec les électrons de valence .Ce potentiel est beaucoup moins attractif que celui créé par le noyau. Cette approximation présente un grand intérêt dans le calcul théorique de la structure électronique de la matière, car

elle permet de ne traiter explicitement que les électrons de faible énergie (qui sont constitutifs, par exemple, des liaisons chimiques).Par conséquent , un gain important en terme de temps de calcul et d'espace mémoire.

Il existe plusieurs formes de pseudo-potentiels, le formalisme norme Conservée, découle des critères énoncés par Hamman, Schluter et Bachelet [46].Les pseudo-potentiels ultra-doux(ultra-soft) sont introduit par Vanderbilt [47] .Une autre catégorie de pseudo-potentiels est la méthode PAW(Projector Augmentel Wave), introduite par Blöchl en 1994 [48].

Dans le cadre de ce travail, nous avons opté pour l'approche PAW , car c'est la plus appropriée pour les métaux de transition présentant un fort moment magnétique (comme le Fer (Fe)) [49].

1.8.1 Le code de calcul VASP

VASP ("Vienna Ab initio Simulation Package") [50] est un code permettant de réaliser des calculs ab-initio dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle densité (DFT), en utilisant des pseudo-potentiels et une base d'ondes planes. Il permet de résoudre itértivement les équations de Kohn-Shan . En faisant appel aux positions initiales , une densité de charge est générée . Des fonctions d'onde sont obtenues à partir de cette densité de charge à travers le potentiel effectif . Par la suite , une nouvelle densité est obtenue grace à ces fonctions d'onde , qui servira d'entrée pour l'interaction suivante . Ce shéma de calcul est entreternu jus qu'à ce qu'il y ait une convergence conformément à un critère fixé qui vaut dans notre cas 10^{-8} eV. Une fois ce cycle achevée , une relaxation dynamique intervient via les forces de Hellmann-Feynman. Les calculs de relaxation atomique sont faits en respectant un critère de convergence sur les force(0.01 eV/Å).

Concernant le maillage de la première zone de Brillouin (ZB), il s'effectue suivant le schéma de Monkhorst et Pack pour les calculs en volume , le maillage utilisé est 16x16x16. Par contre dans le cas des surface nous avons utiliser une grille de 16x16x1.

1.9 conclusion

Ainsi,la théorie de la fonctionnelle de la densité qui est très répandue en physique et chimie quantique , simplifie énormément le travail en transformant le problème à N corps en un problème mono-corp. Elle permet d'évaluer finement les propiétès des matériaux à l'échelle atomique , et par conséquent compléter les connaissances expérimentales dans le domaine.

Après une revue générale du soubassement théorique sur lequel se fonde les calculs ab-initio , nous abordons dans chapitre qui suit les propiétès magnétiques et structuralles de l'alliage FePt $L1_2$.

Chapitre 2

Étude des propriétés magnétiques du volume de l'alliage FePt $L1_2$

2.1 Introduction

Cristallographiquement l'alliage binaire FePt se présente sous forme d'une structure L12, qui peut être vue comme une alternance de plans mixtes et purs (de Fe ou de Pt) suivant les trois directions de l'espace . Comme le montre la figure ci-dessous , la maille conventionnelle est cubique avec un motif de quatre atomes .Il existe deux stœchiométrie pour le FePt $L1_2$, à savoir le Fe_3Pt et Le $FePt_3$ (figure 2.1) .

FIGURE 2.1 – Maille conventionnelle de l'alliage FePt $L1_2$. Les sphéres rouges et mgentas représentent respectivement les atomes de Fe et Pt .

Préalablement à tout calcul qui doit être entrepris , une phase préliminaire se rapportant à des calculs tests doit être envisagée.

2.2 phase préliminaire

De sorte à vérifier la validité des pseudo-potentiels choisis , nous avons fait certains calculs tests relatifs au fer (Fe) et au platine (Pt) à l'état massif . Les résultats sont regroupés dans le tableau ci-dessous .

	$a(\text{Å})$	$m(\mu_\beta)$
$Fe(cc)$	2.83(2.86 [51])	2.20(2.22 [52])
$Pt(cfc)$	3,98(3.97 [53] [54])	0(0 [53])

TABLE 2.1 – Propriétés physiques du Fe (cc) et Pt(cfc).Le paramètre de maille(a) et le moment magnétique par atome(m)y sont donnés. Les valeurs entre parenthèses représentent les résultats théoriques et expérimentaux..

Les résultats mis en évidence par nos calculs sont en accordance avec d'autres résultats théoriques et expérimentaux , comme le montre le tableau 2.1 . Par conséquent , nos pseudo-potentiels rendent compte convenablement des propriétés physiques du Fe et du Pt à l'état pur. Nonobstant , ceci est insuffisant pour se prononcer quant à la validité des pseudo-potentiels . Il faut aussi vérifier leur transférabilité . Ceci se fera plus loin.

Aussi , certaines précautions sur le plan numérique doivent être considérées afin de garantir une bonne précision des résultats . Elles sont relatives à l'échantillonnage de la zone de Brillouin (densité de points K) , et à l'énergie de coupure E_{cut} (nombre d'ondes planes nécessaires pour décrire adéquatement un systéme donné) .

Nous avons donc entrepris une étude sur l'énergie totale des alliages Fe_3Pt et $FePt_3$ en volume , en fonction de l'énergie de coupure E_{cut} et du nombre de points k . Via une telle démarche , un gain substantiel en terme de temps de calcul et d'espace mémoire sera possible. À noter que cette optimisation a été faite en considérant un paramètre de maille de référence , qui est celui donné par l'expérience .

Densité de points K

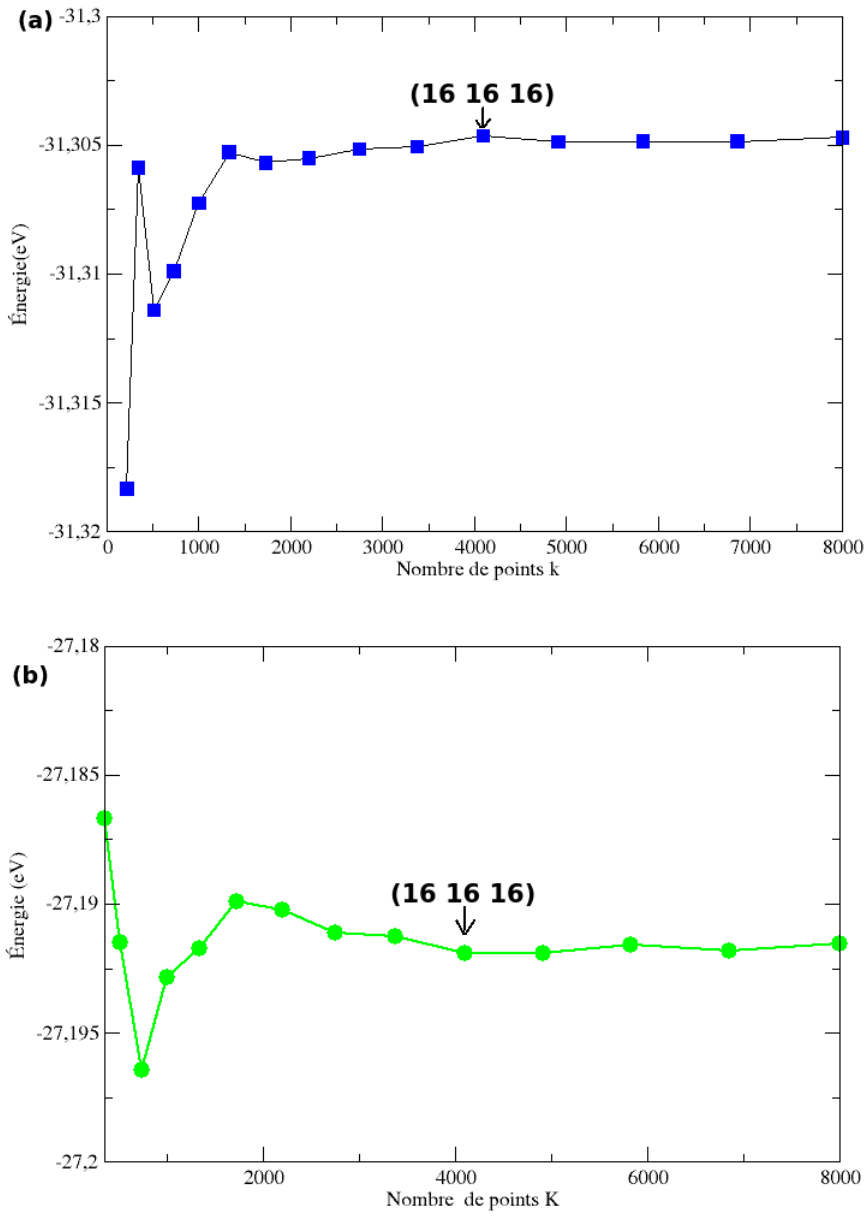

FIGURE 2.2 – Influence du nombre de points k sur l'énergie totale de l'alliage $FePt$ $L1_2$ en volume : (a)alliage Fe_3Pt ; (b) alliage $FePt_3$

Pour un nombre de points k faible , nous constatons une instabilité numérique caractérisée par une variation abrupte de l'énergie . Au fur et à mesure que la densité de points k augmente, une stabilité sur le plan numérique commence à apparaitre jus qu'à avoir un plateau pour l'énergie . Cette dernière converge à partir d'un nombre de points k valant 4096 et ce pour les deux alliage (Fe_3Pt et $FePt_3$) . C'est un maillage correspondant à une grille de (16x16x16) suivant les trois directions de l'espace (kx,ky,kz) respectivement .

Comme au-delà de cette valeur (4096) , l'énergie ne fait que fluctuer , nous estimons donc que l'échantillonnage en question est approprié pour atteindre l'état fondamental du système étudié .

Énergie de coupure E_{cut}

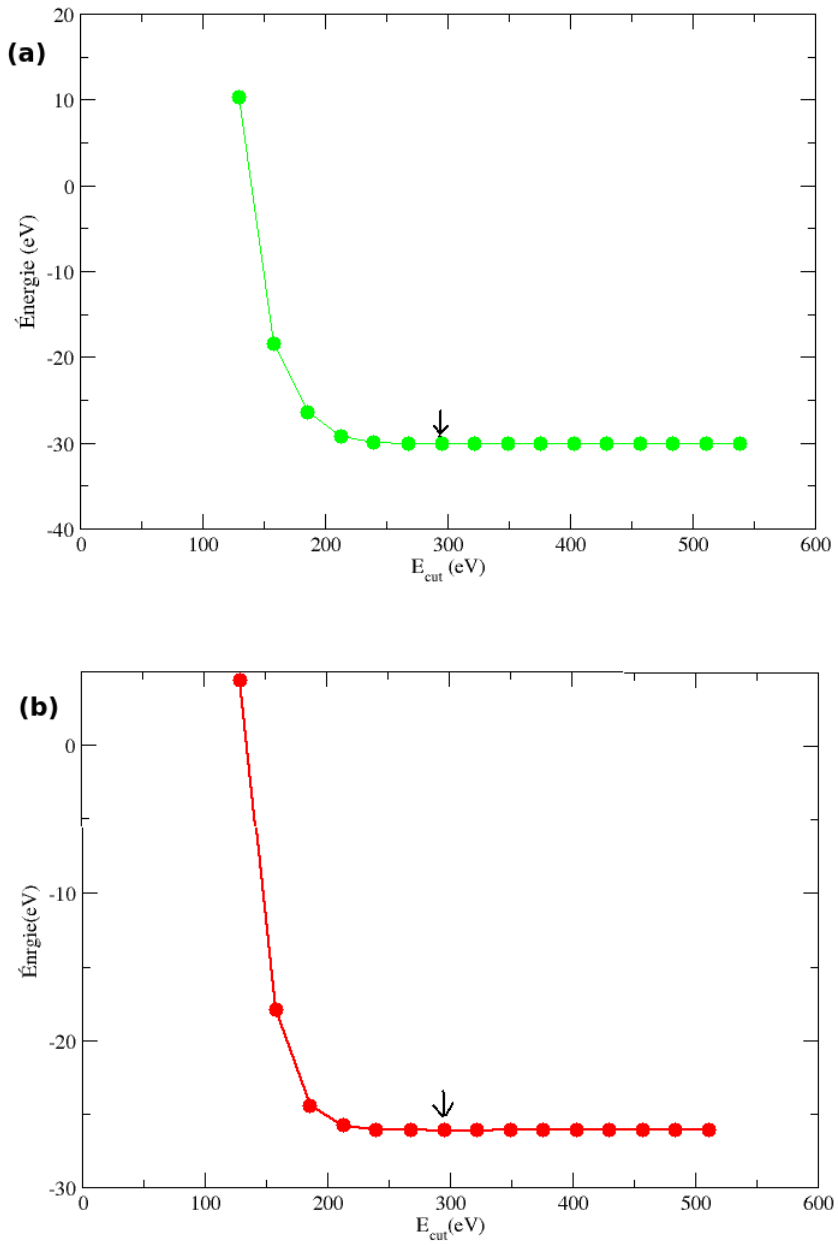

FIGURE 2.3 – Énergie totale de l'alliage $FePt$ $L1_2$ en volume , en fonction de l'énergie de coupure : (a) alliage Fe_3Pt ; (b) alliage $FePt_3$.

Analogiquement au cas précédent , l'énergie est décrite par un plateau qui prend origine à partir d'une énergie de coupure valant 295 eV ; et ce pour les deux cas de figure considérés , à savoir le Fe_3Pt et le $FePt_3$ sous leur structure $L1_2$. Par conséquent , cette valeur permettra d'accéder au minimum de l'énergie . Toutes les ondes planes ayant une énergie cinétique inférieure ou égale à la valeur en question , sont prises en compte dans la description du système .

Ainsi , tout au long de ce travail nous considérons un maillage de 16x16x16 , et une énergie

de coupure de 295 eV s'agissant du volume . Pour ce qui est des surfaces , bien évidemment nous utilisons une grille de 16x16x1 à cause de l'allongement suivant z des super- cellules .

2.3 Propriétés magnétiques et structurales de l'alliage FePt $L1_2$

2.3.1 Fe_3Pt

Afin d'optimiser la structure $L1_2$ de l'alliage $FePt_3$, nous avons entrepris un calcul de l'énergie totale en fonction du paramètre de la maille cubique a . Les résultats obtenus sont mis en valeur dans la figure ci-après .

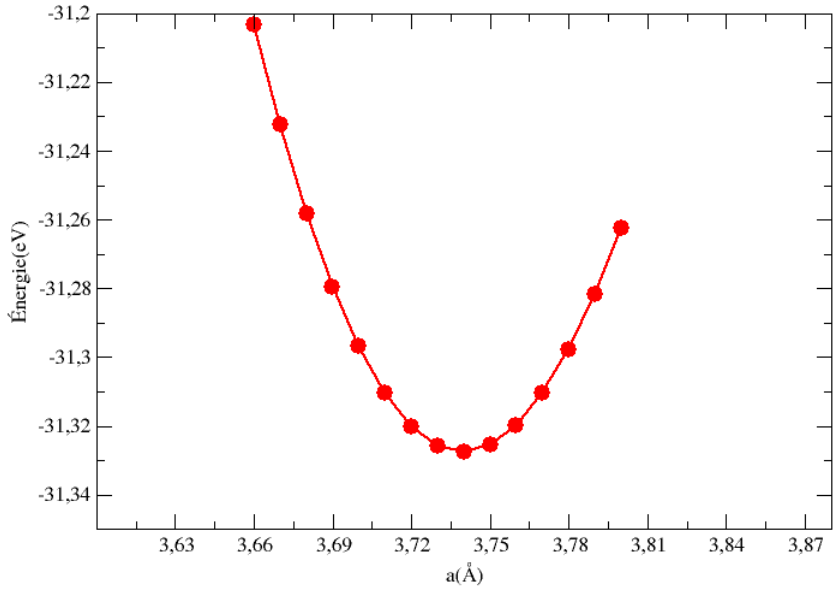

FIGURE 2.4 – Énergie en fonction du paramètre de maille cubique pour du Fe_3Pt .

Ainsi , le minimum d'énergie coincide avec une valeur de 3,74 Å pour le paramètre de maille , Ceci est en concordance parfaite avec d'autre résultats rencontrés dans la littérature, notamment théoriques . Paudyal [55] et al et Sternik et al [56] ont trouvée respectivement un paramètre de maille de 3,70 Å et 3,74 Å conformément à nos prédictions . Notons que nos résultats sont aussi en harmonie avec l'expérience qui donne un paramètre de maille de 3,73 Å [57].

Pour ce qui est du calcul magnétique , il à été entre pris à partir d'une configuration initiale ferromagnétique . Signalons que le calcul à été fait en considérant la structure optimale du Fe_3Pt . Nos résultats mettent la structure mettent en exergue des moments magnétiques de 2,74μ_β et 0,34μ_β respectivement pour les atomes de Fe et de Pt . Pandyal et al [55]et Sternik et al [56] ont trouvée des moments magnétiques pour le Fe(Pt) valant respectivement

2,70μ_β(0,35μ_β) et 2,71μ_β(0,35μ_β) ; ce qui est en phase avec nos résultats . Expérimentalement , Zotove et al [58]ont mis en valeur un moment magnétique moyen de 2,16μ_β par atome , corroborant ainsi nos calculs donnant un moment moyen de 2,12μ_β par atome .

Nous constatons que le moment magnétique du Fe dans le Fe_3Pt (2,74μ_β) est légèrement supérieur à son correspondant dans le Fe massif 2,20μ_β . Ceci est certainement dû au fait que le Fe dans le Fe_3Pt $L1_2$ se trouve dans un environnement riche en Pt. En effet, la présence d'un atome lourd comme le Pt engendre un allongement des liaisons atomique (2,65 Å entre les atomes de Fe et de Pt) ; alors que celles-ci sont légèrement raccourcies dans le Fe massif (2,45 Å entre les atomes de Fe). En conséquence, Il y aura mois d'hybridation et par là même plus d'électrons nos appariés et donc augmentation de moment magnétique .

D'un point de vue structure électronique , nous avons tracé dans la figure 2.7 les densités d'états projetés pour les atomes de Fe et de Pt rentrant dans la composition de l'alliageFe_3Pt $L1_2$. A titre de comparaison , nous avons inclus la structure électronique de l'atome de Fe relatif à l'état massif (pur) . Nous notons que la dissymétrie entre la bande de spins up et la bande de spins dwn , est plus accentue por le Fe issu du Fe_3Pt $L1_2$ en comparaison à son semblable issu du Fe pur . Ce qui est logique puisque le Fe dans le Fe3Pt possède un magnétisme plus prononcé .

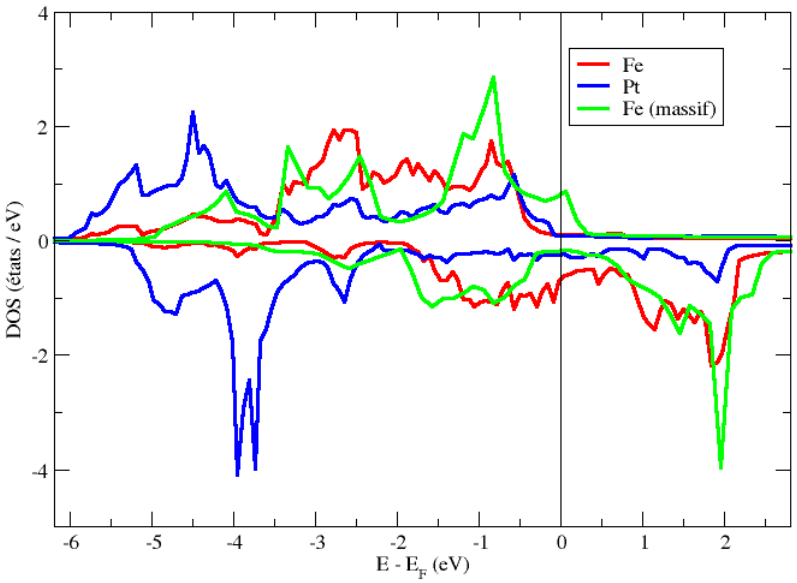

FIGURE 2.5 – Densités d'états partielles de l'alliage $Fe3Pt$. La ligne verticale représente le niveau de Fermi

2.3.2 $FePt_3$

Cette variante de l'alliage FePt $L1_2$ présente expérimentalement [58] , une configuration magnétique antiferromagnétique . De sorte à vérifier ce fait , nous avons entrepris une étude

stabilité entre les configuration ferromagnétique et antiferromagnétique . La résultat est regroupé dans le tableau2.3 .

$FePt_3$	Énergie (eV)
Antiférromagnétique	-54.676865
Ferromagnétique	-27.278595

TABLE 2.2 – Les valeurs de l'énergie totale du $FePt_3$ dans le cas antiferromagnétique et ferromagnitique

Nos calculs donnent l'antiferromagnétisme plus stable que le ferromagnétisme , et ce conformément à l'expérience [58]. Concernant l'ordre antiferromagnétisme, nous distinguons deux types différents pour le$FePt_3$:

- ***phase antiferromagnitique de typeI(AFM-I) :*** les plans (110) ferromagnétique son en interaction antiferromagnétique.
- ***phase antiferromagnitique de type II(AFM-II) :*** les plans (001) ferromagnétique sont en interaction antiferromagnétique .

Dans le contexte de ce travail nous avons considéré la phase AFM-II , car ces le plus simple . Pour simules l'antiferromagnétisme , nous devons prendre une maille magnétique double de la maille géométrique (suivant la direction z dans notre cas car nous nous intéressons à des plans (001) en interaction antiferromagnétique). Similairement au cas précédent , l'optimisation de cette structure s'est faite en considérant l'énergie totale en fonction du paramètre de réseau . Les résultats sont montrés dans la figure 2.6 l'énergie pouvons le constater , à un paramètre de maille valant 3,91 Å ; ce qui donne donc un paramètre de maille magnétique de 7,82 Å conformément à l'expérience [59] résultats sont en phase avec les travaux de Pandyal et al [55]et Sternik et al [56], qui trouvent respectivement 3,86 Å et 3,89Å pour le paramètre de réseau .

Sur le plan magnétique , le calcul à été fait en considérant une configuration initiale antiferromagnétique .

$FePt_3$	Fe_1	Fe_2	Pt_1	Pt_2	Pt_3	Pt_4	Pt_5	Pt_6
moment magnétique(μ_β)	3.32	-3.32	0.15	-0.15	0	0	0	0

TABLE 2.3 – profile magnétique de l'alliage $FePt_3$ antiferromanétique , en volume

Le tableau 2.4 regroupe la contribution de chaque atome au magnétisme totale de la cellule. Nous constatons que le couplage entre les plans (001) est antiferromagnétique (figure 2.7) , Ce qui concorde avec l'expérience [58] [59]. Et aussi avec la théorie [55] . L'atome de Fe dans le

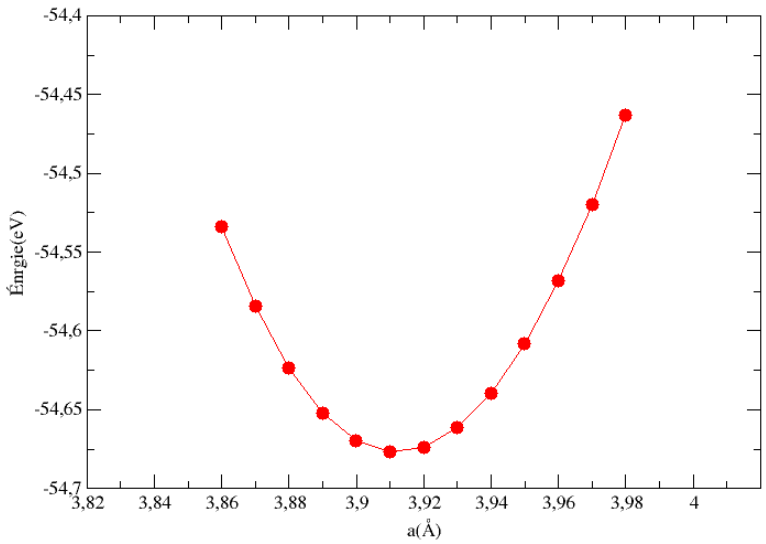

FIGURE 2.6 – Énergie en fonction du paramètre de maille pour le $FePt_3$

$FePt_3$ exhibe un moment magnétique élevé (3,32)comparativement à son correspondant dans le Fe_3Pt qui affiche un moment de 2,74 . comme le Fe dans $FePt_3$ évalue dans un environnement plus riche en Pt , et sachant que le Pt est un gros atome , du coup un allongement plus important des liaisons se produit (2,77 Å) induisant ainsi une accentuation du magnétisme .

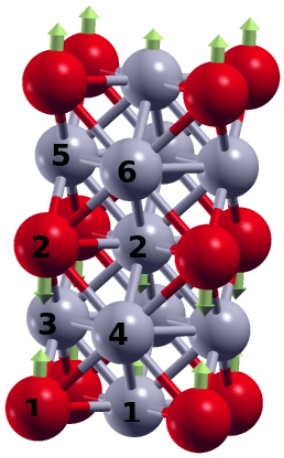

FIGURE 2.7 – $FePt_3$ $L1_2$ antiferromagnétique (AFM-II) . Les sphéres rouges et magentas représentent respectivement les atomes de Fe et de Pt . Les nombres 1,2,3,4,5 et 6 référent aux atomes inéquirealents

Dans la figure 2.8 sont mises en exergue les densités d'états électronique projetées par atome (DOS) , pour la variante antiferromagnétique de l'alliage $FePt$ $L1_2$. Nous avons intégré la structure électronique de l'atome de Fe issu du Fe_3Pt . Nous remarquons que l'exchange splitting (dissymétrie up-dwn) pour l'atome noté Fe_1 est plus prononcé que celui du Fe relatif au Fe_3Pt.

Ceci est dû au fait que le Fe dans le $FePt_3$ présente un moment magnétique plus intense .

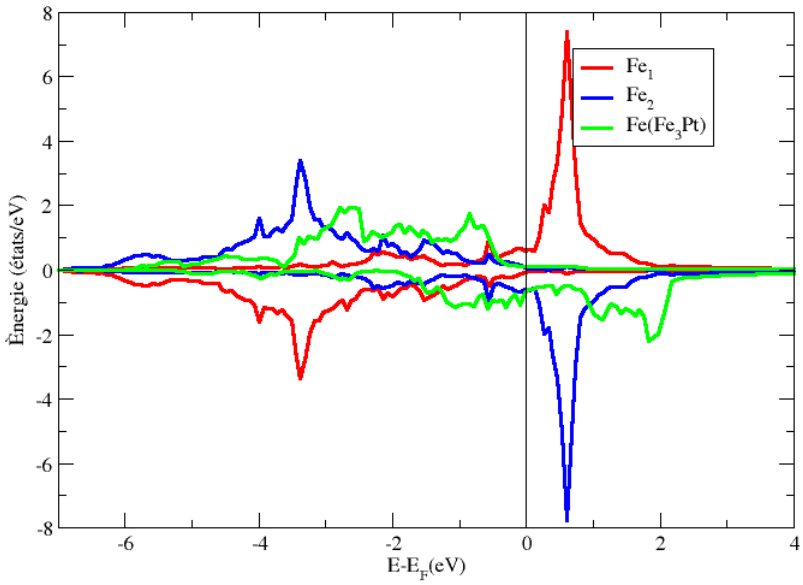

FIGURE 2.8 – Densités d'états partielles de l'alliage $FePt_3L1_2$. La ligne verticale représente le niveau de Fermi

Aussi , nous constatons que la bande de spins up est majoritaire pour l'atome pour l'atome dénoté Fe_1 . Alors qu'elle est minoritaire dans le cas de l'atome étiqueté Fe_2 ; ce qui rend compte de l'interaction antiferromagnétique entre les atomes en question .

Pour compléter ce qui a été dit précédemment , nos pseudo-potentiels sont transférables puisque ils décrivent convenablement les atomes de Fe et de Pt placés dans différents environnements chimiques .

2.4 Conclusion

Notre étude concernant les propriété cristallographiques de l'alliage binaire$FePt$ $L1_2$ sons ces deux variantes , a donné des résultats en parfaite harmonie avec les travaux théoriques et expérimentaux cités dans la littérature .

Sur le plan magnétique , la variante Fe_3Pt $L1_2$ est ferromagnétique comme prédit par l'expérience . Quant à l'autre variante $FePt_3$ $L1_2$, elle présente un ordre antiferromagnétique conformément à l'expérience .

Après l'étude de l'alliage $FePt$ $L1_2$ en volume , Il serait intéressant d'explorer l'effet d'une brisure de symétrie sur le magnétisme de cet alliage . c'est l'objet du chapitre suivant.

Chapitre 3

Étude des propriétés magnétiques du surface de l'alliage FePt $L1_2$

3.1 Introduction

Comme les éléments traités dans le contexte de ce travail sont des métaux de transition , et sachant que ces derniers subissent fortement l'influence du champ cristallin ; il serait donc intéressant de triturer l'environnement autour de ces matériaux . En effet , dans ce chapitre nous explorerons l'impact d'une brisure de symétrie donnant naissance à une surface , sur les propriétés magnétiques de ces métaux .

3.2 Surfaces (001) de l'alliage FePt $L1_2$

Pour étudier les surfaces nous faisons appel à la méthode basée sur les super-cellules . Elle consiste à considérer des condition aux limites périodiques selon deux directions de l'espace, alors que suivant la troisième direction qui dans notre cas est z , les image périodique sont isolées suffisamment par une quantité de vide (nous nous occupons des surfaces (001)) . Comme les surfaces sont des système partiellement isolés (semi-infini) , DFT sont des codes servant exclusivement à l'étude des système infini (périodiques) ; par conséquent une question s'impose : comment doit-on procéder pour traiter de tels systèmes en utilisant de tels codes ? . L'astuce consiste à faire intervenir ce qu'on appelle communément la périodicité artificielle , à travers la technique des super-cellules citée plus haut . Néanmoins , un vide séparant les slabs (empilement de plans atomiques) est inséré suivant la direction selon laquelle sont empilés les plans atomiques ; et ce afin d'éliminer toutes éventuelles interaction entre les slabs adjacents . Si une telle précaution est prise , à ce moment là nous pourrons dire que nous sommes en face de systèmes semi- isolés (surface) . Signalons que la même procédure est aussi adoptée pour l'étude des clusters (amas d'atomes) , qui sont des systèmes isolés.

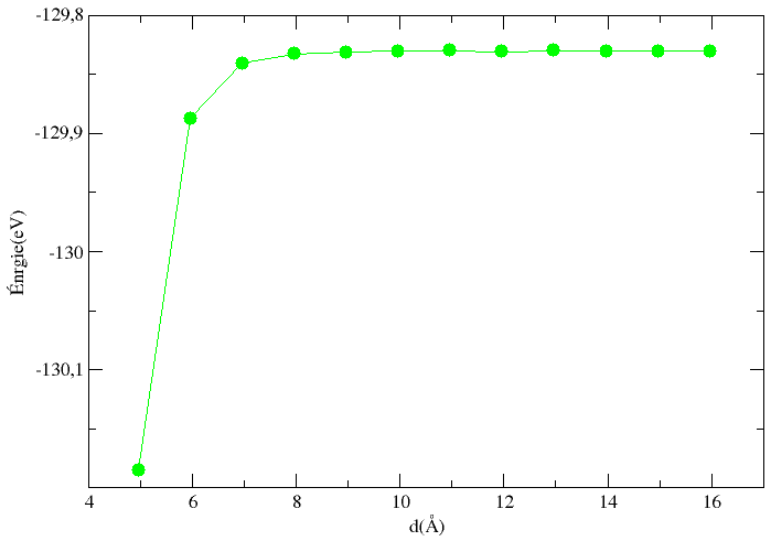

FIGURE 3.1 – Variation de l'énergie totale des slabs (001) de l'alliage FePt$L1_2$, en fonction de l'épaisseur du vide (d).

Bien évidemment, le vide doit être considéré suivant les trois direction de l'espace . Dans la figure 3.1 est donnée l'étude relative à l'optimisation du vide séparant les slabs voisins . Une certaine constance de l'énergie commence à être observée à partir d'une longueur du vide valant 9 Å . Un tel constat nous renseigne sur le fait que pour une épaisseur du vide de 9 Å ou plus , les images mathématiques selon la direction suivant la quelle sont empilés les plans atomiques ne sont sentent plus ; ce qui signifie qu'il n'y a pas d'interaction le long de la direction z . Une marge de sécurité à été considérée pour que le vide ne se rétrécisse pas , vu que les slabs sont complètement relaxés , et que les distances inter-plans peuvent changer en se dilatant . D'où le vide de 15Å que nous avons considéré .

Les cellules de calcul utilisées sont symétriques et contiennent un nombre impaire de plans atomiques . Un nombre de 11 plans atomiques correspondant à une surface convergé à été pris en compte (avec deux atomes dans chaque plan) .

3.2.1 Surfaces de Fe_3Pt $L1_2$

Deux types de surfaces sont envisage ables pour l'alliage Fe_3Pt $L1_2$. Soit le film est terminé par un plans pur de Fe ou mixte de Fe et Pt (l'atome central étant le Fe) , comme le montre la figure 3.2 .

Les calculs magnétique ont été entrepris en considérant le ferromagnétisme . Le tableau 3.1 regroupe les résultats relatif à la surface mixte . À cause de la réduction du nombre de coordination dûe au clivage que nous avons opéré , nous constatons une augmentation de (6,93%) du moment magnétique du Pt est aussi observée pour les mêmes raisons . Au milieu du slab nous retrouvons les propriétés magnétique du volume . Une augmentation de 20,59% pour

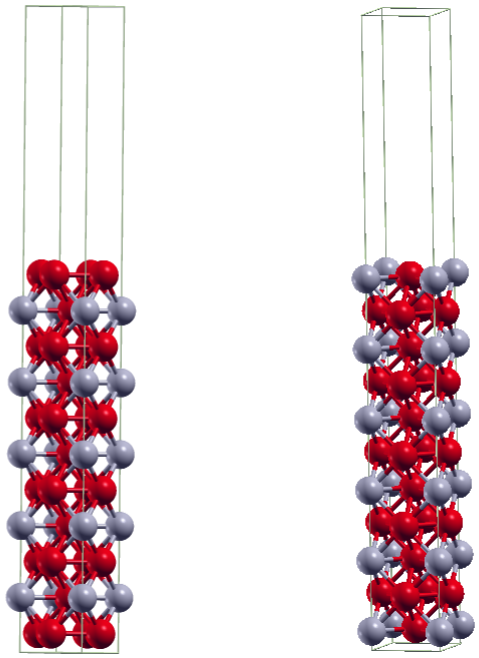

FIGURE 3.2 – Super-cellules utilisées pour les calculs de surfaces dans le Fe_3Pt $L1_2$.À gouche :slab(001), surface terminaison Fe . À droite : slab (001) , surface trminaison mixte . Les sphéres rouges et magentas représentent respectivement les atomes de Fe et Pt .

Plan	Atome	m(μ_β)
S	Fe	2.93
	Pt	0.41
S-1	Fe	2.61
S-2	Fe	2.68
	Pt	0.35
S-3	Fe	2.75
S-4	Fe	2.77
	Pt	0.36
Centre	Fe	2.76

TABLE 3.1 – Profile magnétique de la surface mixte

le moment magnétique du Pt est aussi observée pour les mêmes raisons . Au milieu du slab nous retrouvons les propriétés magnétiques du volume . D'un point de vue cristallographique , nous avons trouvé une contraction des distances en surface , notamment entre les plans de surface et de subsurface . Néanmoins , la surface présente une certaine rugosité due à la différence de taille entre les atomes composant le plan de surface (Fe et Pt) . Le Fe étant moins volumineux, il plus de latitude de se mouvoir.En conséquence , nous obtenons différents taux de contraction

(-14,07 % , -7,58 %) caractérisant respectivement les atomes de Fe et de Pt en surface . Notons qu'en profondeur du slab les propriétés cristallographiques du volume sont recouvrées . Comme en surface nous avons des propriétés différentes de celles du volume , et qu'au milieu du filme nous retrouvons les caractéristiques de l'état solide ; donc une épaisseur de 11 plan atomique est consistante pour simules une surface .Le tableau 3.2 collecte les résultats se rapportant à la surface pur . Le constat est quasiment identique à celui relevé dans le cas de la surface mixte , hormis le fait que la contraction des distances inter-plans en surface est uniforme (-4,81 % est le taux de contraction entre les palans de surface et de subsurface).

Dans la figure 3.3 sont exposées les densités d'états électroniques projetées par atome (DOS) , pour les deux types de terminaisons considérées . Nous remarquons qu'en surface la bande « d » du Fe (S) devient étroite par rapport à celle relative au même atome en volume dans le Fe_3Pt $L1_2$; et ce dans les deux cas de figure envisagées , que ce soit pour la surface mixte ou pure . Ceci s'explique indubitablement par réduction de la coordinence à la suite du clivage opéré sur cet alliage , causant ainsi mois d'hybridation . Par conséquent augmentation de la densité d'états au niveau de Fermi (E_F) , et aussi accentuation magnétisme en surface.

Plan	Atome	m(μ_β)
S	Fe	2.92
S-1	Fe	2.62
	Pt	0.34
S-2	Fe	2.72
S-3	Fe	2.77
	Pt	0.36
S-4	Fe	2.76
Centre	Fe	2.75
	Pt	0.35

TABLE 3.2 – Profile magnétique de la surface pure

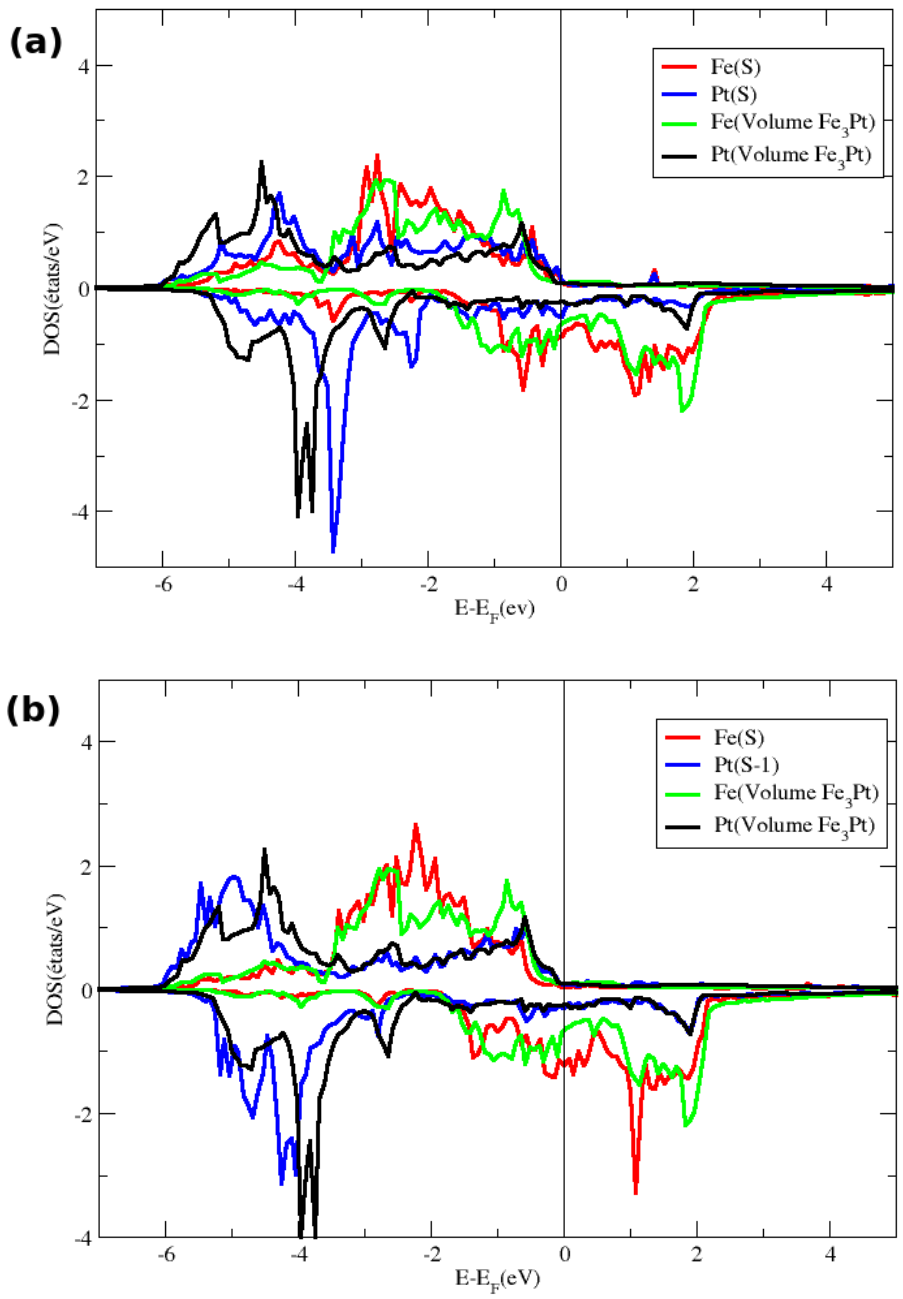

FIGURE 3.3 – Densités d'états électroniques projetées par atome pour les surfaces de l'alliage Fe_3Pt : (a) surface pure ; (b) surface mixte.

3.2.2 Surfaces de $FePt_3$ $L1_2$

Identiquement au cas antérieur , deux types de surfaces sont possibles dans le cadre de l'alliage FePt3 de structure $L1_2$. En effet , soit nous sommes en face d'une terminaison pur (le plan de surface est constitue uniquement d'atomes de Pt) , ou bien une terminaison mixte de Pt et de Fe (l'atome central étant le Pt) .

La figure 3.4 illustre ces deux type de terminaison possibles dans le cas du $FePt_3$ $L1_2$. D'un point de vue magnétique , les calculs ont été entamés à partir d'une conformation initiale

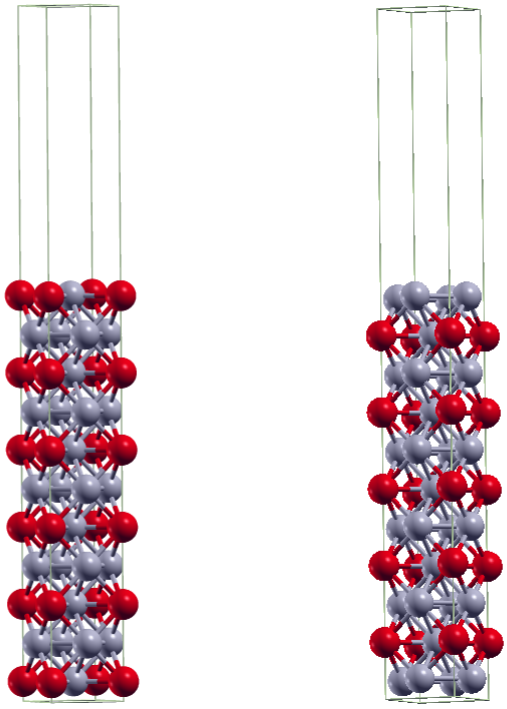

FIGURE 3.4 – Super-cellules utilisées pour les calculs de surfaces dans le FePt$L1_2$.la cellule à gouche présente la surface mixte,et la cellule à doite présente la surface pure

antiferromagnétique . Le tableau 3.3 montre les résultats obtenus pour la surface mixte. Nous relevons une interaction antiferromagnétique entre les plans mixtes empilés selon la direction [001]. pour ce qui est des atomes de Pt occupant les centres des faces , ils présentent des moments magnétique nuls ($0\mu_\beta$). Signalons que le moment magnétique total du film est de $0\mu_\beta$. Sur le plan cristallographique , nous notons différents taux de contraction (-2,10 % , -0,75%) respectivement de surface. Le Fe étant plus léger , donc il se ment plus facilement. Quant à la surface pur , les résultats sont regroupés dans le tableau 3.4. Le résultat est quasi-identique au cas mixte (interaction antiferromagnétique entre les plans mixte), sauf que le moment totale du slab n'est plus nul dans ce cas et vaut ($4{,}48\mu_\beta$) Ce fait est rationnel dans la mesure ou les atomes de Pt (occupant les centres des faces) qui sont pris en sandwich dans le cas précédent, se retrouvent en surface dans le cas présente ; ce qui provoque l'apparition d'un moment magnétique pour ces atomes (coordinence faible). Ajouter à cela, le fait que nous n'ayons pas une compensation deux à deux des moment magnétique à cause du nombre impaire de plans mixtes (en interaction antiferromagnétique) , par conséquent le film en question exhibe un moment total non nul valant 4,48 μ_β) . Aussi , les distances inter-plans (entre la surface et la subsurface) présentent une contraction (-6,80 %)

Plans	Atome	m(μ_β)
S	Fe	3.32
	Pt	0.20
S-1	Pt	0.00
S-2	Fe	-3.32
	Pt	-0.20
S-3	Pt	0.00
S-4	Fe	3.31
	Pt	0.14
centre	Pt	0.00

TABLE 3.3 – Profile magnétique de la surface mixte

plans	atome	m(μ_β)
S	Pt	0.28
S-1	Fe	3.30
	Pt	0.16
S-2	Pt	0.00
S-3	Fe	-3.30
	Pt	-0.14
S-4	Fe	0.00
centre	Fe	3.31
	Pt	0.15

TABLE 3.4 – Profile magnétique de la surface pure

Nous avons tracé dans la figure 3.5 la structure électronique des atomes de Fe en interaction antiferromagnétique , et ce dans les deux cas de figure étudiés . La bande de spins majoritaire pour l'un des atomes et la bande up , tandis que pour l'autre elle coïncide avec la bande dawn ; ce qui rend compte parfaitement de l'interaction antiferromagnétique .

Une remarque pertinente dans le cas des surfaces de $FePt_3$, est que le moment magnétique de l'atome de Fe reste inchangé par rapport au bulk (volume) , alors que la coordinence est faible . Sachant que le moment magnétique du Fe en volume dans le $FePt_3$ est assez élevé (3,32 μ_β) (ce qui est assez proche de la magnitude de l'atome libre ou isolé qui est de (4 μ_β) , et compte tenu de la figure 2.10 exhibant un moment magnétique saturé pour le Fe (bande de spins dawn quasiment vide et inoccupée) ; du coup la réduction du nombre de coordination est sans effet puisqu'à l'origine le moment magnétique de l'atome en question est saturé .

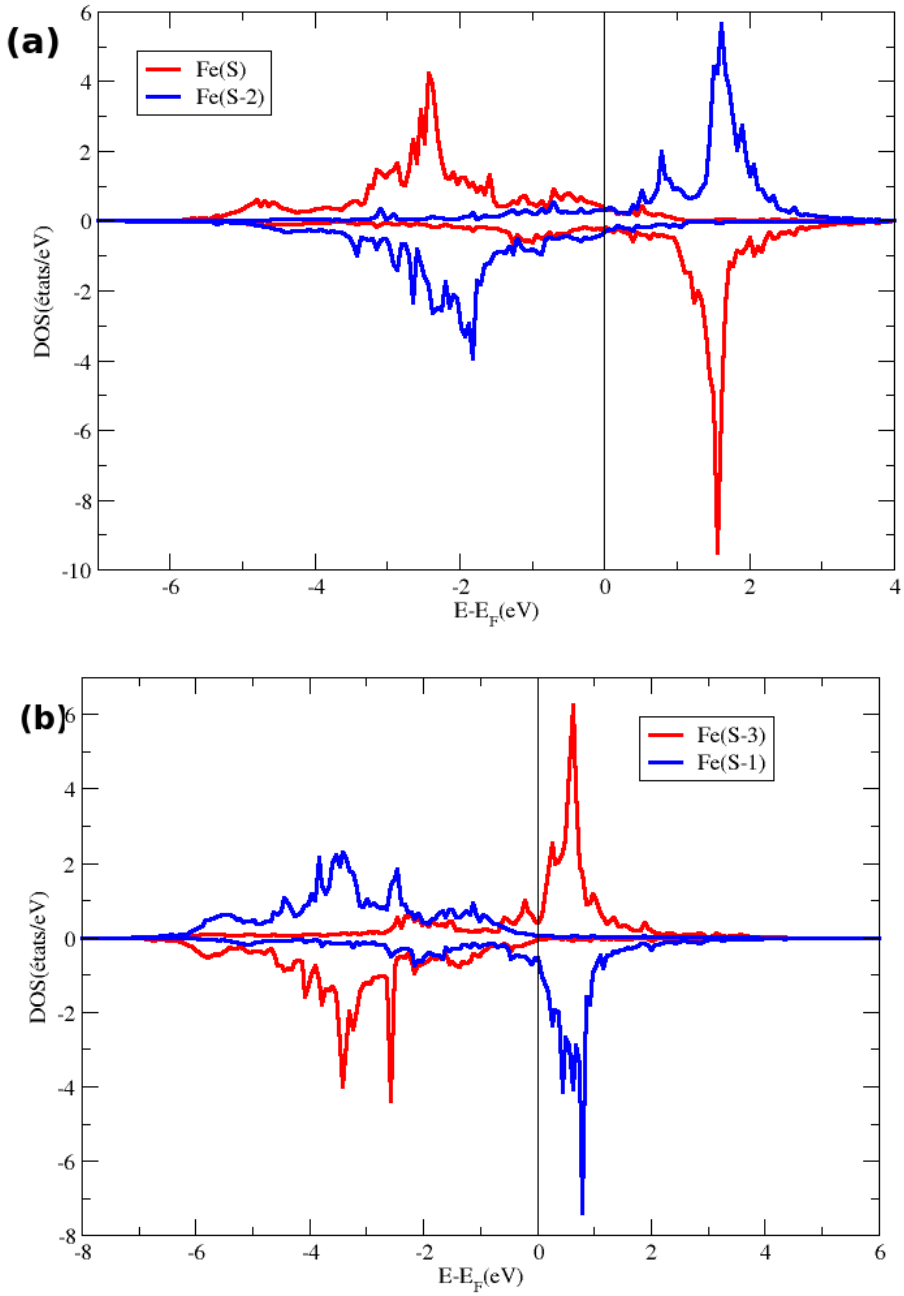

FIGURE 3.5 – Densités d'états électroniques projetées par atome pour les surfaces de l'alliage Fe_3Pt : (a) surface pure ; (b) surface mixte.

3.3 Conclusion

Dans le cadre de ce chapitre nous avons traité les surfaces de l'alliage FePt de structure $L1_2$. Nous avons vu que deux types de surfaces peuvent se présente , soit la surface est pure (de Fe ou de Pt) ou bien mixte ; et ce pour les deux variantes existantes . Nos calculs ont révélé une intensification du magnétique du Fe en surface dans le cas du Fe_3Pt , valant (6,93%) . par contre , la magnitude du moment magnétique de celui-ci pour ce qui est de la variant FePt3 est restée inchangée comparativement au bulk . sur le plan géométrique , touts les de figure

montent une contraction des distances inter-plans

Conclusion générale

Durant ce travail nous nous sommes attelés à étudier les propriétés magnétiques de l'alliage binaire $FePt\ L1_2$,d'abord en volume puis en surface .

Dans le premier chapitre nous fait une revue concise du formalisme théorique qu'est la théorie de la fonctionnelle de la Densité (DFT) , sur laquelle se fondent les calculs ab-initio . Une description succincte du code utilisé et implémentant cette théorique est aussi donnée .

S'agissant du second chapitre qui traite du volume de l'alliage $FePt\ L1_2$, nous avons pu retrouver les propriétés cristallographiques relatives aux résultats Fe_3Pt et $FePt_3$; et ce harmonieusement aux résultats existant dans la littérature . Pour ce qui est des propriétés magnétiques , nous avons mis en évidence un état fondamental ferromagnétisme pour le Fe_3Pt contrairement au $FePt_3$ qui présente un état de plus basse énergie antiferromagnétique .

Quant au troisième chapitre ou nous avons examiné l'effet de la brisure de symétrie sur les propriétés magnétique de l'alliage $FePt\ L1_2$, nous relevée un renforcement du magnétisme en surface pour le Fe_3Pt . Une augmentation du moment magnétique de l'atome de Fe de (6,93%) par rapport au bulk à été mise en évidence . A l'opposé du Fe_3Pt , le clivage opéré dans le cas du $FePt_3$ n'a en aucun effet sur le magnétisme , hormi l'apparition d'un moment magnétique faible concernant les atomes de Pt se trouvant en surface .

Comme perspective de ce travail , nous envisageons de traiter les défauts , notamment les défauts , étendus et localisés tels que les ad-atomes . Aussi , il serait intéressant de considérer cet alliage sous l'angle de l'anisotropie magnétique .

Bibliographie

[1] Sebastien Couet, Joost Demeter, E Menéndez, R Rüffer, CJ Kinane, Bart Laenens, A Teichert, Shilpa Tripathi, F Almeida, André Vantomme, et al. The magnetic structure of exchange coupled fept/fept 3 thin films. *Journal of Applied Physics*, 113(1) :013909, 2013.

[2] Eunae Kang, Hyunok Jung, Je-Geun Park, Seungchul Kwon, Jongmin Shim, Hiroaki Sai, Ulich Wiesner, Jin Kon Kim, and Jinwoo Lee. Block copolymer directed one-pot simple synthesis of l10-phase fept nanoparticles inside ordered mesoporous aluminosilicate/carbon composites. *ACS nano*, 5(2) :1018–1025, 2011.

[3] HongLing Liu, XiaoYan Zhang, Peng Hou, and JunHua Wu. Direct synthesis of water-dispersible 2 nm fept nanocrystals without ligand exchange. *Materials Chemistry and Physics*, 132(2-3) :716–721, 2012.

[4] Shaojun Guo and Shouheng Sun. Fept nanoparticles assembled on graphene as enhanced catalyst for oxygen reduction reaction. *Journal of the American Chemical Society*, 134(5) :2492–2495, 2012.

[5] Hiroaki Okamoto and TB Massalski. Thermodynamically improbable phase diagrams. *Journal of phase equilibria*, 12(2) :148–168, 1991.

[6] IV Solovyev, PH Dederichs, and I Mertig. Origin of orbital magnetization and magnetocrystalline anisotropy in tx ordered alloys (where t= fe, co and x= pd, pt). *Physical Review B*, 52(18) :13419, 1995.

[7] Akimasa Sakuma. First principle calculation of the magnetocrystalline anisotropy energy of fept and copt ordered alloys. *Journal of the Physical Society of Japan*, 63(8) :3053–3058, 1994.

[8] GHO Daalderop, PJ Kelly, and MFH Schuurmans. Magnetocrystalline anisotropy and orbital moments in transition-metal compounds. *Physical Review B*, 44(21) :12054, 1991.

[9] PM Oppeneer. Magneto-optical spectroscopy in the valence-band energy regime : relationship to the magnetocrystalline anisotropy. *Journal of magnetism and magnetic materials*, 188(3) :275–285, 1998.

[10] P Ravindran, A Kjekshus, H Fjellvåg, P James, L Nordström, Börje Johansson, and O Eriksson. Large magnetocrystalline anisotropy in bilayer transition metal phases from first-principles full-potential calculations. *Physical Review B*, 63(14) :144409, 2001.

[11] I Galanakis, M Alouani, and H Dreyssé. Perpendicular magnetic anisotropy of binary alloys : A total-energy calculation. *Physical Review B*, 62(10) :6475, 2000.

[12] Julia Lyubina, Ingo Opahle, Karl-Hartmut Müller, Oliver Gutfleisch, Manuel Richter, Manfred Wolf, and Ludwig Schultz. Magnetocrystalline anisotropy in l10 fept and exchange coupling in fept/fe3pt nanocomposites. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 17(26) :4157, 2005.

[13] Jan Honolka, TY Lee, K Kuhnke, Axel Enders, Ralph Skomski, S Bornemann, S Mankovsky, J Minár, J Staunton, H Ebert, et al. Magnetism of fept surface alloys. *Physical review letters*, 102(6) :067207, 2009.

[14] D Ködderitzsch, H Ebert, DA Rowlands, and A Ernst. Relativistic formulation of the korringa–kohn–rostoker nonlocal coherent-potential approximation. *New Journal of Physics*, 9(4) :81, 2007.

[15] Alexander B Shick and Oleg N Mryasov. Coulomb correlations and magnetic anisotropy in ordered l 1 0 copt and fept alloys. *Physical Review B*, 67(17) :172407, 2003.

[16] Markus E Gruner. Antiferromagnetism and segregation in cuboctahedral fept nanoparticles. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 41(13) :134015, 2008.

[17] James M MacLaren, Raymond R Duplessis, R Adam Stern, and Shannon Willoughby. First principles calculations of fept, copt, co/sub 3/pt, and fe/sub 3/pt alloys. *IEEE transactions on magnetics*, 41(12) :4374–4379, 2005.

[18] Marek Podgórny. Electronic structure of the ordered phases of pt-fe alloys. *Physical Review B*, 43(13) :11300, 1991.

[19] IV Solovyev, PH Dederichs, and I Mertig. Origin of orbital magnetization and magnetocrystalline anisotropy in tx ordered alloys (where t= fe, co and x= pd, pt). *Physical Review B*, 52(18) :13419, 1995.

[20] C Antoniak, A Trunova, M Spasova, M Farle, H Wende, F Wilhelm, and A Rogalev. Lattice expansion in nonoxidized fept nanoparticles : X-ray absorption measurements. *Physical Review B*, 78(4) :041406, 2008.

[21] Nina Friedenberger. *Layer resolved Lattice Relaxation in Magnetic FexPt1- x Nanoparticles*. PhD thesis, Diplomarbeit, Universität Duisburg-Essen, 2007.

[22] Max Born and Robert Oppenheimer. Zur quantentheorie der molekeln. *Annalen der physik*, 389(20) :457–484, 1927.

[23] Mika Hirvensalo. *Quantum computing*. Springer, 2013.

[24] Wolfgang Pauli, Charles P Enz, and Karl von Meyenn. *Writings on physics and philosophy*. Springer, 1994.

[25] Vladimir Fock. Näherungsmethode zur lösung des quantenmechanischen mehrkörperproblems. *Zeitschrift für Physik*, 61(1-2) :126–148, 1930.

[26] Anthony Scemama and Emmanuel Giner. An efficient implementation of slater-condon rules. *arXiv preprint arXiv :1311.6244*, 2013.

[27] Neil W Ashcroft and N David Mermin. Solid state physics (saunders college, philadelphia, 1976). *Appendix N*, 2010.

[28] Francesco Guerra and Nadia Robotti. Ettore majorana's forgotten publication on the thomas-fermi model. *Physics in Perspective*, 10(1) :56–76, 2008.

[29] Enrico Fermi. Statistical method to determine some properties of atoms. *Rend. Accad. Naz. Lincei*, 6(602-607) :5, 1927.

[30] Enrico Fermi. Eine statistische methode zur bestimmung einiger eigenschaften des atoms und ihre anwendung auf die theorie des periodischen systems der elemente. *Zeitschrift für Physik*, 48(1-2) :73–79, 1928.

[31] Pierre Hohenberg and Walter Kohn. Inhomogeneous electron gas. *Physical review*, 136(3B) :B864, 1964.

[32] Walter Kohn and Lu Jeu Sham. Self-consistent equations including exchange and correlation effects. *Physical review*, 140(4A) :A1133, 1965.

[33] Stephen Brunauer, Lola S Deming, W Edwards Deming, and Edward Teller. On a theory of the van der waals adsorption of gases. *Journal of the American Chemical society*, 62(7) :1723–1732, 1940.

[34] Lars Hedin and Bengt I Lundqvist. Explicit local exchange-correlation potentials. *Journal of Physics C : Solid state physics*, 4(14) :2064, 1971.

[35] Ulf von Barth and Lars Hedin. A local exchange-correlation potential for the spin polarized case. i. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 5(13) :1629, 1972.

[36] JF Janak. Itinerant ferromagnetism in fcc cobalt. *Solid State Communications*, 25(2) :53–55, 1978.

[37] CS Wang, BM Klein, and H Krakauer. Theory of magnetic and structural ordering in iron. *Physical review letters*, 54(16) :1852, 1985.

[38] John P Perdew. Density-functional approximation for the correlation energy of the inhomogeneous electron gas. *Physical Review B*, 33(12) :8822, 1986.

[39] Axel D Becke. Density-functional exchange-energy approximation with correct asymptotic behavior. *Physical review A*, 38(6) :3098, 1988.

[40] John P Perdew, Kieron Burke, and Matthias Ernzerhof. Generalized gradient approximation made simple. *Physical review letters*, 77(18) :3865, 1996.

[41] John P Perdew, John A Chevary, Sy H Vosko, Koblar A Jackson, Mark R Pederson, Dig J Singh, and Carlos Fiolhais. Atoms, molecules, solids, and surfaces : Applications of the generalized gradient approximation for exchange and correlation. *Physical Review B*, 46(11) :6671, 1992.

[42] Michael Filatov and Walter Thiel. Exchange-correlation density functional beyond the gradient approximation. *Physical Review A*, 57(1) :189, 1998.

[43] John P Perdew, Stefan Kurth, Aleš Zupan, and Peter Blaha. Accurate density functional with correct formal properties : A step beyond the generalized gradient approximation. *Physical review letters*, 82(12) :2544, 1999.

[44] Jianmin Tao, John P Perdew, Viktor N Staroverov, and Gustavo E Scuseria. Climbing the density functional ladder : Nonempirical meta–generalized gradient approximation designed for molecules and solids. *Physical Review Letters*, 91(14) :146401, 2003.

[45] Axel D Becke. Density-functional thermochemistry. iii. the role of exact exchange. *The Journal of chemical physics*, 98(7) :5648–5652, 1993.

[46] GB Bachelet, DR Hamann, and M Schlüter. Pseudopotentials that work : From h to pu. *Physical Review B*, 26(8) :4199, 1982.

[47] David Vanderbilt. Soft self-consistent pseudopotentials in a generalized eigenvalue formalism. *Physical review B*, 41(11) :7892, 1990.

[48] Peter E Blöchl. Projector augmented-wave method. *Physical review B*, 50(24) :17953, 1994.

[49] Georg Kresse and D Joubert. From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method. *Physical Review B*, 59(3) :1758, 1999.

[50] Georg Kresse and Jürgen Furthmüller. Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set. *Physical review B*, 54(16) :11169, 1996.

[51] WB Pearson et al. Lattice spacings and structures of metals and alloys. *Vols. I and II (Pergamon Press, Oxford, 1964, 1967)*, 1958.

[52] Antje Dannenberg, Markus E Gruner, Alfred Hucht, and Peter Entel. Surface energies of stoichiometric fept and copt alloys and their implications for nanoparticle morphologies. *Physical review B*, 80(24) :245438, 2009.

[53] Sondes Karoui, Hakim Amara, Bernard Legrand, and François Ducastelle. Magnetism : the driving force of order in copt, a first-principles study. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 25(5) :056005, 2013.

[54] Charles Kittel, Paul McEuen, and Paul McEuen. *Introduction to solid state physics*, volume 8. Wiley New York, 1976.

[55] Durga Paudyal, Tanusri Saha-Dasgupta, and Abhijit Mookerjee. Magnetic properties of x–pt (x= fe, co, ni) alloy systems. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 16(13) :2317, 2004.

[56] M Sternik, Sebastien Couet, J Łażewski, PT Jochym, K Parlinski, André Vantomme, Kristiaan Temst, and P Piekarz. Dynamical properties of ordered fe–pt alloys. *Journal of Alloys and Compounds*, 651 :528–536, 2015.

[57] Arti Kashyap, KB Garg, AK Solanki, T Nautiyal, and S Auluck. Electronic structure, fermi surface, and curie temperature calculations for the co-pt system. *Physical Review B*, 60(4) :2262, 1999.

[58] Fabrizio Cleri and Vittorio Rosato. Tight-binding potentials for transition metals and alloys. *Physical Review B*, 48(1) :22, 1993.

[59] Marek Podgórny. Electronic structure of the ordered phases of pt-fe alloys. *Physical Review B*, 43(13) :11300, 1991.