

N° D'ORDRE

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE & POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE.



UNIVERSITE DJILLALI LIABES

FACULTE DES SCIENCES EXACTES SIDI BEL ABBES



BP 89 SBA 22000 - ALGERIE

TEL/ FAX 048 -77-66- 20

## Thèse de Doctorat

*Spécialité : Sciences Physiques*

*Spécialité : Physique des Matériaux condensés*

Présentée Par

**LAROUSI Samia**

*Intitulé*

**Contribution à l'étude des propriétés physico-chimie des alliages Heusler à base des terres rares : méthode de premier principe.**

Soutenue le : // 2022 devant le Jury:

Président du Jury	ABIDRI Boualem	Pr. Université de Sidi Bel Abbes
Directeur de Thèse	AMERI Mohammed	Pr. Université de Sidi Bel Abbes
Examineur	BENKHETTOU Nouredine	Pr. Université de Sidi Bel Abbes
Examineur	BENCHERIF Kaddour	Dr. Université de Ain Temouchent
Examineur	BOUZOUIRA Nouredine	Dr. Centre Universitaire d'El Bayadh
Examineur	ADJADJ Azz-eddine	Dr. Université de Tiaret

**Année Universitaire 2021 - 2022**

بِسْمِ اللَّهِ الرَّحْمَنِ الرَّحِيمِ

# **Remerciement**

*Avec l'aide de Dieu tout puissant, j'ai pu accomplie ce modeste travail.*

*Le travail que j'ai l'honneur de vous présenter, a été réalisé dans le laboratoire de recherche Physico-chimie de Matériaux Avancés de l'Université Djillali Liables de Sidi Bel Abbés.*

*Je remercie vivement **Mr Ameri Mohammed** Professeur a l'Université de Sidi Bel Abbes pour m'avoir dirigé au cours de ce travail avec ces conseils qui m'ont été d'une grande utilité et d'une claire voyance inouïe dans la rédaction de ce mémoire et pour m'avoir fait bénéficier de ces compétences scientifiques, ses qualités humaines et sa constante disponibilité.*

*J'exprime mes sincères remerciements a **Mr ABIDRI Boualem** Professeur à l'Université de Djillali liables Sidi bel abbes, d'avoir accepté de présider le jury de ce mémoire .*

*Je tiens également à remercier Je tiens également à remercier **Mr Benkhetou Noureddine, Mr Bencherifkadour, Mr bouzouira Noureddine, ADJADJ Azzedine** d'avoir acceptés d'être les jurys de ce mémoire*

# *Dédicaces*

*Je dédie ce modeste travail à :*

*A Mes Parents*

*A Toute Ma Famille*

*Et a tous ceux qui ont donné une  
contribution pour réaliser cette thèse de  
doctorat*



# Sommaire

# << ... Sommaire ... >>

Introduction	1
Bibliographie	3

## **CHAPITRE I : description des matériaux et des structures étudiées**

1.1 Les alliages de Heusler	4
1.1.1 Introduction	4
1.1.2 Les composées Heusler	6
1.1.3 Structure cristalline	6
1.1.4 Le Magnétisme et les alliages de Heusler	8
1.1.5. Le ferromagnétisme semi-métallique	10

## **CHAPITRE II : Aperçu sur le cadre théorique**

II-1 Introduction	13
II-2 Équation de Schrödinger	13
II. 3. Mise en œuvre des approximations	15
II-3-1 l'approximation de Born–Oppenheimer	15
II-3-2 L'approche de Hartree et de Hatree-Fock	16
II-4 La théorie de la fonctionnelle de la densité DFT ( <i>Density Functional Theory</i> )	18
II-4-1 Formalisme mathématique	18
II-4-2 La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)	19
II-4-3 Principe de la théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT)	20
II-5 Méthodes d'approximation pour calcul d'énergie d'échange et de corrélation	21
II-5-1 Approximation de la densité locale (LDA)	21
II-5-2 Approximation de la densité locale (LDA)	22

II-6	Equations de Kohn et Sham	23
II-7	Equations de Kohn et Sham	24
II-8	La self consistance dans les calculs de la DFT	25
II-9	La méthode des ondes planes augmentées et linéarisées (FP-LAPW)	26
II-9-1	Introduction	26
II-9-2	La méthode des ondes planes augmentées (APW)	27
II-9-3	La méthode des ondes planes augmentées est linéarisées (LAPW	29
II-9-3-1	La méthode des ondes planes augmentées est linéarisées (LAPW)	29
II-9-3-2	Représentation de la densité de charge et du potentiel	30
II-9-3-3	Définition des stars	31
II-9-3-4	Les harmoniques du réseau	31
II-9-3-5	La résolution de l'équation de Poisson	31
II-10	Conclusion	38
	Bibliographie	39

## **CHAPITRE III : Résultats et discussions**

III-1	Introduction	43
III.2	Détail de calcul	45
III.3	Propriétés structurales	46
III.4	Propriétés élastiques et mécaniques	49
III.5	Propriétés de polarisation magnétique et de spin	52
III.5.1	Propriétés électroniques	55
III.5.2	Structure de bande	55
III.5.3	Densité d'états :	53
	Bibliographie	63
	Conclusion générale	70

## LISTE DES FIGURES

FIGURE (I-1)	Tableau périodique des éléments. Le grand nombre de matériaux Heusler peut être formé par la combinaison des différents éléments selon le schéma de couleurs.	<b>4</b>
FIGURE (I-2)	Représentation schématique de la densité d'états pour un semi-métal, un métal et un semi-conducteur.	<b>5</b>
FIGURE (I-3)	(a) la structure Rock Salt, (b) la structure zinc blende et leurs relations avec la structure semi-Heusler (c) et avec la structure Heusler (d).	<b>7</b>
FIGURE (I-4)	Rock Salt, (b) la structure zinc blende et leurs relations avec la structure semi-Heusler (c) et avec la structure Heusler (d).	<b>8</b>
FIGURE (I-5)	(a) un composé demi-Heusler XYZ présente un seul sous-réseau magnétique puisque seuls les atomes sur les sites octaédriques portent un moment magnétique localisé. (b) les composés X <sub>2</sub> YZ de Heusler ont deux sous-réseaux magnétiques qui peuvent se coupler ferromagnétique ou antiferromagnétique.	<b>9</b>
FIGURE (I-6)	illustration schématique de la densité d'états (a) un métal, (b) un métal (spin polarisé), (c) un corps ferromagnétique (d) un corps ferromagnétique semi-métallique, et (e) un corps semi-métallique ferromagnétique.	<b>10</b>
FIGURE (II-1)	le cycle self-consistent dans le calcul de la fonctionnelle de densité	<b>26</b>
FIGURE (II-2)	Construction des différentes régions du cristal dans la méthode APW	<b>27</b>

FIGURE(II.3)	Approximation de la forme du potentiel (Muffin-tin).	<b>28</b>
FIGURE(II.4)	Organigramme du code WIEN2K [44].	<b>36</b>
FIGURE(III.1)	Optimisation du volume de Full Heusler (a) $Mn_2LuSb$ , (b) $Ir_2LuSb$ dans une structure cubique de type $L2_1$ et une structure cubique de type XA avec approximation GGA.	<b>47</b>
FIGURE(III.2)	Dépendance de la pression des constantes élastiques ( $C_{11}$ , $C_{12}$ et $C_{44}$ ) et du module de compression B pour (a) les composés $Mn_2LuSb$ et (b) $Ir_2LuSb$ dans (GPa) en utilisant l'approximation GGA.	<b>51</b>
FIGURE(III.3)	Coefficients A, $\sigma$ et B/G pour (a) les composés $Mn_2LuSb$ et (b) $Ir_2LuSb$ en utilisant l'approximation GGA.	<b>52</b>
FIGURE(III.4)	Total magnetic moment dependence of Hubbard potential for (a) $Mn_2LuSb$ and (b) $Ir_2LuSb$ compounds	<b>58</b>
FIGURE(III.5)	Spin polarization ratio dependence of Hubbard potential for (a) $Mn_2LuSb$ and (b) $Ir_2LuSb$ compounds	<b>59</b>
FIGURE(III.6)	The band structures of the full- Heusler compound $Mn_2LuSb$ with (a) GGA and (b) with GGA+U, for the spin-up and spin-down electrons.	<b>60</b>
FIGURE(III.7)	The band structures of the full- Heusler compound $Ir_2LuSb$ with (c) GGA and (d) with GGA+U, for the spin-up and spin-down electrons.	<b>61</b>
FIGURE(III.8)	Spin-polarized total and partial densities of states (TDos) and (PDos) of $Mn_2LuSb$ full-Heusler compound with (a) GGA and with (b) GGA+U. The Fermi level is set at zero energy.	<b>61</b>
FIGURE(III.9)	Spin-polarized total and partial densities of states (TDos) and (PDos) of $Ir_2LuSb$ full-Heusler compound with (c) GGA and with (d) GGA +U. The Fermi level is set at zero energy.	<b>62</b>

## LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU (I-1)	Occupation du site inéquivalentes au sein de la structure du type C1b. Atomes en position du type Wyckoff 4a et 4c un sous-réseau du type ZnS; les atomes sur 4b occupent les vides octaédriques.	7
TABLEAU(III.1)	La constante de réseau d'équilibre calculée ( $a_0$ ) en Å, le module de compressibilité (B) en GPa et ses dérivées (B'); Les énergies totales ( $E_{tot}$ ) en (Ryd) et les énergies de formation $E_f$ en (Ryd) pour les Full-Heusler $Mn_2LuSb$ et $Ir_2LuSb$ dans une structure cubique de type $CuHg_2Ti$ et une structure cubique de type $AlCu_2Mn$ avec approximation GGA et avec les états FM et NM en comparaison avec d'autres résultats théoriques	48
TABLEAU(III.2)	Constantes élastiques calculées $C_{ij}$ , module de masse B(GPa), module d'Young E(GPa), module de cisaillement G(GPa), coefficient de Poisson $\nu$ , rapport B/G et facteur d'anisotropie A pour Heusler $Mn_2LuSb$ et $Ir_2LuSb$ cubiques de type $AlCu_2Mn$ structure avec approximation GGA	50
TABLEAU(III.3)	Total and local magnetic moments (in Bohr magneton $\mu_B$ units) with <i>XA type structure</i> , FM states for for full Heusler $Mn_2LuSb$ and $Ir_2LuSb$ in cubic $AlCu_2Mn$ -type structure with GGA approximation and GGA+U approximations	53
TABLEAU(III.4)	Spin polarization ratio for full Heusler $Mn_2LuSb$ and $Ir_2LuSb$ in cubic $AlCu_2Mn$ -type structure with GGA approximation and GGA+U approximations	53

# Introduction générale

## Introduction générale :

- Le développement technologique et industriel dépend beaucoup de la recherche des nouveaux matériaux et alliages à partir du tableau périodique des éléments en se basant sur la loi naturelle qui affirme que la combinaison de deux matériaux différents ne présente pas une combinaison de leurs propriétés mais donne plutôt naissance à des caractéristiques nouvelles propres à l'alliage [1].
- La physique de la matière condensée et la science des matériaux jouent un rôle de plus en plus important dans l'amélioration des applications technologiques. Avant d'employer les matériaux (solides) dans l'industrie, il faut s'assurer de la qualité de leurs propriétés structurales, électroniques...etc.
- Les alliages Heusler ont été découverts par Friedrich Heusler au début du XXème siècle. Leur principale caractéristique était alors d'être un alliage ferromagnétique sans qu'aucun de leurs constituants ne le soit (le premier matériau était composé de Cu, Mn et Al ; le  $\text{Cu}_2\text{MnAl}$ ). Cet état magnétique est dû à un arrangement et une distribution particulière de certains atomes qui joue un rôle majeur sur leurs propriétés physiques.
- Depuis la prédiction de la demi-métallicité de l'alliage Heusler  $\text{NiMnSb}$  par De Groot et al. en 1983[2], l'intérêt scientifique des alliages Heusler a été renouvelé et ces matériaux ont commencé à avoir des intérêts à la fois théoriques et expérimentaux et surtout en spintronique. En passant de l'électronique basée sur le contrôle de courants de charges, électrons de charge négative et trous de charge positive, vers un nouveau concept appelé l'électronique de spin, ou spintronique, domaine émergent qui projette d'utiliser le spin des électrons comme un degré de liberté supplémentaire pour générer des fonctionnalités nouvelles et modernes. Plusieurs alliages Heusler ont été ensuite prédits par des calculs abinitio.
- Les méthodes ab-initio qui sont devenues aujourd'hui un outil de base pour le calcul des propriétés physiques des systèmes les plus complexes. Elles sont aussi un outil de choix pour la prédiction de nouveaux matériaux, et elles ont parfois pu remplacer des expériences très coûteuses où même irréalisables en laboratoire. Parmi ces méthodes ab-initio, la méthode des ondes planes augmentées linéarisées à plein potentiel (FP-LAPW) qui est l'une des méthodes les plus précises actuellement pour le calcul de la structure électronique des solides dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT) .



- Notre objectif est d'aboutir à une meilleure compréhension des propriétés structurel, mécanique, magnétique, électronique et thermodynamique du composé Heusler  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$

- Le travail que nous présentons dans ce mémoire comprend trois chapitres :

- ***Le premier chapitre*** : nous discuterons l'étude bibliographique des propriétés physiques des heuslers et leurs applications.
- ***Le deuxième chapitre*** : est consacré à la méthode de calcul aux fondements théoriques, dans un premier temps on présentera le fondement de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), ensuite l'approximation de la densité locale (GGA) et enfin la méthode FP-LAPW
- ***Le troisième chapitre*** : Enfin dans le dernier chapitre nous exposons les étapes de notre travail et les résultats de nos calculs basés sur l'approximation GGA. Nous présentons les propriétés structurales, élastiques ainsi que les propriétés électroniques des matériaux étudiés. Une conclusion générale est enfin présentée.

## Références bibliographiques :

1. BELKHOUANE, M., Etude de premier principe des propriétés structurales, électroniques et magnétiques des matériaux Heusler de type  $\text{Fe}_2\text{MnZ}$  ( $Z = \text{Al, Si}$ )  $\text{Fe}_2\text{MnAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$ , 2016.
2. De Groot, R., RA de Groot, FM Mueller, PG van Engen, and KHJ Buschow, Phys.Rev. Lett. 50, 2024 (1983). Phys. Rev. Lett., 1983. 50: p. 2024.
3. Hohenberg, P. and W. Kohn, Inhomogeneous electron gas. Physical review, 1964. 136(3B): p. B864.
4. Kohn, W. and L.J. Sham, Self-consistent equations including exchange and correlation effects. Physical review, 1965. 140(4A): p. A1133. 5. Blaha, P., et al., Full-potential, linearized augmented plane wave programs for crystalline systems. Computer Physics Communications, 1990. 59(2): p. 399

# Chapitre I

## I.1 : Les alliages de Heusler :

### I.1.1. 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 [1]. Le terme alliages Heusler est attribué à un groupe de composés qui contient à peu près 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  $\text{Cu}_2\text{MnAl}$  [2]. Grâce à un large éventail de propriétés, ces composés peuvent avoir le comportement de demi-métaux, de semi-conducteurs, de supraconducteurs et bien d'autres. Ils se divisent en deux groupes : les demi-Heusler avec une formule chimique XYZ et les alliages Heusler complets avec une composition  $\text{X}_2\text{YZ}$ , où X et Y sont des métaux de transition et Z est un élément des groupes III à V. Les principales combinaisons des alliages Heusler sont présentées dans la Figure. I. 1. [3].

**$\text{X}_2\text{YZ}$  Heusler compounds**

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 2.01	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 1.80	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		

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

Les propriétés de nombreux composés Heusler peuvent être prédites simplement en comptant le nombre d'électrons de valence [4]. Par exemple, les alliages de Heusler non magnétiques composés à environ 27 électrons de valence sont supraconducteurs, par contre les semi-conducteurs affichent une autre catégorie importante avec plus de 250 composés et sont considérés comme de nouveaux matériaux pour les énergies solaires. La largeur de gap pour ces semi-conducteurs change de 0-4 eV en changeant leur composition chimique. En effet, d'excellentes propriétés thermoélectriques ont été récemment mises en évidence pour les matériaux à base de TiN iSn [5]. Sur la base des calculs de leur structure de bandes une nouvelle classe d'alliages Heusler a été prédite appelée isolants topologiques multifonctionnels. C'est un nouvel état de la matière, dans lequel les états de surface sont topologiquement protégés contre la diffusion d'impureté [6,7].

La grande classe de composés magnétiques  $X_2YZ$  montre toutes sortes de comportements magnétiques et les propriétés magnétiques multifonctionnelles, tels que magnéto-optique [8], Magnétocalorique [9] et les caractéristiques magnéto-structurelle [10].

L'intérêt majeur de certains alliages d'Heusler que nous décrivons par la suite est qu'ils peuvent être magnétiques et présenter une structure électronique très différente selon le spin : ainsi la bande de valence de spin majoritaire peut être métallique, alors que la bande de valence de spin minoritaire peut être isolante ou semi-conductrice. Le terme demi-métal est utilisé pour décrire tout matériau ayant cette asymétrie de spin dans les bandes de structure Figure I.2. [11].

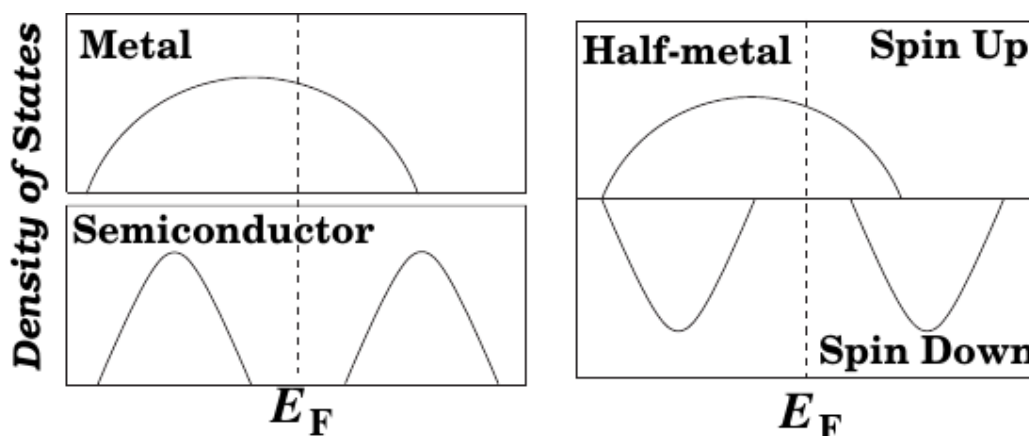


Figure I.2. Représentation schématique de la densité d'états pour un semi-métal, métal et semi-conducteur.

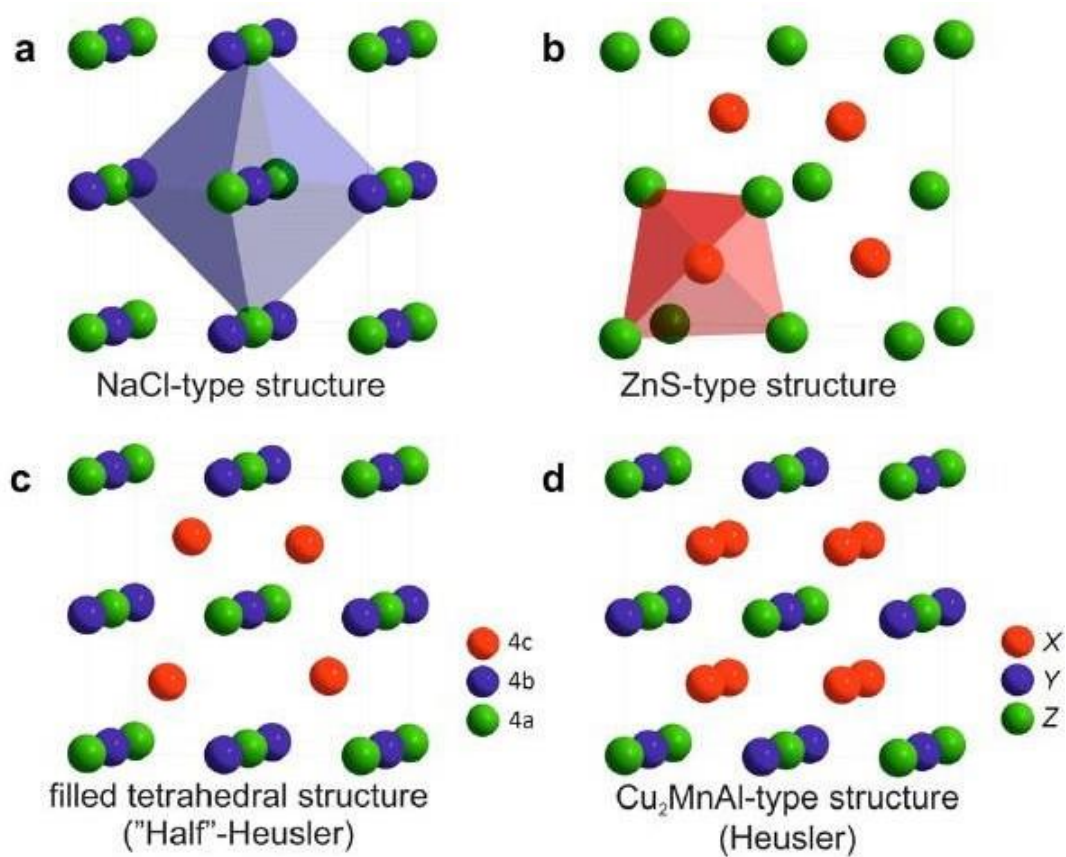
Les composées Heusler demi métallique a base de  $\text{Co}_2$  ont un grand intérêt en raison de leurs températures Curie [12] élevées et sont utilisées aujourd'hui dans les jonctions magnétiques à effet tunnel [13].

### **I.1.2. Les composées Heusler**

Dans le passé, les composés de Heusler ont souvent été compris comme des alliages intermétalliques, bien que la description en tant que composé intermétallique est plus appropriée en raison de leur ordre atomique caractéristique. Le composé Heusler ternaire a une formule générale  $\text{X}_2\text{YZ}$ , dans laquelle X et Y sont des métaux de transition et Z est un élément du groupe III, IV ou V dans le tableau périodique. Cependant, dans certains cas, Y est remplacé par un élément de terre rare ou d'un métal alcalino-terreux. Traditionnellement, le métal, qui existe deux fois, est placé au début de la formule, tandis que l'élément du groupe principal est placé à l'extrémité, par exemple  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ ,  $\text{Fe}_2\text{VAl}$  [14,15]. Les exceptions sont les composés, dans lesquels un élément peut définitivement être défini pour être plus électropositif, par exemple  $\text{LiCu}_2\text{Sb}$  et  $\text{YPd}_2\text{Sb}$  [16]. Ici, l'élément électropositif est mis au début en accord avec la nomenclature IUPAC (l'Union Internationale de chimie pure et appliquée).

### **I.1.3. Structure cristalline**

Il existe deux familles distinctes de composés Heusler: une avec la composition 1: 1: 1 et l'autre avec une stœchiométrie 2: 1: 1. Les composés de la première famille ont la formule générale  $\text{XYZ}$  et cristallisent selon une structure cubique non centro-symétrique (groupe spatial no. 216,  $F43m$  C1B), qui est un système ternaire de structure  $\text{CaF}_2$  et peut être déduit de la structure tétraédrique de type  $\text{ZnS}$  en remplissant les sites du réseau octaédriques **Figure I.3.** [17].



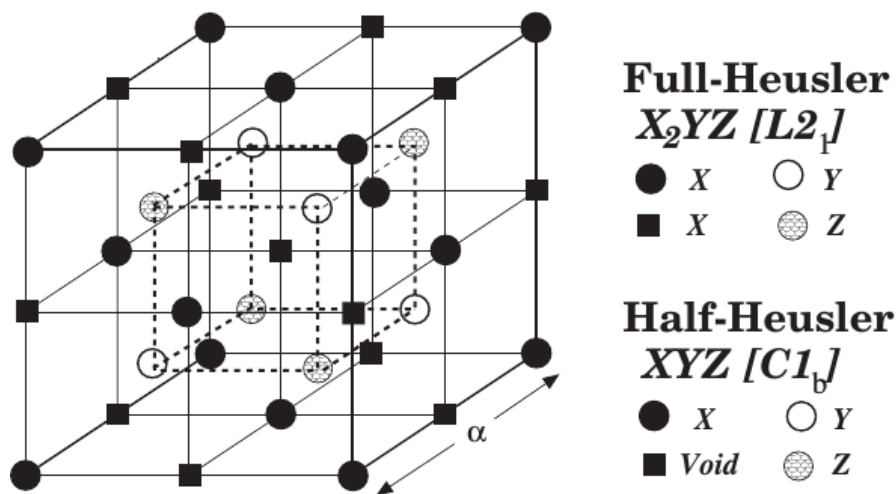
**Figure. I.3.** (a) la structure Rock Salt, (b) la structure zinc blende et leurs relations avec la structure semi-Heusler (c) et avec la structure Heusler (d).

Ce type de structure semi- Heusler peut être caractérisé par l'interpénétration de trois sous-réseaux cubique a faces centrées (cfc), dont chacun est occupée par les atomes X, Y et Z [17]. Les positions occupées sont 4a (0, 0, 0), 4b (1/2, 1/2, 1/2), et 4c (1/4, 1/4, 1/4). En principe, trois arrangements atomiques non équivalents sont possibles dans ce type de structure telle que résumés dans le **Tableau I.1**.

**Tableau I.1 :** Occupation du site inéquivalentes au sein de la structure du type C1b. Atomes en position du type Wyckoff 4a et 4c un sous-réseau du type ZnS; les atomes sur 4b occupent les vides octaédriques.

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

La deuxième famille est celle des alliages Heusler ou full-Heusler de type  $X_2YZ$  qui cristallisent dans le groupe d'espace cubique  $Fm-3m$  (groupe d'espace N° 225) avec  $Cu_2MnAl$  (L2<sub>1</sub>) comme prototype [8, 18]. Les atomes X occupent la position 8c (1/4, 1/4, 1/4), les atomes Y et les atomes Z sont situés aux positions 4a (0, 0, 0) et 4b (1/2, 1/2, 1/2), respectivement. Cette structure se compose de quatre sous-réseaux cfc interpénètres, deux sont occupés par l'atome X. Une structure de type rock salt est formée par les éléments les moins et les plus électropositifs (atomes Y et Z). En raison du caractère ionique de leur interaction, ces éléments ont les coordonnées octaédriques. D'autre part, tous les sites tétraédriques sont occupés par l'atome X. Cette structure peut aussi être considérée comme une structure zinc blende. Ces relations sont illustrées dans la **figure. I.4**. Dans la littérature, les composés Heusler sont souvent décrits par une superstructure CsCl. Voici une figure qui présente bien les détails au-dessus [19].



**Figure. I.4.** (a) la structure Rock Salt, (b) la structure zinc blende et leurs relations avec la structure semi-Heusler (c) et avec la structure Heusler (d).

### I.1.4. Le Magnétisme et les alliages de Heusler

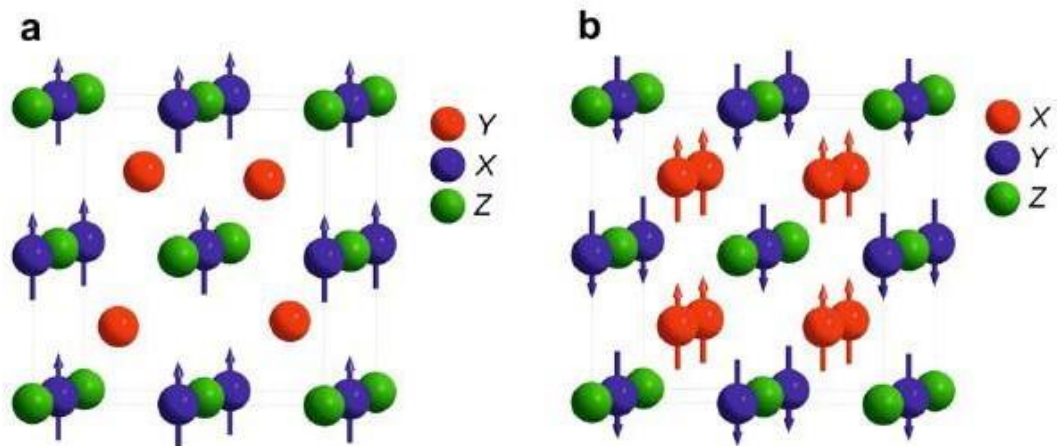
Les alliages de Heusler ont attiré la communauté scientifique en 1903, lorsque F. Heusler trouve ferromagnétique [18,20]. Cependant, il a fallu trois décennies jusqu'à ce que la structure cristalline a été déterminée comme structure cubique à face centre [16,21].



Malheureusement, ils sont tombés dans l'oubli dans les décennies suivantes, et seuls quelques rapports sur la synthèse de nouveaux composés Heusler ont été publiés dans les années 1970 [22,23]. Il a fallu attendre la prédiction du ferromagnétisme semi-métallique dans MnNiSb par de Groote et al. [24] et dans Co<sub>2</sub>MnSn par Kugler et al. [25] en 1983, pour que les matériaux Heusler retrouvent un intérêt scientifique.

Les matériaux **XYZ** présentent un sous-réseau magnétique puisque seuls les atomes sur les sites octaédriques peuvent transporter un moment magnétique, comme indiqué sur la **figure. I.4**.

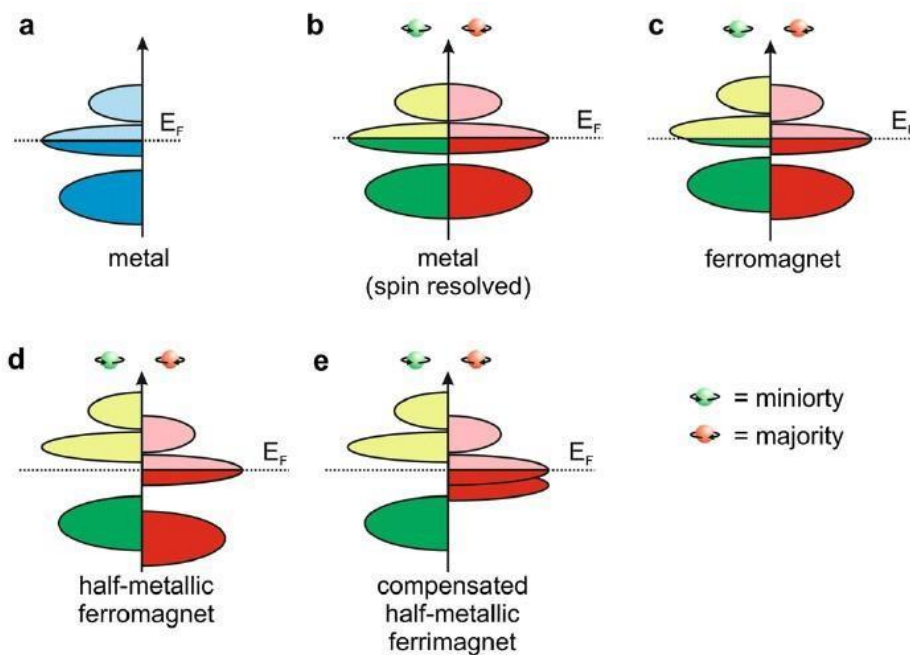
Dans les composés Heusler **X<sub>2</sub>YZ** la situation est complètement différente à cause des deux atomes X qui occupent les sites tétraédriques, ce qui permet une interaction magnétique entre les atomes X et la formation d'un second sous-réseau magnétique plus délocalisé (**Figure I.5**). En raison de ces deux sous-réseaux magnétiques différents, les composés Heusler **X<sub>2</sub>YZ** peuvent montrer toutes sortes de phénomènes magnétiques, aujourd'hui plusieurs types sont connus tel que ferromagnétisme, ferrimagnétisme et ferromagnétisme semi-métallique [24].



**Figure. I.5.** (a) composé demi-Heusler XYZ présente un seul sous-réseau magnétique puisque seuls les atomes sur les sites octaédriques portent un moment magnétique localisé. (b) les composés X<sub>2</sub>YZ de Heusler ont deux sous-réseaux magnétiques qui peuvent se coupler ferromagnétique ou antiferromagnétique.

### I.1.5. Le ferromagnétisme semi-métallique

Dans les années quatre-vingt, les propriétés magnéto-optiques inhabituelles de plusieurs composés Heusler motivées par leurs résultats inattendus sur leur structure électronique qui dépend de l'orientation du spin, certains matériaux Heusler sont métalliques ainsi que des propriétés isolant en même temps selon l'orientation du spin, une fonctionnalité appelée ferromagnétisme semi-métallique [24,25]. De Groot et al. ont développé un système de classification du ferromagnétisme semi-métallique en trois groupes distingués (Figure. I.6) [26].



**Figure. I.6.** illustration schématique de la densité d'états (a) un métal, (b) un métal (spin polarisé), (c) un corps ferromagnétique (d) un corps ferromagnétique semi-métallique, et (e) un corps semi-métallique ferrimagnétique.

**Figure. I.6.** présente une illustration schématique de la densité d'états (DOS) (a) un métal avec une densité d'états au niveau de Fermi, et (b) une représentation avec spin polarisé d'un métal: les deux états sont identiques dans les deux directions de spin et tout aussi occupés, (c) montre la DOS d'un matériau ferromagnétique, dans lequel les états majoritaires et les états minoritaires sont décalés les uns par rapport aux autres, conduisant à une aimantation mesurable. (d) un semi-métal ferromagnétique (HMF) qui se comporte comme un métal pour une orientation de spin et comme un isolant pour l'autre orientation de spin.

## **BIBLIOGRAPHIE :**

- [1] R. A. de Groot and F. M. Mueller, "New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets,"  
Phys. Rev. Lett., vol. 50, no. 25, pp. 2024–2027, Jun. 1983.
- [2] F. Heusler, "Über magnetische Manganlegierungen," Verhandlungen Dtsch. Phys. Ges.,  
vol. 5, p. 219, 1903.
- [3] P. J. Webster and K. R. A. Ziebeck, "Heusler Alloys," in Landolt-Börnstein New Series Group III, Vol. 19C, H. R. J. Wijn (Ed.) (Springer, Berlin, 1988) p. 75.
- [4]. M Johnson 2000 IEEE Spectrum 37 33 .
- [5]. P.J Webster, J Phys Chem Solids 32 (1971) 1221
- [6]. U Hartmann (ed) 2000 Magnetic Multilayers and Giant Magnetoresistance (Berlin:Springer).
- [7]. M Jullière 1975 Phys. Lett. A 54 225.
- [8]. Johnson (Amsterdam: Elsevier) p 163 . J S Moodera and R H Meservey 2004 Spinpolarized tunnelling Magnetoelectronics ed M
- [9]. H Munekata, H Ohno, S von Molnar, A Segmoller, L L u Chang and L Esaki 1989 Phys. Rev. Lett. 63 1849.
- [10]. G Schmidt and L W Molenkamp 2002 Electrical spin injection: spin-polarized transport from magnetic into non-magnetic semiconductors Semiconductor Spintronics and Quantum Computation ed D D Awschalom et al (Berlin: Springer) p
- [11]. I. Galanakis and P. H. Dederichs: Half-Metallicity and Slater-Pauling Behavior in the Ferromagnetic Heusler Alloys, Lect. Notes Phys. 676, 1–39 (2005) .
- [12]. S A Crooker, J J Baumberg, F Flack, N Samarth and D D Awschalom 1996 Phys. Rev. Lett. 77 2814. H Ohno 2002 Ferromagnetic III–V semiconductors and their heterostructures Semiconductor Spintronics and Quantum Computation ed D D Awschalom et al (Berlin: Springer) p
- [13]. S Araki, M Sano, S Li, Y Tsuchiya, O Redon, T Sasaki, N Ito, K Terunuma, H Morita and M Matsuzaki 2000 J. Appl. Phys. 87 5377 .

- [14] .P Gronberg, R Schreiber, Y Pang, M D Brodsky and H Sowers 1986 Phys. Rev. Lett.57 2442.
- [15]. S S P Parkin, N More and K P Roche 1990 Phys. Rev. Lett. 64 2304 .[16]. N F Mott 1935 Proc. Phys. Soc. 47 571.
- [17]. N Mott 1964 Adv. Phys. 13 325 .
- [18]. M.Ziese and M. J. Thornton (ed) 2001 Spin Electronics (Berlin: Springer)
- [19]. S. Brooks, J.M Williams, Phys. Stat Sol A 32 (1975) 413.
- [20]. C Chappert, A Fert and F N van Dau 2007 Nature Mater. 6 813.
- [21] . S. Brooks, J.M Williams, Phys. Stat Sol A 32 (1975) 413.[22]. P.J Webster, J Phys Chem Solids 32 (1971) 1221.
- [23] . R.A. de Groot, F.M. Mueller, P.G. van Engen, K.H.J. Buschow, Phys Rev Lett 50(1983) 2024
- [24]. J. Kübler, A.R. Williams, C.B. Sommers, Phys Rev B 28 (1983) 1745. [25]. C.M. Fang, G.A. de Wjis, R.A. de Groot, J Appl Phys 91 (2002) 8340. [26]. P.E Blöchl., O Jepsen. and O.K Andersen. 1994, Phys. Rev B 49, 16223

# Chapitre II

## II.1. Introduction

La science des matériaux s'intéresse généralement à comprendre et surtout à exploiter les systèmes des électrons et des noyaux en interaction dans la matière. La connaissance des propriétés électroniques permet d'obtenir des informations sur plusieurs propriétés : structurales, mécaniques, thermodynamiques, élastiques et optiques. Les électrons et les noyaux qui composent les matériaux constituent un système à plusieurs corps en fortes interactions, ce qui rend dans ce cas la résolution de l'équation de Schrödinger pénible et même impossible.

Pour estimer les propriétés physiques d'un matériau, plusieurs codes de calcul qui s'améliorent de plus en plus, ont été mis au service des chercheurs. D'abord pour déterminer ces propriétés les chercheurs se sont appuyés sur les méthodes traditionnelles qui sont basées sur la résolution de l'équation de Schrödinger en utilisant la fonction d'onde. Le grand problème qui se pose est la multitude des électrons dans la matière, c'est pourquoi la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) fut introduite par la suite par Hohenberg et Kohn [1] et Kohn et Sham [2]. Son objectif principal est de remplacer la fonction d'onde par la densité électronique de charges. L'avantage de cette théorie est de déterminer en particulier l'énergie de l'état fondamental du matériau étudié en un temps réduit. La DFT a vu le jour par Hohenberg et Kohn En 1964 [3] et améliorée par Kohn et Sham en 1965 [4].

## II.2. L'équation de Schrödinger

Au 17<sup>ème</sup> siècle, Isaac Newton formule la mécanique classique qui s'intéresse aux mouvements des objets macroscopiques en revanche, les physiciens découvrent, au début du 20<sup>ème</sup> siècle que les lois de la mécanique classique ne décrivent pas correctement le comportement des objets microscopiques comme les électrons, les noyaux d'atomes et les molécules. En fait leur comportement est régi par les lois de la mécanique quantique, précisément par la fameuse équation de Schrödinger qui s'écrit sous la forme :

$$H_{tot}\Psi = E\Psi \text{ (II. 1)}$$

Tel que :

$E$  est l'énergie du système.

$\Psi$  la fonction d'onde est écrite sous la forme  $\Psi(\vec{x}, \vec{R})$  Où  $x = x(\vec{r}, \sigma)$  désignent

l'ensemble des coordonnées orbitales et des spins des électrons.

$H_{tot}$  est l'Hamiltonien exact d'un cristal qui résulte de la présence des forces électrostatiques d'interaction : répulsion ou attraction suivant la charge des particules (ions, électrons).

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

Avec

$$T_e = \sum_{i=1}^n \frac{\nabla_i^2}{2mi} \quad (\text{Est l'énergie cinétique des électrons}) \quad (\text{II.3})$$

$$T_N = \sum_{I=1}^N \frac{\nabla_I^2}{2M_I} \quad (\text{Est l'énergie cinétique des noyaux}) \quad (\text{II.4})$$

$$V_{e-e} = \sum_{i>j} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \quad (\text{Interaction répulsive (électron-électron)}) \quad (\text{II.5})$$

$$V_{N-N} = \sum_{I>J} \frac{Z_I Z_J}{|\vec{R}_I - \vec{R}_J|} \quad (\text{Interaction répulsive (noyaux-noyaux)}) \quad (\text{II.6})$$

$$V_{e-N} = \sum_{i,I} \frac{Z_I}{|\vec{R}_I - \vec{r}_i|} \quad (\text{Interaction attractive (noyaux-électron)}) \quad (\text{II.7})$$

$\vec{\nabla}$  le vecteur gradient dont les trois composantes sont:  $(\frac{\partial}{\partial x}, \frac{\partial}{\partial y}, \frac{\partial}{\partial z})$

$m$  la masse de l'électron.

$M$  la masse de noyau.

$r_i, r_j$ : définissent les positions des électrons ( $i$ ) et ( $j$ ), respectivement.

$R_I, R_J$ : définissent les positions des noyaux ( $I$ ) et ( $J$ ), respectivement.

$Z_I, Z_J$ : sont les nombres atomiques des noyaux ( $I$ ) et ( $J$ ), respectivement.

Donc l'Hamiltonien (II.2) s'écrit:

$$H = \sum_{i=1}^n \frac{\nabla_i^2}{2m} + \sum_{I=1}^N \frac{\nabla_I^2}{2M_I} + \sum_{i>j} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + \sum_{I>J} \frac{Z_I Z_J}{|\vec{R}_I - \vec{R}_J|} - \sum_{i,I} \frac{Z_I}{|\vec{R}_I - \vec{r}_i|} \quad (\text{II.8})$$

Donc l'équation de Schrödinger s'écrit alors :

$$\left[ \sum_{i=1}^n \frac{\nabla_i^2}{2m} + \sum_{I=1}^N \frac{\nabla_I^2}{2M_I} + \sum v_{e-e} + \sum v_{N-N} - \sum v_{e-N} \right] \Psi(\vec{x}, \vec{R}) = E\Psi(\vec{x}, \vec{R}) \quad (\text{II.9})$$

Les électrons et les noyaux qui composent les matériaux forment un système à plusieurs corps fortement interagissant, ce qui rend la résolution de l'équation de Schrödinger extrêmement difficile, car la mécanique quantique moderne ne dispose d'aucune méthode pour résoudre ce genre de problèmes en effet dans  $1\text{cm}^3$  d'un solide cristallin on trouve environ  $5.10^{22}$  atomes donc le nombre de degrés de liberté est très considérable de l'ordre de  $10^{24}$ . La mécanique quantique reste incapable devant cette situation d'où les chercheurs ont eu recours aux techniques d'approximation.

## II. 3. Mise en œuvre des approximations

### II.3.1 Approximation de Born-Oppenheimer

La première approximation a été élaborée par Max Born (1882-1970) et Robert Oppenheimer (1904-1967) en 1927 [5]. Elle consiste à découpler le mouvement des électrons de celui des noyaux. En raison de leur masse qui est beaucoup plus élevée, les noyaux peuvent être considérés comme fixes par rapport aux électrons. Alors les électrons se déplacent donc beaucoup plus rapidement que les noyaux atomiques. Dans cette approximation les électrons sont toujours dans leur état fondamental et ce, quel que soit la position des noyaux atomiques. Cette approximation simplifie notamment l'équation de Schrödinger, les termes d'énergies cinétiques des noyaux et d'interactions noyaux-noyaux, indépendants des électrons, s'annulent. Le problème à résoudre maintenant, est donc un système de  $N$  électrons en interaction dans un potentiel extérieur généré par les noyaux. Le terme d'interaction entre les noyaux n'intervient que dans le calcul de l'énergie totale du système, mais pas dans le calcul des fonctions d'ondes électroniques. Donc un nouvel hamiltonien s'est défini et donné par:

$$H_e = T_e + V_{e-e} + V_{e-N} \quad (\text{II. 10})$$

La fonction d'onde  $\Psi(\vec{x}, \vec{R})$  peut alors s'écrire :

$$\Psi(\vec{x}, \vec{R}) = \psi(\vec{x}, \vec{R})\chi(\vec{R}) \quad (\text{II. 11})$$

Où:

$\psi(\vec{x}, \vec{R})$ , est la fonction d'onde électronique.

$\chi(\vec{R})$ , est la fonction d'onde des ions.

L'approximation de Born-Oppenheimer permet alors de réévaluer ce problème de mécanique quantique en considérant les noyaux immobiles dont les positions déterminent la fonction d'onde électronique  $\psi(\vec{x}, \vec{R})$  de l'état fondamental. Les noyaux sont privés de leur caractère dynamique et sont réduits en une charge positive externe au nuage électronique. La résolution de l'équation électronique de Schrödinger qui dépend des positions  $\vec{R}$  des ions, permet de calculer les énergies  $\epsilon_n$  des états électroniques  $n$ .



$$\left[ \sum_{i=1}^n \frac{\nabla_i^2}{2m} + \sum_{i>j} v_{e-e}(\vec{r}) - \sum_{i,I} v_{e-N}(\vec{r}, \vec{R}) \right] \psi(\vec{x}, \vec{R}) = \varepsilon_n(\vec{R}) \psi(\vec{x}, \vec{R}) \quad (\text{II.12})$$

Malgré cette réduction, l'équation de Schrödinger demeure difficile à résoudre. Alors d'autres approximations sont faites sur la solution de l'équation électronique de Schrödinger. La nouvelle fonction d'onde totale du système dépend des coordonnées de tous les électrons et ne peut être découpée par conséquent le problème ne peut être résolu surtout dans les calculs utilisant les ressources informatiques actuelles.

### II .3.2 Approximations de Hartree et de Hartree-Fock :

L'une des premières méthodes permettant de résoudre le problème de l'atome réel et complexe sur la base du cas mono-électronique fut celle de Hartree[6] qui exprima la fonction d'onde globale comme un produit de fonctions mono-électroniques, c.à-d. chaque électron se déplace de façon indépendante dans le champ moyen créé par les autres électrons et les noyaux. Ce résultat peut être atteint en faisant appel à la notion de champs self-consistent. L'approche développée par Hartree [7,8] qui consiste à modéliser l'interaction de Coulomb par un potentiel effectif de Hartree  $V_H$  agissant sur chaque électron. Considérons un électron  $i$  quelconque.

L'hamiltonien peut alors s'écrire comme une somme d'hamiltoniens mono-électroniques comme suit:

$$H = \sum_i H_i \quad (\text{II.13})$$

avec

$$H_i = \sum_j \left[ -\frac{1}{2} \nabla_i^2 + v_{e-N}(\vec{r}_i, \vec{R}) + v_{e-e}(\vec{r}_i, \vec{r}_j) \right] \quad (\text{II.14})$$

Où  $T_e = \sum_{i=1}^n -\frac{1}{2} \nabla_i^2$  est l'énergie cinétique d'un système d'électrons indépendants.

$v_{e-e} = v_H = \int \frac{|\phi_j(\vec{r}')|^2}{|\vec{r}-\vec{r}'|} d^3r' = \int \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r}-\vec{r}'|} d^3r'$  est l'énergie potentielle associée à l'interaction coulombienne avec les autres électrons du gaz (également appelé "potentiel de Hartree") et  $v_{e-N}$  celui avec les ions.

L'approximation introduite consiste à écrire la fonction d'onde électronique comme le produit des fonctions d'onde mono-électroniques :

$$\psi = \phi_1 \phi_2 \phi_3 \dots \phi_n = \prod_{i=1}^n \phi_i \quad (\text{II. 15})$$

Et l'énergie de ce système est égale à la somme des énergies de tous les électrons :

$$E = \sum_i E_i \quad (\text{II. 16})$$

$$H_i \Phi_i = E_i \Phi_i \quad (\text{I. 17})$$

Donc Le système d'équation **(I-17)** se résout de manière auto-cohérente.

Le champ moyen de Hartree permet de ramener l'équation d'un système à plusieurs électrons à un système à un seul électron. Cette théorie néglige les effets d'échange-corrélation.

En 1930, Fock [9] a montré que la fonction d'onde de Hartree viole le principe d'exclusion de Pauli c'est-à-dire les électrons ne sont pas traités comme des fermions et parce cette fonction n'est pas antisymétrique par rapport à l'échange des deux particules quelconques. Alors Fock a proposé de corriger ce défaut en ajoutant un terme supplémentaire non local d'échange qui complique considérablement les calculs. La fonction d'onde est alors remplacée par un déterminant de Slater [10] se composant de fonctions d'onde mono électroniques donné par :

$$\psi_{1..n}(x_1, \dots, x_n) = \frac{1}{\sqrt{n!}} \begin{vmatrix} \phi_1(x_1) & \phi_1(x_2) \dots & \phi_1(x_n) \\ \phi_2(x_1) & \phi_2(x_2) \dots & \phi_2(x_n) \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ \phi_n(x_1) & \phi_n(x_2) \dots & \phi_n(x_n) \end{vmatrix} \quad (\text{II. 18})$$

Cette approximation conduit à de bons résultats, notamment en physique moléculaire, elle ne peut donc traiter que des systèmes avec peu d'électrons comme les petites molécules. Elle ne tient pas compte des effets de corrélations électroniques. Par conséquent pour le traitement des systèmes étendus comme les solides c'est difficile à l'appliquer [11].

$$\psi = \phi_1 \phi_2 \phi_3 \dots \phi_n = \prod_{i=1}^n \phi_i \quad (\text{II. 19})$$

## II.4. La théorie de la fonctionnelle de la densité DFT(*Density Functional Theory* )

### II.4.1. Formalisme mathématique

Une fonctionnelle est ce qu'on appelle une fonction de fonction. Elle associe à une fonction un nombre. Par exemple, l'aire est une fonctionnelle de la position. On trouve les fonctionnelles sous la forme :

$$F(r) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\theta f[r(\theta)] \quad (\text{II.20})$$

On peut réaliser de nombreuses opérations sur les fonctionnelles. Notamment, on peut les dériver, tout comme les fonctions, par la formule suivante :

$$F(R + \delta r) - F(r) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\theta \frac{\delta F}{\delta r(\theta)} \delta r(\theta) \quad (\text{II.21})$$

C'est-à-dire, une petite variation fait varier la fonctionnelle d'une petite fonction.

Comme, on peut, dans les calculs, chercher à minimiser les fonctionnelles soumises à une contrainte extérieure. Ceci est possible grâce à la méthode des multipliants de Lagrange.

Soit  $A(r)$  une fonctionnelle.

On construit une nouvelle fonctionnelle  $B(r)$  telle que :

$$B(r) = A(r) - \mu P(r) \quad (\text{II.22})$$

Avec  $P(r)$  la contrainte à laquelle est soumis notre système. On calcule alors :

$$\frac{\delta B(r)}{\delta r} = 0 \quad (\text{II.23})$$

C'est-à-dire

$$\frac{\delta A(r)}{\delta r} - \mu \frac{\delta P(r)}{\delta r} = 0 \quad (\text{II.24})$$

Et on en déduit  $\mu$

Alors, on obtient  $B(r)$  la fonctionnelle minimisée de notre système.

## II.4.2 La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)

La théorie fonctionnelle de la densité est une méthode de résolution des problèmes électronique multi-corps basée sur le fait que la distribution de la densité électronique est suffisante pour définir exactement l'état fondamental d'un système atomique.

Dans ce formalisme, l'énergie est exprimée en fonction de la densité électronique, sachant que la connaissance des propriétés électroniques des matériaux permet d'obtenir des informations sur les caractéristiques structurales, élastiques, thermiques et optiques. Ces propriétés électroniques se déduisent de l'équation de Schrödinger multi-électrons indépendantes du temps :

$$H\psi = E\psi \quad (\text{II.25})$$

$H$  : Hamiltonien du système.

$\psi$  : Fonction d'onde du système dépendant des coordonnées des noyaux et des électrons et contenant toutes les informations du système.

$E$  : L'énergie totale du système.

L.H. Thomas (1927), Fermi (1927, 1928) et Dirac (1930) furent les premiers à exprimer l'énergie en fonction de la densité sur le modèle du gaz d'électrons non interagissant.

Les premiers résultats de cette théorie (les fonctionnelles de Thomas-fermi), n'étaient pas très bon, et avaient du mal à rendre compte des phénomènes tels que les liaisons chimiques. La fonctionnelle de Thomas-Fermi repose sur une approximation de l'énergie cinétique. Cela falsifie les résultats et la rend moins intéressante que la méthode de Haetree-Fock [12].

Par la suite, et avec la formalisation rigoureuse de la théorie et la proposition d'une excellente approximation pour la fonctionnelle de l'énergie et grâce à l'approche de Kohn-Shum [13], la DFT a véritablement débuté avec les deux théorèmes fondamentaux de Hohenberg et Kohn [13-14] en 1964 qui établissent une relation fonctionnelle entre l'énergie de l'état fondamental et sa densité électronique.

Ces deux théorèmes montrent l'existence d'une fonctionnelle de la densité qui permet de calculer l'énergie de l'état fondamental d'un système.

Donc, la DFT se caractérise par la densité électronique car elle donne accès à toutes les grandeurs physiques du système. En effet, il est important de noter que toutes les

observables d'un système quantique se trouvent totalement déterminées par cette théorie. Autrement dit l'idée principale de la DFT est de décrire un système d'interaction multi-corps via sa densité électronique et non pas par sa fonction d'ondes à plusieurs corps. Son importance est de réduire les  $3N$  degrés de liberté du système à  $N$ -corps à seulement trois coordonnées spatiales de sa densité d'état fondamental.

La densité électronique est définie par l'intégrale suivante à travers les coordonnées de spin et toutes les coordonnées d'espace.

$$\rho(\vec{r}) = N \int \int \dots \int |\psi(x, x_2, \dots, x_n)|^2 ds \overrightarrow{dx_2} \dots \overrightarrow{dx_n} \quad (\text{II.26})$$

Avec

$$|\psi(x, x_2, \dots, x_n)|^2 = \psi(x, x_1, x_2, \dots, x_n) \psi^*(x, x_1, x_2, \dots, x_n) \quad (\text{II.27})$$

$\rho(\vec{r})$  : détermine la probabilité de trouver un des  $N$  électrons dans l'élément de volume  $d\vec{r}$

#### II.4.3 Principe de la théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT)

Le théorème de base de cette théorie est celui de Hohenberg et Kohn qui affirme qu'il y a bijection entre l'ensemble des potentiels  $V_{ext}(r, t)$  et celui des densités  $\rho(r)$  minimisant l'équation (II.21).

En conséquence pour obtenir la densité  $\rho_0(r)$  minimisant l'énergie associée à l'hamiltonien (II.21) permet d'évaluer l'énergie de l'état fondamental du système. Ceci grâce à la formulation du second théorème de Hohenberg et Kohn qui précise que la densité qui minimise l'énergie est celle de l'état fondamental.

$$E_0 = \langle \Phi_0 | H | \Phi_0 \rangle \quad (\text{II.28})$$

$$= \int [T_e + V_{ee} + V_{ext}] \rho_0 d^3 r_\alpha \quad (\text{II.29})$$

Il est donc possible d'exprimer l'énergie comme une simple fonctionnelle de  $V_{ext}(r, R)$ . En laissant tomber les indices zéro, la fonctionnelle de Hohenberg et Kohn est définie par

$$E_{V_{ext}} = F[\rho] + \int \rho(r) V_{ext} dr \quad (\text{II.30})$$

La DFT permet de reformuler le problème, pas de le résoudre. Il faut donc procéder à d'autres approximations sur  $F[\rho]$ .

## II.5 Méthodes d'approximation pour calcul d'énergie d'échange et de corrélation :

Dans l'approche de Kohn et Sham toute la complexité du problème à N corps est rejetée dans  $E_{xc}$  qui contient les effets des interactions électron-électron au delà du terme de Hartree. La forme explicite de  $E_{xc}$  comme fonctionnelle de la densité n'est pas connue; on doit donc recourir aux approximations. La plus simple consiste à supposer que  $E_{xc}[\rho]$  est une fonctionnelle locale de la densité (LDA).

### II.5.1 Approximation de la densité locale (LDA) :

Dans l'approximation de la densité locale (Local Density Approximation LDA), il est supposé que la densité électronique peut être traitée localement sous la forme d'un gaz d'électrons uniforme. La réussite de la théorie de la fonctionnelle de la densité est due à la correction de l'énergie d'échange-corrélation en utilisant la fonctionnelle exacte pour un gaz homogène d'électrons ; la densité électronique et la fonction d'onde sont considérées localement comme constantes.

L'énergie d'échange-corrélation peut être écrite sous la forme :

$$E_{xc}^{LDA} = \int \varepsilon_{xc}[\rho(r)] dr \quad (\text{II.31})$$

Où

$\varepsilon_{xc}[\rho(r)]$ : est la densité d'énergie d'échange corrélation par particule d'un gaz d'électrons uniforme. Elle est déterminée par des procédures de para-métrisation comme celle de Hedin et al. Ou Perdew et al. Par ailleurs, elle est divisée en deux contributions : énergie d'échange et énergie de corrélation telle que :

$$\varepsilon_{xc}(\rho) = \varepsilon_x(\rho) + \varepsilon_c(\rho) \quad (\text{II.32})$$

L'approximation LDA, présente quelques défauts : certaines grandeurs sont surestimées, telles que les énergies de liaisons, d'autres sont sous-estimées, telles que les longueurs de liaisons [15]. La plus grande partie des erreurs de l'approximation locale LDA provient de la partie de l'énergie d'échange.

La LSDA (*Local Spin Density Approximation*) est l'introduction de la notion de spin dans l'approximation de la LDA. La densité électronique se divisant en deux

populations  $\rho_{\uparrow}$  spin haut et  $\rho_{\downarrow}$  spin bas, l'énergie sera alors :

$$E_{xc}^{LSDA}[\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}] = \int \varepsilon_{xc}^{hom}(\rho_{\uparrow}(\vec{r}), \rho_{\downarrow}(\vec{r})) \rho(\vec{r}) d^3r \quad (\text{II.33})$$

L'avantage de cette approximation est qu'elle permet de décrire les systèmes placés dans un champ magnétique externe et d'accéder à la susceptibilité. La LSDA convient à l'étude des systèmes dont la variation de la densité électronique est lente ou rapide ce qui la rend d'un usage plus fréquent que la LDA [16]. Cependant, tout comme la LDA, la LSDA surévalue les énergies de liaisons et donne des gaps trop faibles pour les semi-conducteurs et les composés isolants.

### II.5.2 Approximation de la densité locale (LDA) :

C'est une amélioration de la LDA dans le traitement de l'énergie d'échange et de corrélation qui consiste à la rendre dépendante non seulement de la densité électronique mais aussi de son gradient  $|\nabla\rho(r)|$ . Ainsi la fonctionnelle  $E_{xc}^{LDA}[\rho(r)]$  rend compte du caractère non uniforme du gaz d'électrons.

Dans ce cas, la contribution de  $E_{xc}^{LDA}[\rho(r)]$  à l'énergie totale du système peut être additionnée de façon cumulée à partir de chaque portion du gaz non uniforme comme s'il était localement non uniforme. On obtient alors l'approximation du gradient généralisé (GGA) (Generalized Gradient Approximation) [17-18] qui donne :

$$E_{xc}^{GGA}[\rho, \nabla\rho] = \int f[\rho(r), \nabla_n(r)] d^3r \quad (\text{II.33})$$

Il existe de nombreuses versions de  $f$ . L'utilisation de cette approximation est opérante pour des systèmes dont la densité électronique varie fortement. Plusieurs calculs ont été effectués par cette approximation sur une variété de matériaux et pour plusieurs para-métrisations; Perdew et Wang (1992) [19]; Singh et Ashkenazi (1992) [20]; Korling et Haglund (1992) [21]; Perdew, Burke, et Ernzerhof (1996) [22].

## II.6 Equations de Kohn et Sham :

Kohn et Sham[23] ont noté que la densité électronique comme étant la somme des densités des particules indépendantes. Ils ont montré que la densité exacte est donnée par la solution selfconsistent des équations de Schrödinger d'une seule particule. Ces équations de Kohn et Sham(KS) sont données comme suit :

$$\{T + V_{ei}(r) + V_H(r) + V_{xc}(r)\}\Psi_i(r) = \varepsilon_i \Psi_i(r) \quad (\text{II.34})$$

Où la densité est donnée par la somme des orbitales occupées :

$$\rho(r) = \sum_{occup} \Psi_i^*(r) \cdot \Psi_i(r) \quad (\text{II.35})$$

Où  $\Psi_i$  sont les orbitales de la particule,  $\varepsilon_i$  sont les valeurs propres correspondantes,  $T$

est

l'opérateur de l'énergie cinétique,  $V_{ei}$  est le potentiel de Coulomb dû au noyau atomique,  $V_H$  est le potentiel de Hartree, et  $V_{xc}$  est le potentiel d'échange et de corrélation. Les deux derniers potentiels  $V_H$  et  $V_{xc}$  s'écrivent en fonction de  $\rho$  :

$$V_H(r) = e^2 \int \frac{\rho(r')}{|r-r'|} d^3r' \quad (\text{II.36})$$

Et :

$$V_{xc}(r) = \frac{\partial E_{xc}[\rho]}{\partial \rho(r)} \quad (\text{II.37})$$

Dans les solides, le théorème de Bloch convient avec les calculs de la DFT, car la densité de charge possède la même périodicité que le réseau, ainsi que l'hamiltonien de Kohn et Sham pour une seule particule. Les orbitales de (KS) avec différents moments de Bloch sont couplées indirectement par la densité, qui dépend du potentiel. Dans les calculs basés sur la DFT, les équations de (KS) d'une seule particule peuvent être résolues séparément sur un ensemble de points dans la zone de Brillouin, et les orbitales qui en résultent sont utilisées dans la construction de la densité de charge.



## II.7 Le théorème de Kohn et Hohenberg :

Hohenberg et Kohn ont développé deux théorèmes en 1964 en faveur de la théorie de la fonctionnelle de densité comme suit :

### Théorème 01 :

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

Ce théorème signifie qu'il suffit de connaître seulement la densité électronique pour déterminer toutes les fonctions d'onde.

En conséquence, l'énergie totale  $E$  d'un système d'électrons en interaction dans un potentiel extérieur est représentée comme une fonctionnelle de la densité électronique de l'état fondamental,  $\rho_0$ , donnée comme suit :

$$E = \langle \varphi | H | \varphi \rangle = F[\rho] + \int V_{ext}(\vec{r}) \rho(\vec{r}) d\vec{r} \quad (\text{II.38})$$

Avec  $F[\rho] = \langle \varphi | U + T | \varphi \rangle$

$T$  et  $U$  sont respectivement l'énergie cinétique et l'interaction inter-particules qui ne dépend pas du potentiel extérieur. On fait appel à l'approximation de Hartree, on trouve

$$F[\rho] = \iint \frac{\rho(\vec{r})\rho(\vec{r}')}{|\vec{r}-\vec{r}'|} d\vec{r}d\vec{r}' + G[\rho] \quad (\text{II.39})$$

$G[\rho]$  représente l'énergie cinétique plus la différence entre l'énergie d'interaction vraie et celle donnée par le terme d'interaction de Hartree. Les fonctionnelles de la densité électronique  $F[\rho]$  et  $G[\rho]$  sont valables quelque soit la forme du potentiel extérieur et le nombre d'électrons.

### Théorème 02 :

La fonctionnelle de l'énergie totale de tout système à plusieurs particules possède un minimum qui correspond à l'état fondamental. La densité des particules de l'état fondamental vérifie :

$$E(\rho_0) = \text{Min} E(\rho) \quad (\text{II.40})$$

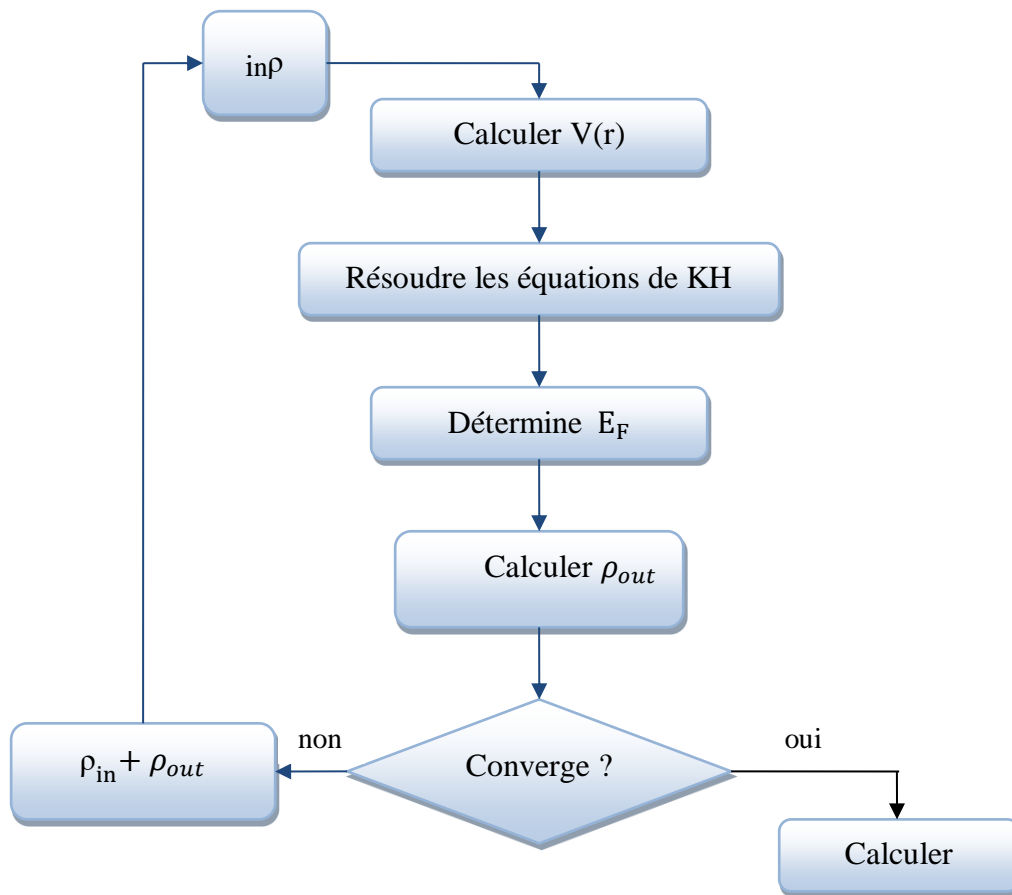
Hohenberg et Kohn ont montré que la vraie densité de l'état fondamental c'est celle qui minimise l'énergie  $E(\rho)$ , et toutes les autres propriétés sont aussi une fonctionnelle de cette densité. L'énergie de l'état fondamental d'un système électronique dans un potentiel extérieur est déterminée par la méthode variationnelle.

## II.8 La self consistence dans les calculs de la DFT :

La puissance du théorème de Hohenberg et Kohn réside dans le fait que l'énergie est variationnelle. La vraie densité de l'état fondamental est celle qui minimise l'énergie. La densité de charge est obtenue en utilisant l'équation (I.35)[24], et la densité de charge de la  $(i+1)^{\text{ième}}$  itération à la forme suivante :

$$\rho_{in}^{i+1} = (1 - \alpha)\rho_{in}^i \quad (\text{II.41})$$

Où  $\alpha$  est le paramètre de mixage. Si  $\alpha$  est suffisamment petit, les itérations convergent. Cependant, le rayon de convergence devient rapidement petit quand la dimension de la cellule unité augmente, particulièrement pour les systèmes métalliques. Plusieurs techniques de calculs ont été mises en évidence, parmi lesquelles on trouve la méthode de Broyden (1965) qui s'effectue selon le schéma de la figure (I.1). Ce processus commence par une superposition des densités atomiques pour construire la densité cristalline initiale  $\rho_{in}$ , cette densité est utilisée par la suite pour calculer le potentiel  $V(r)$  qui est utilisé dans la résolution des équations de Kohn et Sham d'une seule particule et la détermination de l'énergie de Fermi. Après cette étape, une nouvelle densité de sortie doit être créée et testée suivant certaines conditions de convergence. Alors, si cette densité obéit à ces conditions on s'arrête; sinon on mixe les densités de sortie et d'entrée suivant l'équation (II.41) et le processus se répète jusqu'à la convergence.



**Figure (II.1)** le cycle self-consistent dans le calcul de la fonctionnelle de densité

## **II.9 La méthode des ondes planes augmentées et linéarisées (FP-LAPW)**

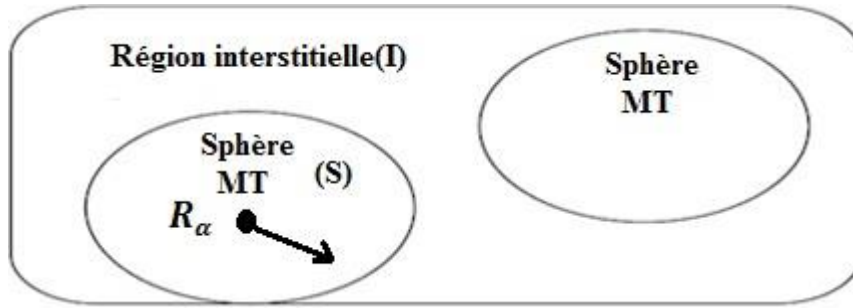
### **II.9.1 Introduction**

Parmi les méthodes Abinitio, la méthode des ondes planes augmentées linéarisées à potentiel total (FP-LAPW) est parmi les techniques qui jouent un rôle très important pour résoudre les équations de la fonctionnelle de la densité [38], en effet la résolution des équations de Kohn-Sham nécessite l'utilisation d'un deuxième type d'approximation qui est d'ordre "technique" lié à la mise en œuvre pratique d'un code de calcul (et non à la DFT), et concerne les choix effectués pour simplifier la résolution de ces équations ; il s'agit principalement du choix de la base des fonctions d'ondes pour projeter les états mono-électroniques de Kohn-Sham et du choix de la forme du potentiel effectif généré par un nombre infini de noyaux ou d'ions, c.-à-d., le potentiel externe. Les bases de fonctions d'ondes sont répertoriées dans trois types : (1) combinaison linéaire d'orbitales atomiques (linear combination of atomic orbitals "LCAO"), (2) ondes planes augmentées linéarisées (linearized augmented plane waves "LAPW") et (3) ondes planes (plane waves "PW"). De l'autre côté, on pourra citer trois formes du potentiel : le modèle de Jellium, la méthode des pseudo-potentiels et les méthodes tous électrons.

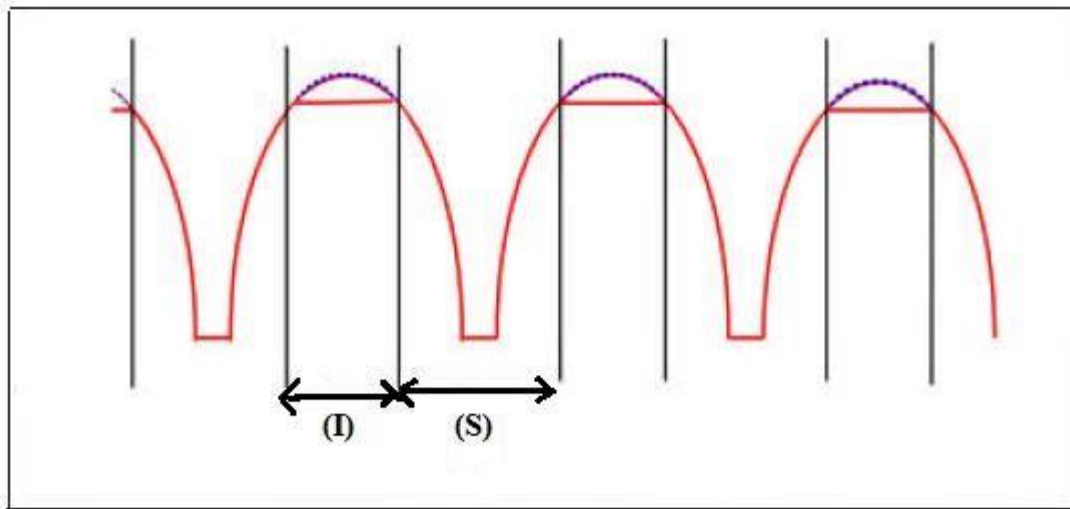
### **II.9.2 La méthode des ondes planes augmentées (APW)**

La méthode des ondes planes augmentées (APW) [39] a été développée par Slater en 1937 [40], elle est issue du constat suivant : La solution de l'équation de Schrödinger pour un potentiel constant est une onde plane, tandis que pour un potentiel sphérique c'est une fonction radiale. Une façon de décrire un potentiel cristallin de type Muffin-tin (MT) (les figures II-2 et II-3) est donc de diviser l'espace en deux régions :

- i.** Une première région (S) constituée de sphères centrées sur chaque site atomique dans les quelles les fonctions d'ondes seront basées sur des fonctions radiales.
- ii.** Une seconde région (I), dite interstitielle se situant entre les atomes et pour laquelle les fonctions de bases sont des ondes planes.



**Figure II.2 :** Construction des différentes régions du cristal dans la métho de APW



**Figure II.3:** Approximation de la forme du potentiel (Muffin-tin).

Les deux régions sphérique et interstitielle sont définies par les fonctions d'ondes:

$$\varphi(r) = \begin{cases} \frac{1}{\Omega^2} \sum_G C_G e^{i(G+K)r} & r \in I \\ \sum_{lm} A_{lm} U_l(r) Y_{lm}(r) & r \in S \end{cases} \quad (\text{II.42})$$

Où  $\Omega$  est le volume de la maille unitaire,  $C_G$  et  $A_{lm}$  sont les coefficients de développement,  $r$  est la position en coordonnées polaires à l'intérieur de la sphère,  $K$  est le vecteur d'onde dans la Zone de Brillouin irréductible (IBZ),  $G$  est le vecteur de l'espace réciproque et  $U_l(r)$  est la solution numérique de la partie radiale de l'équation de Schrödinger avec l'énergie  $E_l$ :

$$\left\{ -\frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{r^2} + V(r) - E_l \right\} r U_l(r) = 0 \quad (\text{II.43})$$

Avec  $V$  : La composante sphérique du potentiel dans la sphère, les fonctions radiales définies par cette équation sont automatiquement orthogonales à chaque état du même Hamiltonien qui disparaît à la frontière des sphères. Le chevauchement de ces dernières est construit à partir de:

$$(E_2 - E_1)r_{u_1u_2} = U_2 \frac{d^2ru_1}{dr^2} - u_1 \frac{d^2ru_2}{dr^2} \quad (\text{II.44})$$

Où  $u_1$  et  $u_2$  sont les solutions radiales aux différentes énergies  $E_1$  et  $E_2$ .

Pour assurer la continuité de la fonction  $\varphi(r)$  à la surface de la sphère Muffin-tin MT, les coefficients  $A_{lm}$  doivent être développés en fonction des coefficients  $C_G$  des ondes planes existantes dans la région interstitielle:

$$A_{lm} = \frac{4\pi i^l}{\Omega^{\frac{1}{2}}u_l(R_{MT})} \sum_G C_G J_l (|K + G|R_{MT}) Y_{lm}(K + G) \quad (\text{II.45})$$

Où l'origine est prise au centre de la sphère dont le rayon de la sphère RMT.

Les coefficients  $A_{lm}$  contiennent le terme  $u_l$  au dénominateur, il est possible de trouver des valeurs de l'énergie pour les quelles  $u_l$  s'annule à la limite de la sphère, et par conséquent les coefficients  $A_{lm}$  divergent, de plus si les bandes se produisent près de l'asymptote des difficultés numériques peuvent se produire, c'est le problème de l'asymptote.

### II.9.3 La méthode des ondes planes augmentées est linéarisées (LAPW)

La présence d'asymptotes dans la méthode APW était le principal inconvénient néanmoins elle fonctionne au mieux pour les systèmes simples avec seulement peu de valeurs propres. En 1975, Anderson [41] a proposé la méthode des ondes planes augmentées et linéarisées (LAPW) dans laquelle les fonctions de base et leurs dérivées sont continuées en les égalisant pour une énergie fixe. Ce choix résout les problèmes rencontrés dans la méthode APW.

### II.9.3.1 La méthode des ondes planes augmentées est linéarisées(LAPW)

Dans le cas de la méthode LAPW, les fonctions de base à l'intérieur de la sphère muffin-tin sont une combinaison linéaire des fonctions radiales  $[U(r)Y_{lm}(r)]$  et de leurs dérivées par rapport à l'énergie  $[U'(r)Y_{lm}(r)]$ . Les  $U_l$  sont définis comme dans la méthode APW, mais avec l'énergie  $E_l$  constante. Les fonctions de bases ont alors données par:

$$\varphi(r) = \begin{cases} \frac{1}{\Omega^2} \sum_G C_G e^{i(G+K)r} & r \in I \\ \sum_{lm} [A_{lm} U_l(r) + B_{lm} U'_l(r)] Y_{lm}(r) & r \in S \end{cases} \quad (\text{II.46})$$

Où les  $B_{lm}$  sont les coefficients de la dérivée de la fonction radiale par rapport à l'énergie, comme les coefficients  $A_{lm}$  pour la fonction radiale.

La méthode des ondes planes augmentées et linéarisées permet de construire  $U_l$  à l'énergie propre  $E_l = \varepsilon^k$  de l'état propre recherché et de récupérer  $U_l$  parmi les quantités connues.

La fonction radiale  $U_l$  pour une certaine énergie  $E_l$  est déterminée par:

$$U_l(\varepsilon, r) = U_l(E_l, r) + (\varepsilon - E_l) \dot{U}_l(\varepsilon, r) + O((\varepsilon - E_l)^2) \quad (\text{II.47})$$

Où  $(\varepsilon - E_l)^2$  est l'erreur quadratique.

La méthode FP-LAPW entraîne une erreur quadratique sur les fonctions d'ondes de l'ordre de  $(\varepsilon - E_l)^2$  et une autre sur les énergies de bandes de l'ordre de  $(\varepsilon - E_l)^4$  malgré cet ordre d'erreur, les fonctions LAPW forment une bonne base qui permet avec une seule  $E_l$  d'obtenir toutes les bandes de valence dans un grand intervalle d'énergie.

- Dans la méthode LAPW, l'énergie des bandes aux points  $\mathbf{k}$  est obtenue par une simple diagonalisation.
- Le problème de l'asymptote est éliminé par l'introduction de la dérivée de la fonction par rapport à l'énergie qui garantit le non découplage des ondes planes avec les fonctions radiales.
- La base de la méthode LAPW est plus flexible car il y a plus de liberté variationnelle que dans la méthode APW.

Ainsi, la synthèse des fonctions de bases LAPW consiste à:

1. La détermination des fonctions radiales  $U_l(r)$  et leurs dérivées  $U'_l(r)$  par rapport à l'énergie.
2. La détermination des coefficients  $A_{lm}$  et  $B_{lm}$  en imposant la continuité de la fonction d'onde et sa dérivée à la limite de la sphère Muffin-tin.

### II.9.3.2 Représentation de la densité de charge et du potentiel

La solution des équations de Kohn-Sham obtenue par la méthode LAPW se base sur l'utilisation de la double représentation des fonctions d'ondes de la charge et du potentiel. Pour simplifier la synthèse de la charge et la matrice Hamiltonienne, la symétrie est exploitée dans le but de réduire le nombre de paramètres à stocker.

Les symétries utilisées sont:

- A l'intérieur des sphères, la densité possède la symétrie du site.
- La densité dans la région interstitielle a la symétrie du groupe d'espace.

Les densités à l'intérieur des atomes, reliées par des opérations de symétrie, sont identiques.

### II.9.3.3 Définition des stars

Les stars sont utilisées dans la région interstitielle et sont définies comme suit:

$$\phi_s = \frac{1}{N_{op}} \sum_R e^{iRG(r-t_R)} = \frac{1}{m_s} \sum_m \varphi_m e^{iR_m Gr} \quad (\text{II.48})$$

$R$ : Sont les composants de rotation des opérations du groupe d'espace  $\left\{ \begin{matrix} R \\ t \end{matrix} \right\}$

$N_{op}$ : Le nombre des opérateurs du groupe d'espace.

$m_s$ : Le nombre de sondes planes dans l'étoile.

$\varphi_m$ : Le facteur de phase qui assure la symétrie du réseau pour l'étoile. On note que les stars sont Orthogonales.

### II.9.3.4 Les harmoniques du réseau

Les harmoniques du réseau sont de symétrie sphérique, elles sont utilisées à l'intérieur des sphères. Cependant les harmoniques du réseau sont référencées au centre de la sphère car elles sont construites en exploitant la symétrie du site:

$$K_{\vartheta, \alpha}(r - R_\alpha) = \sum_m C_{\vartheta, m}^\alpha Y_{lm}(r - R_\alpha) \quad (\text{II.49})$$

Où  $R_\alpha$  est la position de l'atome.

Le calcul des coefficients  $C_{\vartheta, m}$  est fait de telle manière que les harmoniques sphériques soient réelles et invariantes par les opérations de rotation que possède le site, et qu'elles soient Orthogonales.



### II.9.3.5 La résolution de l'équation de Poisson

La densité de charge est donnée par un développement sur les harmoniques du réseau dans la région Muffin-tin et par un développement sur les stars dans la région interstitielle.

$$\rho(r) = \begin{cases} \sum_S \rho_S(r) \phi_S(r) \\ \sum_V \rho_V(r) K_V(r) \end{cases} \quad (\text{II.50})$$

Le potentiel utilisé dans les équations de KS comprend le terme d'échange et de corrélation  $V_{xc}(r)$ , et le terme coulombien  $V_C(r)$ , le terme coulombien est la somme du potentiel de Hartree  $V_H(r)$  et du potentiel nucléaire. Il est calculé à partir de l'équation de Poisson:

$$\nabla^2 V_C(r) = 4\pi\rho(r) \quad (\text{II.51})$$

L'intégration de cette équation est seulement possible dans l'espace réciproque, elle est donnée par:

$$V_C(G) = \frac{4\pi\rho(G)}{G^2} \quad (\text{II.52})$$

Les moments multipolaires à l'intérieur de la sphère sont calculés par l'expression ci-dessous :

$$q_{lm} = \sum_V C_{v,m} \int_0^{R_\alpha} r^{l+2} \rho_\vartheta(r) \delta_{l,l_v} dr \quad (\text{II.53})$$

Malheureusement, dans la méthode LAPW la densité  $\rho(r)$  contient la densité de cœur qui varie rapidement, le développement de Fourier pour  $\rho(G)$  ne converge pas. Wiener [42] a développé une méthode hybride basée sur trois observations:

- 1) La densité de charge est continue et varie lentement dans la région interstitielle et beaucoup plus rapidement dans les sphères.
- 2) Le potentiel coulombien dans la région interstitielle dépend à la fois de la charge interstitielle et du multi-pôle de la charge à l'intérieur de la sphère.
- 3) Une combinaison linéaire d'ondes planes décrit complètement la densité de charge interstitielle. Cette méthode est appelée la méthode de pseudo-charge.

Dans la région interstitielle , la densité de charge est développée en série de Fourier:

$$\rho(r) = \sum_G \rho(G) e^{iG.r} \quad (\text{II.54})$$

Et les ondes planes  $e^{iG.r}$  sont calculées à partir de la fonction de Bessel  $J_l$ :

$$\int_0^R r^{l+2} J_l(Gr) dr = \begin{cases} \frac{R^{l+3} J_l(GR)}{GR} & \{ G \neq 0 \\ \frac{R^3}{3} \delta_{l,0} & \{ G = 0 \end{cases} \quad (\text{II.55})$$

$$e^{iGr} = 4\pi e^{iGr_\alpha} \sum_{lm} i^l J_l(|G||r - r_\alpha| Y_{lm}^*(G)) Y_{lm}(r - r_\alpha) \quad (\text{II.56})$$

La pseudo-charge construite est égale à la charge originale dans la région interstitielle, elle a les mêmes multi-pôles à l'intérieur de chaque sphère tout comme la vraie densité de charge sphérique cela est rendu possible grâce à l'ajout de fonctions lisses qui s'annulent à l'extérieur de la sphère et qui ont les mêmes multi-pôles, contrairement aux multi-pôles de charge sphérique et aux multi-pôles des ondes planes originales. Le choix de ces fonctions est arbitraire ,on utilise donc une forme polynomiale:

$$\hat{\rho}_\alpha(r) = \sum_{lm} Q_{lm} \frac{1}{R_\alpha^{l+3}} \left(\frac{r}{R_\alpha}\right)^l \left(1 - \frac{r^2}{R_\alpha^2}\right)^N Y_{lm}(\hat{r}) \quad (\text{II.57})$$

Où  $r$  est la position par rapport au centre de la sphère, cette forme a (N-1) dérivées continues en utilisant l'expansion de la fonction de Bessel, les moments multipolaires s'écrivent sous la forme:

$$\hat{q}_{lm} = Q_{lm} \frac{\Gamma(l+\frac{3}{2})\Gamma(N+1)}{2\Gamma(l+N+\frac{5}{2})} = Q_{lm} \frac{2^N N!(2l+1)!!}{(2l+2N+3)!!} \quad (\text{II.58})$$

Pour calculer le potentiel dans la sphère on utilise la fonction de Green car c'est un problème de condition sauf limites :

$$V_v(r) = V_{lm}^{pw}(R) \left[\frac{r}{R}\right]^l + \frac{4\pi}{2l+1} \left\{ \frac{1}{r^{l+1}} \int_0^r dr' r'^{l+2} \rho_v(r') + r^l \int_r^R dr' r'^{1-l} \rho_v(r') \right\} \quad (\text{II.57})$$

$$-\frac{4\pi r^l}{(2l+1)R^{2l+1}} \int_0^R dr' r'^{l+2} \rho_v(r')$$

Où  $S$  est le rayon de la sphère,  $\rho_v(r)$  est la partie radiale du développement de la charge sur les harmoniques du réseau.

La forme de la matrice de chevauchement  $S_{G,G'}$  et la matrice Hamiltonienne  $H_{G,G'}$  peuvent être décomposées en deux parties ,interstitielle et sphérique:

$$S_{GG'} = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} d^3 r e^{i(G'-G)r} \Theta(r) + \sum_{\alpha} S_{\alpha}(G, G') \quad (\text{II.58})$$

$$S_{GG'} = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} d^3 r \Theta(r) e^{i(G+K)r} [T + V_{pw}] e^{i(G'+K)r} + \sum_{\alpha} [H_{\alpha}(G, G') + V_{\alpha}^{NS}(G, G')] \quad (\text{II.59})$$

Où  $T$  est l'opérateur de l'énergie cinétique,  $S_{\alpha}(G, G')$  est la contribution de la matrice de chevauchement de la sphère  $\alpha$ ,

$H_{\alpha}^{\alpha}(G, G')$  est la contribution sphérique de l'Hamiltonien.  $(G, G')$  est la partie non sphérique du potentiel plus le potentiel d'échange-corrélation (à l'intérieur de la sphère du Muffin-tin),  $V_{pw}$  est le potentiel à l'extérieur de la sphère plus le potentiel d'échange-corrélation et reste la fonction de saut usuelle.

## II.9.4 Le code WIEN2K

### II.2.4.1 : Introduction

Le code WIEN2k est un programme de calcul de la structure électronique des solides dans le cadre de la Théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT) basé sur la méthode FP-LAPW. Il a été développé par P. Blaha, K. Schwarz, G. Madsen, D. Kvasnicka et J. Luitz[43] (Vienna University of Technology, Austria). WIEN2K consiste en différents programmes indépendants qui sont liés par le SHELLSCRIPT. WIEN2k sert à effectuer des calculs quantiques dans le but d'étudier les différentes propriétés structurales, mécaniques, électriques, magnétiques...etc. des solides périodiques. Les calculs s'effectuent par ce code ; sont basés sur la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT).

### II.2.4.2 : Définition des programmes

La procédure de calcul Ab-initio (figure II.3) dans le code WIEN2k se divise en deux étapes majeures, dans un premier temps l'initialisation consiste à générer la densité électronique de départ, à partir d'un calcul atomique, différentes opérations sont alors effectuées grâce à l'ensemble des sous-programmes suivant:

- **NN** fournit les distances entre plus proches voisins et les positions équivalentes afin de déterminer le rayon atomique de la sphère Muffin-Tin.
- **LSTART** permet de générer les densités atomiques et détermine également comment les différentes orbitales atomiques sont traitées dans le calcul de la structure de bandes (états de cœur ou de valence)
- **SYMMETRY** permet de générer les opérations de symétrie du groupe spatial et de déterminer le groupe ponctuel des sites atomiques individuels.
- **KGGEN** génère une maille de point *sk* dans la Zone de Brillouin.
- **DSTART** génère une densité de départ pour le cycle auto-cohérent (le cycle SCF) par la superposition des densités atomiques générées dans LSTART. Dans un second temps, les énergies et la densité électronique de l'état fondamental sont calculées au cours d'un cycle auto-cohérent (ou self-consistent, noté SCF). Ce cycle est initialisé et répété jusqu'à ce que le critère de convergence (sur l'énergie, la densité de charge, les forces, etc...) soit atteint, un second ensemble de sous programmes est alors utilisé:
  - **LAPW0** génère le potentiel de Poisson pour le calcul de la densité.
  - **LAPW1** calcule les bandes de valences, les valeurs propres et les vecteurs propres.
  - **LAPW2** calcule les densités de valence pour les vecteurs propres.

- **LCORE** calcule les états et les densités de cœur.
  - **MIXER** effectue le mélange des densités d'entrée et de sortie du cycle  $i$  et du cycle  $i-1$
- Une fois le calcul auto-cohérent achevé les propriétés caractéristiques de l'état fondamental, comme par exemple la densité de charge ou la structure de bandes sont alors déterminées.

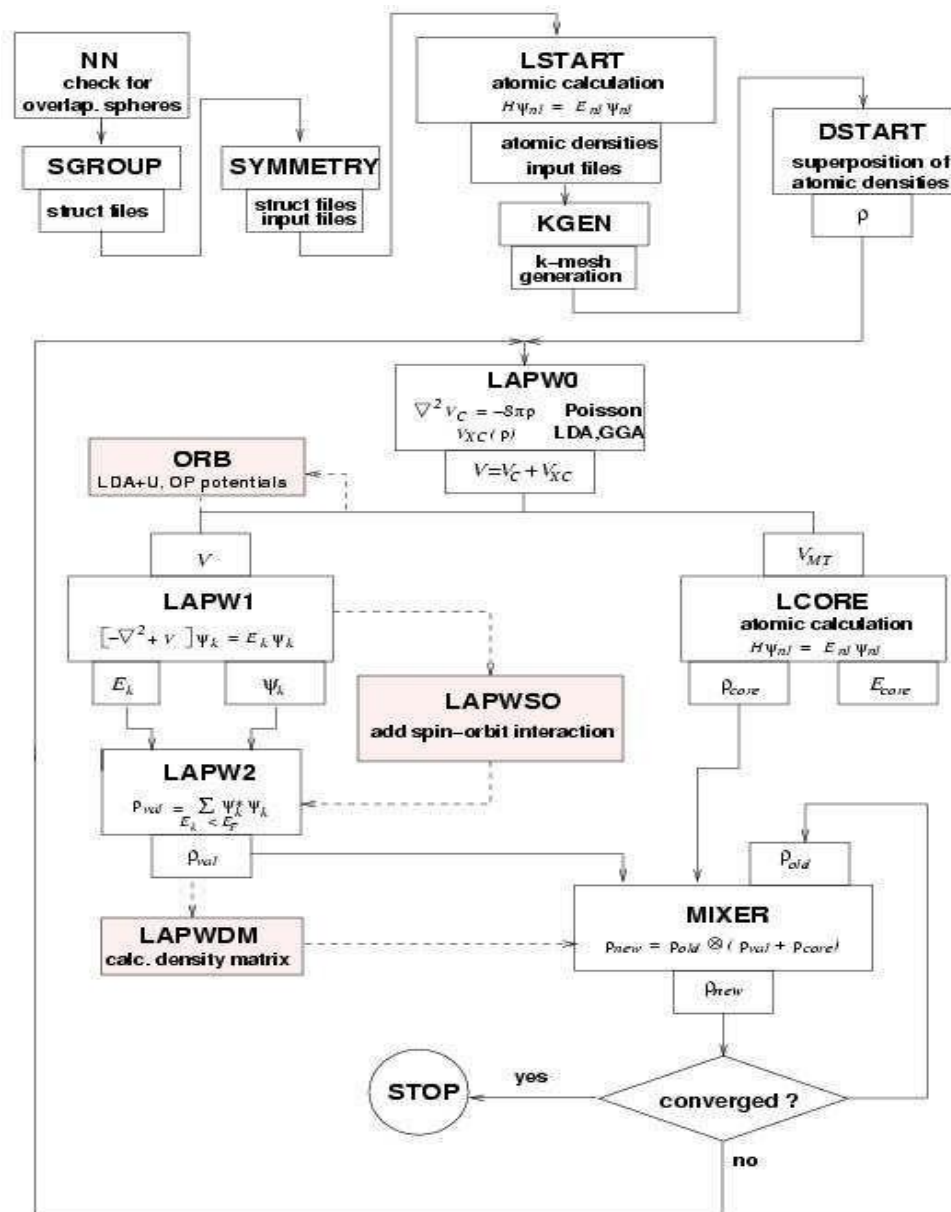


Figure II.4 : Organigramme du code WIEN2K[44].

Durant ce chapitre nous avons essayé d'exposé les principes généraux d'une méthode de premier principe LAPW [45]. La méthode des ondes planes augmentées linéairement qui est fondamentalement une modification de la méthode des ondes plane augmentées APW de Slater [46,47].

Dans cette méthode ,pour un cristal périodique tout l'espace est divisé en deux régions : Le premier est sphères Muffin-tin non chevauchées, et la deuxième c'est l'espace restant qui représente les régions interstitielles entre ces sphères. La fonction de base (LAPW)comprend de sondes planes dans la région interstitielle et augmentées dans les sphères.

Le but de la méthode LAPW est d'obtenir des énergies de bande précise au voisinage des énergies de linéarisation  $E_l$  , dans des matériaux il suffit de choisir les énergies  $E_l$  au voisinage du centre des bandes .Ce pendant ,ce n'est pas toujours possible car il existe de nombreux matériaux pour lesquels le choix d'une seule valeur  $E_l$  n'est pas suffisant pour calculer toutes les bandes d'énergie. A cette conséquence que la méthode LAPW à subit des améliorations, parmi les quel sen trouve la méthode LAPW+LO, établir par Singh [48]qui offre un meilleur traitement de problème comparativement à une résolution à partir de la méthode LAPW, ainsi que la méthode APW+ lo développer par Sjusted, Nord strom et Singh [49]qui est une amélioration supplémentaire en réalisant une base qui combine les avantages de LAPW et ceux de LAPW+LO.

## **II.10 Conclusion:**

Dans ce qui dépasse, nous avons abordé les diverses techniques de calculs utilisées dans notre manuscrit de thèse ,en particulier les méthodes Abinitio qui sont devenues aujourd'hui un outil de base pour les calculs des propriétés électroniques et structurales des systèmes plus complexes.

En limitant notre étude sur la méthode FP LAPW basée sur la DFT .Notant que les résultats obtenus seront fournir dans le chapitre qui joint.

## Référence

- [1] Fiolhais C, Nogueira F and Marques M, A Primer in Density Functional Theory, Springer -Verlag Berlin Heidelberg, Germany (2003), <https://www.springer.com/gp/book/9783540030836>
- [2] Honenberg P and Kohn W, Inhomogeneous Electron Gas, Phys Rev 86(3B) (1964) B864-B871, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.136.B864>
- [3] Schrödinger E, AN UNDULATORY THEORY OF THE MECHANICS OF ATOMS AND MOLECULES, phys Rev 28(6)(1926)1049-1070, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.28.1049>
- [4] Dirac PAM, Quantum Mechanics of Many-Electron Systems, Proc Roy Soc (Londres), 123(792)(1929)714-733, <https://doi.org/10.1098/rspa.1929.0094>.
- [5] Schrödinger E, Quantisierung als Eigenwertproblem, Ann phys 79 (1926) 489-527, <https://doi.org/10.1002/andp.19263840602>
- [6] Dirac PAM, Note on Exchange Phenomena in the Thomas Atom, Proc Camb Phil Soc 26(03)(1930) 376-1, <https://doi.org/10.1017/S0305004100016108>
- [7] Born M, Oppenheimer JR, Zur Quantentheorie der Molekeln, Ann Der Phys 389(20)(1927)457-484, <https://doi.org/10.1002/andp.19273892002>
- [8] Bühner W, Bill H, Lattice dynamics of Na<sub>2</sub>S, J Phys C Solid State Phys 13(30)(1980)5495-5504, <https://doi.org/10.1088/0022-3719/13/30/014>
- [9] Mjwara PM, Comins JD, Ngoepe PE, Bühner W, Bill H, Brillouin scattering investigation of the high temperature diffuse phase transition in Li<sub>2</sub>S, J Phys Condens Matter 3(23)(1991)4289-4292, <https://doi.org/10.1088/0953-8984/3/23/017>
- [10] Born M and Oppenheimer JR, On the Quantum Theory of Molecules, Ann. Phys 84, 457(1927), <http://elib.bsu.by/handle/123456789/154381>
- [11] Kikuchi H, Iyetomi H, Hasegawa A, Insight into the origin of superionic conductivity from electronic structure theory, J Phys Condens Matter 10(49)(1989)11439-11448, <https://doi.org/10.1088/0953-8984/10/49/030>
- [12] Azavant P, Lichanot A, Rérat M, Ab initio Hartree-Fock Study of Lithium and Sodium Sulfides: Electronic and Scattering Properties, Acta Crystallogr B 50(3)(1994)279-290, <https://doi.org/10.1107/S0108768193013849>
- [13] Hartree DR, Some Relations between the Optical Spectra of Different Atoms of the Same Electronic Structure. II. Aluminium-like and Copper-like Atoms, Proc Cambridge Philos Soc, 23(03)(1928)304-328, <https://doi.org/10.1017/S030500410000921X>



- [14] Single D, Krakauer H, and Wang CS, Electron-phonon coupling in UBe13. Absence of conventional superconductivity, *Phys Rev B* 34(9)(1986)6546-6549, <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.34.6546>
- [15] Eithiraj RD, Jaiganesh G, Kalpana G, Rajagopalan M, First-principles study of electronic structure and ground-state properties of alkali-metal sulfides – Li<sub>2</sub>S, Na<sub>2</sub>S, K<sub>2</sub>S and Rb<sub>2</sub>S, *Phys Status Solidi B* 244(4)(2007)1337-1346, <https://doi.org/10.1002/pssb.200642506>
- [16] Bührer W, Altorfer F, Mesot J, Bill H, Carron P, Smith HJ, Lattice dynamics and the diffuse phase transition of lithium sulphide investigated by coherent neutron scattering, *J Phys Condens Matter* 3(9)(1991)1055-1064, <https://doi.org/10.1088/0953-8984/3/9/002>
- [17] Bührer W, Bill H, Phonon dispersion in Na<sub>2</sub>S Kristall, *Helv Phys Acta* 50(1977)431-1, <https://archive-ouverte.unige.ch/unige:3141>
- [18] Lichanot A, Aprà E, Dovesi R, Quantum Mechanical Hartree-Fock Study of the Elastic Properties of Li<sub>2</sub>S and Na<sub>2</sub>S, *Phys Status Solidi* 177(1)(1993)157-163, <https://doi.org/10.1002/pssb.2221770111>
- [19] Kalarasse F, Bennecer B, Elastic properties and lattice dynamics of alkali chalcogenide compounds Na<sub>2</sub>S, Na<sub>2</sub>Se and Na<sub>2</sub>Te, *Comput Mater Sci* 50(5)(2011)1806-1810, <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2011.01.019>
- [20] Fock VA, Näherungsmethode zur Lösung des quantenmechanischen Mehrkörperproblems, *Z Physik* 61(1-2)(1930)126-148, <https://doi.org/10.1007/BF01340294>
- [21] Hull S, Farley TWD, Hayes W, Hutchings MT, THE ELASTIC PROPERTIES OF LITHIUM OXIDE AND THEIR VARIATION WITH TEMPERATURE, *J Nucl Mater* 160(2-3)(1988)125-134, [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(88\)90039-6](https://doi.org/10.1016/0022-3115(88)90039-6)
- [22] Pauli W, Über die Gesetzmäßigkeiten des anomalen Zeeman effektes, *Z Physik* 16(1)(1923)155-164, <https://doi.org/10.1007/BF01327386>
- [23] Lévy M, Electron densities in search of Hamiltonians, *Phys Rev A* 26(3)(1982)1200-1208, <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.26.1200>
- [24] Slater JC, A Simplification of the Hartree-Fock Method, *Phys Rev* 81(3)(1951)385-390, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.81.385>
- [25] Vosko SH, Wilk L and Nussair M, Accurate spin-dependent electron liquid correlation energies for local spin density calculations: a critical analysis 1, *Can J Phys*

- 58(8)(1980)1200-1211,<https://doi.org/10.1139/p80-159>
- [26] Moller C and Plesset MC, Note on an Approximation Treatment for Many-Electron Systems, *Phys Rev* 46(7)(1934)618-622, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.46.618>
- [27] Pople JA, Binkley JS and Seeger R, Theoretical Models Incorporating Electron Correlation, *Int J Quant Chem Symp* 10(S10)(1976)1-19, <https://doi.org/10.1002/qua.560100802>
- [28] Koch W, Holthausen MC, *A Chemist's Guide to Density Functional Theory*, Wiley-VCH Weinheim ISBN 3-527-29918-1(2000), <https://www.wiley.com/en-gb/A+Chemist%27s+Guide+to+Density+Functional+Theory%2C+2nd+Edition-p-9783527303724>
- [29] Rocquefelete X, à l'institut des matériaux Jean Rouxel NANTES, Modélisation du comportement électrochimique de matériaux pour batteries lithium à partir de calculs de premiers principes, (2001), <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00003977>
- [30] Hohenberg P, Kohn W, Inhomogeneous Electron Gas, *Phys Rev* 136(3B)(1964)B864-B871, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.136.B864>
- [31] Kohn W and Sham LJ, Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects, *Phys Rev* 140(4A)(1965)A1133-A1138, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.140.A1133>
- [32] Dreizler RM, Gross E K U, *Density Functional Theory : An Approach to the Quantum Many-Body Problem*, Springer-Verlag Berlin (1990).
- [33] Ceperley DM and Alder BJ, Ground State of the Electron Gas by a Stochastic Method, *Phys Rev Lett* 45(7)(1980)566-569, <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.45.566>
- [34] Perdew JP and Wang Y, Accurate and simple analytic representation of the electron-gas correlation energy, *Phys Rev B* 45(23)(1993)13244-13249, <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.45.13244>
- [35] Perdew JP, Ziesche P, Echerig H, In *electronic structure of solids*, Academic Verlag Berlin 11(1991)
- [36] Perdew JP, Chevary JA, Vosko SH, Jackson KA, Perderson MR, Singh DJ, Fiolhais C, *Atoms, molecules, solids, and surfaces: Applications of the generalized gradient approximation for exchange and correlation*, *Phys Rev B* 46(11)(1992)6671-6687, <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.46.6671>

- [37] Capelle K, A bird's-eye view of density-functional theory , Braz J Phys 36(4a)(2006)1318-1343,<https://doi.org/10.1590/S0103-97332006000700035>
- [38] BrustDandLiuL,FormFactorsandUltravioletSpectraofSemiconductorsatHighPressure,P hysRev154(3)(1967)647-653,<https://doi.org/10.1103/PhysRev.154.647>
- [39] Loucks TL, The Augmented-Plane-Wave Method (Benjamin, NewYork),(1967),<https://www.worldcat.org/title/augmented-plane-wave-method-a-guide-to-performing-electronic-structure-calculations/oclc/644499859>
- [40] Slater JC, The Self-Consistent Field for S. Molecules and Solids ,McGraw-HillNewYork(1974),<https://ci.nii.ac.jp/naid/10012480664/>
- [41] Anderson OK, Linear methods in band theory, PhysRev B12(8)(1975)3060-3083,<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.12.3060-8>.
- [42] WienertM, SolutionofPoisson'sequation:BeyondEwaldtypemethods,JMathPhys22(11)(1981)2433-2439,<https://doi.org/10.1063/1.524800>
- [43] Blaha P, Schwarz K, Madsen GKH,Kvasnicka D, and Luitz J, An Augmented PlaneWave Plus Local Orbitals Program for Calculating Crystal Properties, Vienna University ofTechnologyAustria(2001),[http://www.wien2k.at/reg\\_user/textbooks/usersguide.pdf](http://www.wien2k.at/reg_user/textbooks/usersguide.pdf)
- [44] HonenbergP andKohnW,InhOmOgeIleouSEleCtrOnGas,PhysRev136(3B)(1964) B864-B871,<https://doi.org/10.1103/PhysRev.136.B864>
- [45] AndersenOK,Linearmethodsinbandtheory,physRevB12(8)(1975)3060-3083,<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.12.3060>
- [46] SlaterJC,StatisticalExchange-CorrelationintheSelf-ConsistentField,AdvQuantumChem(1964)1-92,[https://doi.org/10.1016/S0065-3276\(08\)60541-9](https://doi.org/10.1016/S0065-3276(08)60541-9)
- [47] SlaterJC,QuantumTheoryofMoleculesandSolids,Vol2Chap8(1965),<https://www.amazon.com/Quantum-Theory-Molecules-Solids-Symmetry/dp/0070580367>
- [48] SinghD,Ground-statepropertiesoflanthanum:Treatmentofextended-corestates,PhysRevB43(1991)6388-6392,<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.43.6388>
- [49] Sjöstedt E, Nordström L etSingh, An alternative way of linearizing the augmentedplane-wave method,Solid State Commun 114(1)(2000)15-20,[https://doi.org/10.1016/S0038-1098\(99\)00577-3](https://doi.org/10.1016/S0038-1098(99)00577-3)

# Chapitre III

### III.1 Introduction

Les alliages Heusler ont suscité l'intérêt scientifique des chercheurs pour être de futurs candidats à des applications révolutionnaires [1-3]. Cette classe de matériaux remarquables comprend désormais une vaste collection de plus de 1000 composés, appelés composés ou alliages Heusler. On distingue le composé Heusler quaternaire de composition  $XX'YZ$  [4-5], le composé Heusler plein de composition  $X_2YZ$  [6-7], et le composé demi-Heusler de composition  $XYZ$  [8-9]. Les Composés Intermétalliques Full-Heusler sont des composés ferromagnétiques ternaires de formule générale  $X_2YZ$ , découverts pour la première fois il y a un siècle par l'ingénieur Allemand Friedrich Heusler en 1903, en étudiant l'alliage  $Cu_2MnSb$ , il constate qu'il se comporte comme un matériau ferromagnétique, bien que son constituant les pièces ne sont pas des matériaux magnétiques en eux-mêmes [10]. La grande classe de composés magnétiques ( $X_2YZ$ ) montre tous les types de comportement magnétique et propriétés magnétiques multifonctionnelles, telles que les caractéristiques magnétiques effets magnéto-calorique [11], polarisation de spin élevée et faible amortissement magnétique [12], comportement semi-métallique [13] et anisotropie magnétique et magnétorésistance tunnel [14]. Les alliages Full-Heusler sont des composés intermétalliques ternaires de composition stoechiométrique ( $X_2YZ$ ), où (X) et (Y) sont des éléments de métaux de transition et (Z) est un groupe (III, IV ou V Élément). Ces composés cristallisent dans un réseau cubique à faces centrées (fcc). Ils sont reconnus dans deux groupes : les composés full-Heusler réguliers et inverses. Les composés réguliers de type Heusler complet ( $Cu_2MnAl$ , prototype  $L2_1$ ) appartiennent à la symétrie  $Fm\bar{3}m$  (groupe spatial n° 225) si l'atome X est plus électronégatif que Y, et les composés inverses de type complet Heusler ( $Hg_2CuTi$ , prototype  $XA$ ) appartiennent à  $F43m$  (groupe spatial n° 216) lorsque l'élément Y est plus électronégatif que dans  $Cu_2MnAl$  ( $L2_1$ ) ou dans les structures de type  $Hg_2CuTi$ . Dans la structure de type  $Cu_2MnAl$ , les atomes X occupent les sites des positions Wyckoff 4a (0, 0, 0), 4b (0,5, 0,5, 0,5), l'atome Y occupe le site 4c (0,25, 0,25, 0,25) et l'atome Z occupe 4d (0,75, 0,75, 0,75). Dans la structure de type  $Hg_2CuTi$ , les atomes X sont placés dans les positions Wyckoff 4a (0, 0, 0) et 4c (0,25, 0,25, 0,25), tandis que Y et Z en 4b (0,5, 0,5, 0,5) et 4d (0,75, 0,75, 0,75) positions, respectivement [15-20]. Le Heusler complet à base de Mn, avec une composition

chimique  $Mn_2YZ$  a été largement étudié où l'élément Y prend une configuration électronique différente.

Yao al ont étudié les composés  $Mn_2LiAs$  et  $Mn_2LiSb$  dont ils ont établi leur comportement ferrimagnétique semi-métallique [21]. L'étude théorique réalisée par Patel et al sur le full-Heusler  $Mn_2MgGe$ , a montré que ce composé est stable dans deux types de structures cubiques  $Cu_2MnAl$  et  $Hg_2CuTi$ . Avec la structure régulière, il a un comportement métallique et avec la structure inverse, il a un comportement ferrimagnétique semi-métallique [22]. L'étude ab initio consacrée au composé  $Mn_2CoGa$  a montré que ce composé est stable dans la structure inverse de type XA, qu'il a un comportement ferrimagnétique métallique avec un moment magnétique égal à  $2 \mu_B$  [23]. Une série de full-Heusler  $Mn_2RhZ$  ( $Z = Al, Si$  et  $Ge$ ) a été investie par Guermi et al, les résultats obtenus ont montré que les full-Heusler de cette série sont des demi-métaux ferrimagnétiques avec de bonnes caractéristiques thermoélectriques leur permettant d'être un bon candidat aux applications en spintronique [24]. Maizia et al ont choisi d'étudier par la méthode FP-LAPW, différentes propriétés du composé Heusler  $Mn_2OsGe$  complet, leur résultat prédictif a révélé le comportement ferrimagnétique semi-métallique de ce composé [25]. Plusieurs recherches théoriques ont été menées sur Heusler complet à base d'Ir, Prakash et al réalisées par la méthode FP-LAPW sur la série Heusler complète  $Ir_2YSi$  ( $Y = Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co,$  et  $Ni$ ) une étude qui a confirmé la stabilité de ces composés dans la structure cubique L21 ainsi que leur comportement ferromagnétique semi-métallique [26]. applications dans le domaine du comportement de la spintronique [27]. Forzani et al ont travaillé sur trois full-Heusler  $Ir_2ScSi$ ,  $Ir_2ScGe$  et  $Ir_2ScSn$ . Les résultats obtenus par le calcul numérique ont montré que le composé  $Ir_2ScSi$  a un comportement semi-métallique avec une polarisation de 100 % au paramètre d'équilibre alors que les deux composés  $Ir_2ScGe$  et  $Ir_2ScSn$  ont ce comportement sous contrainte [28].

Dans cet thèse, nous avons choisi d'étudier à nouveau Heusler  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$ , l'élément Y pour les deux composés est un élément de terre rare. Notre travail est basé sur des calculs effectués en utilisant la méthode des ondes planes augmentées linéarisées à plein potentiel (FP-LAPW) [29] dans le cadre de la théorie du formalisme de la densité fonctionnelle (DFT) [30-38]. L'approximation du gradient généralisé de Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE-GGA) [39] est utilisée pour la fonction de potentiel de corrélation d'échange implémentée dans le code Wien2k [40].

Approximation GGA + U [41-42]. a été utilisé pour traiter les états fortement corrélés. Nous nous intéressons particulièrement à l'effet du potentiel Hubbard sur les propriétés électroniques et magnétiques pour développer de nouveaux matériaux, qui trouveront leurs applications dans le domaine spintronique.

Le reste de cet article est présenté comme suit. La section 2 donne une brève description des méthodes de calcul. Dans la section 3, nous présentons nos résultats et une discussion sur les propriétés structurales, élastiques, magnétiques et électroniques. Enfin, les principales conclusions sont résumées dans la section 4.

### III.2 Détails de calcul

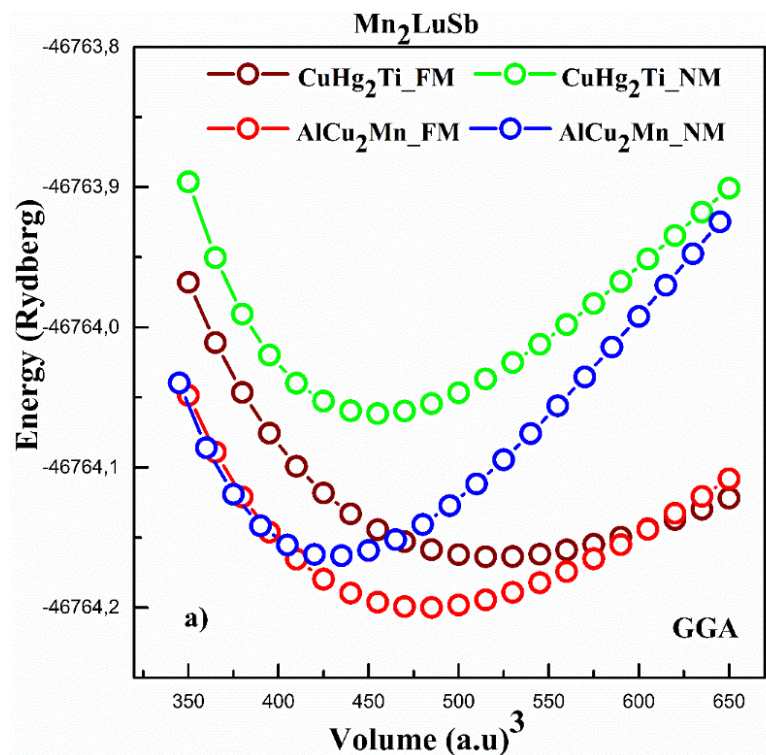
Les calculs structurels, élastiques, électroniques, magnétiques et thermodynamiques de  $X_2LuSb$  (X= Mn et Ir), ont été effectués en utilisant le plein potentiel Linear Augmented Plane Wave (FP-LAPW) [29] code Wien2k code [40], dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). [30-38]. Dans cette méthode, nous avons utilisé un paramètre Rmt.  $K_{max} = 8$ , qui détermine la taille de la matrice (convergence), où  $K_{max}$  est la coupure d'onde plane et le rayon muffin-tin (RMT) a été choisi pour assurer des sphères presque touchantes et minimiser l'espace interstitiel. Les paramètres Gmax et lmax (vecteur moment angulaire) sont respectivement pris comme 14 et 10. Nous avons utilisé un maillage k d'ordre  $14 \times 14 \times 14$  à l'intérieur de la première zone irréductible de Brillouin et pour assurer une excellente convergence de l'énergie totale ; nous avons considéré la tolérance de convergence de 10<sup>-4</sup> Ry. Nous avons choisi les rayons muffin-tin (MT) pour Mn, Ir, Lu et Sb à 2,0, 2,5, 2,45 et 2,3 (a.u), respectivement. Les configurations de valence de :  $Mn \equiv [Ar] 3d^5 4s^2$ ,  $Ir \equiv [Xe] 4f^{14} 5d^7 6s^2$ ,  $Lu \equiv [Xe] 4f^{14} 5d^1 6s^2$  et  $Sb \equiv [Kr] 4d^{10} 5s^2 5p^3$  éléments respectivement, ont été employés. L'orbitale 3d pour le manganèse et l'orbitale 5d pour les atomes d'iridium ont été examinées en utilisant l'approximation GGA + U [33], où cette approche permet de traiter des systèmes fortement corrélés.

[34-37]. En utilisant le modèle de Hubbard qui prend en compte les interactions de Coulomb sur site (U), les échanges de règles de Hund (J), un seul terme nommé potentiel effectif  $U_{eff} = U - J$  est ajouté comme correction à l'approximation GGA [41-42]. Pour le calcul des propriétés magnétiques et de la polarisation des composés

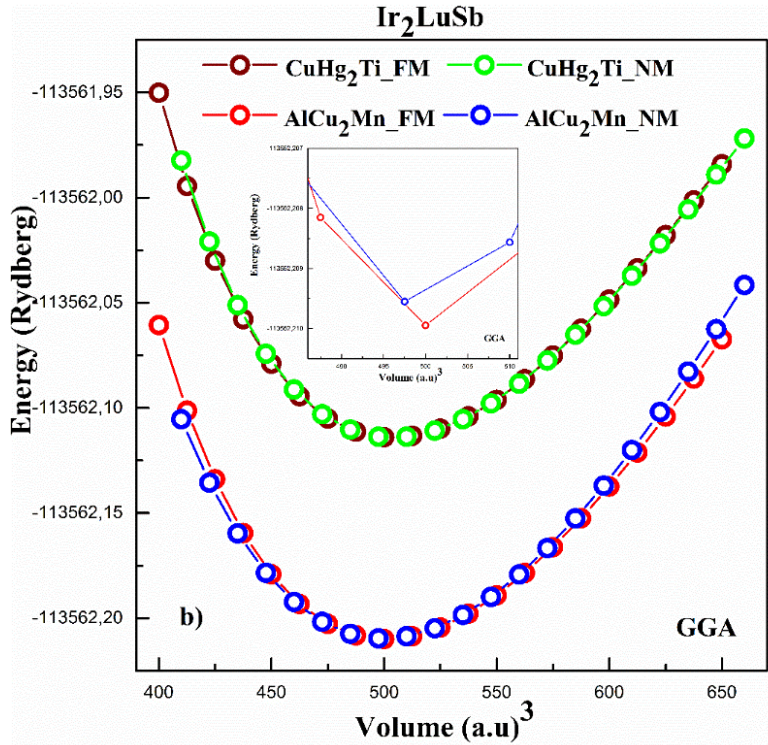
Mn<sub>2</sub>LuSb et Ir<sub>2</sub>LuSb, toutes les valeurs entières appartenant à l'intervalle [0 - 7] eV ont été utilisées pour U<sub>eff</sub>. Pour le calcul des propriétés électroniques, nous avons utilisé U<sub>Mn</sub> = 0,313 eV pour le composé Mn<sub>2</sub>LuSb et U<sub>Ir</sub> = 0,9 eV pour le composé Ir<sub>2</sub>LuSb. Ce choix de valeurs de U<sub>eff</sub> pour l'étude des propriétés électroniques était basé sur l'obtention d'une valeur entière pour le moment magnétique total pour chaque composé.

### III.3. Propriétés structurales

Nous avons calculé l'énergie totale en fonction de la constante de réseau des composés Mn<sub>2</sub>LuSb et Ir<sub>2</sub>LuSb, pour les états ferromagnétique (FM) et non magnétique (NM). Nous avons utilisé les deux structures cubiques : dans la structure cubique régulière avec AlCu<sub>2</sub>Mn dans L2<sub>1</sub> comme prototype et dans l'alliage cubique inverse full-Heusler en structure XA avec CuHg<sub>2</sub>Ti comme prototype. Les énergies totales en fonction des volumes modifiés ont été ajustées à l'équation d'état de Murnaghan [43]. Les tracés des énergies totales calculées en fonction du volume réduit de cet alliage sont illustrés à la figure 1.







**Figure III.1:** Optimisation du volume de Full Heusler (a)  $Mn_2LuSb$ , (b)  $Ir_2LuSb$  dans une structure cubique de type  $L2_1$  et une structure cubique de type XA avec approximation GGA.

Nous pouvons voir à partir de ces représentations que nos deux composés sont stables dans la structure cubique régulière  $AlCu_2Mn$ , états ferromagnétiques. Les résultats obtenus à partir des calculs des propriétés structurelles concernant les paramètres de réseau d'équilibre  $a_0$ , le module de compression  $B_0$  et ses dérivées de pression  $B_0'$  et les énergies totales ( $E_{tot}$ ) par paramètres de formule des composés  $X_2LuSb$  ( $X = Mn, Ir$ ) sont rapportés dans le tableau . 1. Dans la structure la plus stable, une valeur de 6,582 pour le composé  $Mn_2LuSb$  et une valeur de 6,670 pour le composé  $Ir_2LuSb$  sont notées pour le paramètre de maille. Les valeurs du module de masse sont de 79,75 GPa et 147,86 GPa ainsi que celles de leurs dérivés sont respectivement de 3,79 et 4,04 pour  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$ . L'énergie minimale enregistrée pour le composé  $Mn_2LuSb$  est de -46764.199873 Ryd et celle notée pour le composé  $Ir_2LuSb$  est de -113562.209948 Ryd. Nos résultats ont été comparés aux résultats théoriques et ils sont en bon accord. Le calcul de l'énergie de formation à l'aide de la théorie de la densité fonctionnelle peut aider à prédire si cet alliage est chimiquement stable ou non. L'énergie de formation ( $E_f$ ) montre la stabilité du composé et est définie par l'équation suivante [44-45]

$$E_f = E_{X_2LuSb}^{total} - [2 E_X^{bulk} + E_{Lu}^{bulk} + E_{Sb}^{bulk}] \quad (1)$$

Où  $E_{X_2LuSb}^{total}$  est l'énergie totale d'équilibre calculée du composé Full-Heusler  $Mn_2OsGe$  par unité de formule et  $E_X^{bulk}$ ,  $E_{Lu}^{bulk}$  et  $E_{Sb}^{bulk}$  correspondent à l'énergie totale par atome pour les atomes X (= Mn, Ir), Lu et Sb, respectivement. Les énergies de formation calculées sont présentées dans le tableau 1. Les valeurs négatives des énergies de formation indiquent que les composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  sont énergétiquement et chimiquement stables. Il a été constaté que pour chaque composé, la valeur de l'énergie de formation calculée dans la structure cubique de type  $AlCu_2Mn$ , état ferromagnétique, est la plus négative, montrant ainsi que ces composés sont les plus stables dans ces conditions.

**Table III.1:** La constante de réseau d'équilibre calculée ( $a_0$ ) en Å, le module de compressibilité (B) en GPa et ses dérivées (B'); Les énergies totales (E<sub>tot</sub>) en (Ryd) et les énergies de formation  $E_f$  en (Ryd) pour les Full-Heusler  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  dans une structure cubique de type  $CuHg_2Ti$  et une structure cubique de type  $AlCu_2Mn$  avec approximation GGA et avec les états FM et NM en comparaison avec d'autres résultats théoriques

Full Heusler	Type structure	State	a (Å)	B (GPa)	B'	E (Ryd)	$E_{fom}$ (Ryd)
$Mn_2LuSb$	$CuHg_2Ti$	FM	6.758	55.10	3.80	-46764.163743	-0.790
	$CuHg_2Ti$	NM	6.460	117.65	5.06	-46764.061527	-
	$AlCu_2Mn$	FM	6.582	79.75	3.79	-46764.199873	-0.826
	$AlCu_2Mn$	NM	6.341	141.48	4.64	-46764.163195	-
$Mn_2IrGe$	$Hg_2CuTi$	FM	5.931 <sup>(a)</sup>	220.134 <sup>(a)</sup>	4.41 5 <sup>(a)</sup>	- 44,549.128144 <sup>(a)</sup> )	- 0.954 <sup>(a)</sup>
	$AlCu_2Mn$	FM	6.111 <sup>(a)</sup>	118.557 <sup>(a)</sup>	3.13 3 <sup>(a)</sup>	- 44,549.062791 <sup>(a)</sup> )	- 0.887 <sup>(a)</sup>
$Mn_2OsGe$	$Hg_2CuTi$	FM	5.908 <sup>(b)</sup>	221.906 <sup>(b)</sup>	4.81 (b)	-43396:773554 (b)	- 1:063 <sup>(b)</sup>
	$AlCu_2Mn$	FM	5.855 <sup>(b)</sup>	253.671 <sup>(b)</sup>	4.75 (b)	-43396:693341 (b)	- 0:983 <sup>(b)</sup>
$Ir_2LuSb$	$CuHg_2Ti$	FM	6.683	145.90	4.71	-113562.114026	-0.466
	$CuHg_2Ti$	NM	6.684	147.74	4.68	-113562.114018	-
	$AlCu_2Mn$	FM	6.670	147.86	4.04	-113562.209948	-0.562
	$AlCu_2Mn$	NM	6.666	144.63	3.29	-113562.209592	-
$Ir_2ScGe$	$AlCu_2Mn$	FM	6.2478 <sup>(c)</sup>	157.2 <sup>(c)</sup>	-	-	-

(a) Ref [20]. (b) Ref [25]. (c) Ref [28].

### III.4 Propriétés élastiques et mécaniques

Sachant que la structure de nos composés est cubique, trois constantes élastiques  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$  sont nécessaires pour donner une description complète des propriétés élastiques [46-47]. De différentes relations regroupant ces constantes élastiques, différentes caractéristiques du matériau peuvent être déduites. Les propriétés élastiques sont calculées en utilisant la méthode IRelast [48] telle qu'implémentée dans le code Wien2k. Nous citons certaines formules décrivant ces propriétés : Les conditions traditionnelles de stabilité mécanique de Born des constantes élastiques des cristaux cubiques [49-51]

$$C_{11}-C_{12}> 0, C_{11}+2C_{12}> 0, C_{11}> 0 \text{ and } C_{44}> 0. \quad (2)$$

Le module de compressibilité [52]:

$$B = \frac{C_{11}+2C_{12}}{3} \quad (3)$$

Le facteur d'anisotropie Zener A [53-54]:

$$A = \frac{2C_{44}}{C_{11}-C_{12}} \quad (4)$$

Le module de cisaillement  $G_V$  et le module de cisaillement de Reuss  $G_R$  obtenus par [55-58]:

$$G_V = \frac{C_{11}-C_{12}+3C_{44}}{5} \quad (5)$$

$$G_R = \frac{5(C_{11}-C_{12})C_{44}}{4C_{44}+3(C_{11}-C_{12})} \quad (6)$$

Le module de cisaillement  $G$  représente la résistance à la déformation plastique [55-58]:

$$G = \frac{G_R + G_V}{2} \quad (7)$$

Le coefficient de Poisson  $\nu$  est exprimé par [59] :

$$\sigma = \frac{3B-2G}{2(3B+G)} \quad (8)$$

Le module d'Young  $E$  est donné [60-61] par :

$$E = \frac{9BG}{3B+G} \quad (9)$$

Tous les résultats obtenus par nos calculs sont présents dans le tableau 2.

D'après les résultats obtenus à partir du calcul des constantes élastiques des deux composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  dans la structure cubique  $AlCu_2Mn$  la plus stable, états FM obtenus précédemment par le calcul des propriétés structurales, nous avons

enregistré les valeurs suivantes : (i) L'élasticité constante  $C_{11}$  vaut 120,20 GPa et 220,41 GPa pour  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  respectivement (ii) La constante élastique  $C_{12}$  est estimée à 63,06 GPa et 113,68 GPa pour  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  respectivement (iii) La constante élastique  $C_{44}$  est égale à 60,57 GPa et 111,32 GPa pour  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  respectivement. Les résultats obtenus sont conformes aux critères de stabilité. Nos composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  sont mécaniquement stables dans la structure cubique  $AlCu_2Mn$ , selon FM.

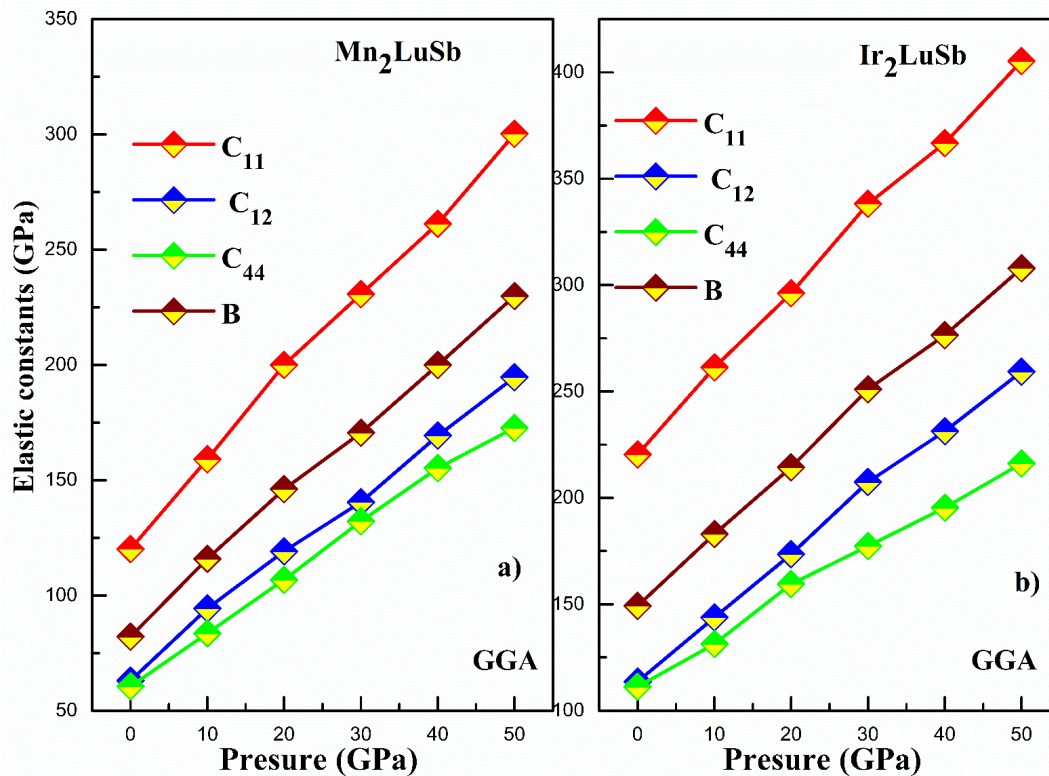
**Table III.2:** Constantes élastiques calculées  $C_{ij}$ , module de masse B(GPa), module d'Young E(GPa), module de cisaillement G(GPa), coefficient de Poisson  $\nu$ , rapport B/G et facteur d'anisotropie A pour Heusler  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  cubiques de type  $AlCu_2Mn$  structure avec approximation GGA

	$C_{11}$	$C_{12}$	$C_{44}$	B	E	G	$\nu$	A	B/G
<b><math>Mn_2LuSb</math></b>	120.20	63.06	60.57	82.11	108.41	44.80	0.27	2.12	1.83
<b><math>Ir_2LuSb</math></b>	220.41	113.68	111.32	149.26	209.79	82.87	0.34	2.09	1.80

Pour le module de compressibilité, les valeurs suivantes ont été notées : 82,11 GPa pour  $Mn_2LuSb$  et 149,26 GPa pour  $Ir_2LuSb$ .

Le composé  $Ir_2LuSb$  a la valeur de module de compressibilité le plus élevée. Nos résultats sont trop proches des résultats trouvés dans le calcul des propriétés structurales. Le rapport de Pugh B/G décrit la nature fragile ou ductile d'un matériau. En effet la valeur 1,75 délimite le domaine de validité de chaque nature. Si le rapport B/G est inférieur à 1,75, le composé a un comportement fragile et si le rapport B/G est supérieur à cette valeur critique, le composé a un comportement ductile. Dans notre travail, nous avons enregistré les valeurs suivantes pour le ratio B/G du rapport de Pugh : 1,83 pour  $Mn_2LuSb$  et 1,80 pour  $Ir_2LuSb$ . Ces résultats montrent le caractère ductile des composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$ . Le facteur d'anisotropie A montre la dépendance des mesures de direction pour un composé. Si  $A = 1$  le composé est isotrope et s'il est différent de 1 alors il est anisotrope [62]. Les résultats qui ont été trouvés par nos calculs sont : 2,12 pour  $Mn_2LuSb$  et 2,09 pour  $Ir_2LuSb$ . Les deux composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  ont un A différent de l'unité, ils sont appelés composés anisotropes. Le coefficient de Poisson caractérisant les forces de liaison entre les atomes constitutifs et le coefficient de Poisson décrivent le rapport de la déformation transversale à la déformation longitudinale. En effet si le coefficient de Poisson appartient à l'intervalle entre 0 et 0,5 les forces sont considérées comme

centrales [63]. Les valeurs du coefficient de Poisson relevées à partir de nos calculs sont de 0,26 pour le composé  $Mn_2LuSb$  et de 0,34 pour le composé  $Ir_2LuSb$ . Ces résultats montrent la bonne plasticité des deux composés. Le module de Young (E) décrit la réponse des matériaux à la déformation linéaire et une grande valeur de E implique la rigidité du matériau. Une valeur E plus élevée pour un matériau indique qu'il est plus rigide. Les valeurs obtenues pour le module d'Young (E) sont : 108,41 GPa pour  $Mn_2LuSb$  et 209,79 GPa pour  $Ir_2LuSb$ . Nous avons conclu que le composé  $Ir_2LuSb$  est le plus rigide. Sur la Fig2a et la Fig 2b, nous avons montré la variation des constantes élastiques  $C_{11}$ ,  $C_{12}$ ,  $C_{44}$  et du module de compression B respectivement pour les composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  dans la plage de pression [0 -50] GPa.

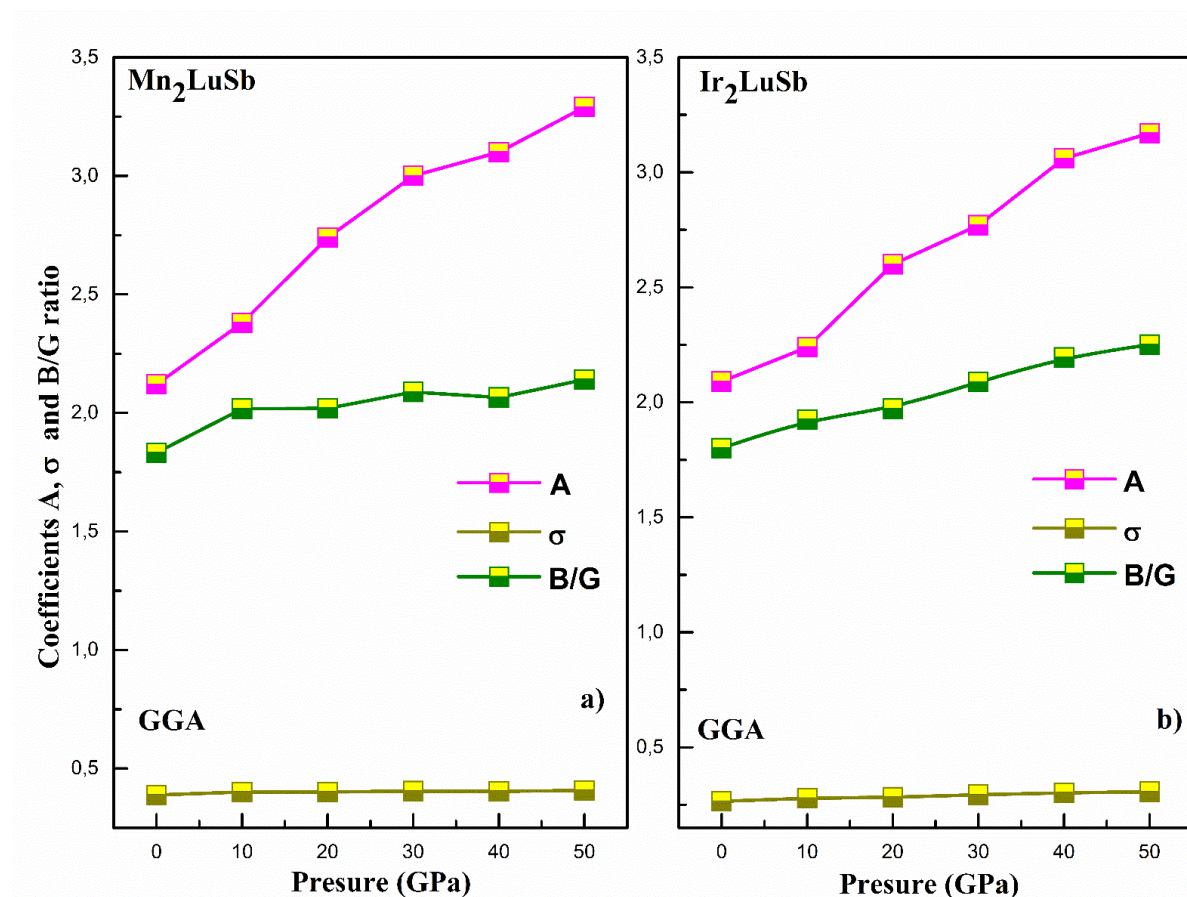


**Figure III.2:** Dépendance de la pression des constantes élastiques ( $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$ ) et du module de compression B pour (a) les composés  $Mn_2LuSb$  et (b)  $Ir_2LuSb$  dans (GPa) en utilisant l'approximation GGA.

A partir de ces illustrations, il peut être confirmé que le plein Heusler  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  dans cet intervalle de pression répondent aux critères de stabilité. Sur les Fig.3a et Fig.3b, la variation du coefficient de Poisson, du coefficient d'anisotropie et du rapport B/G a été montrée. D'après les résultats obtenus, il peut être confirmé que



nos deux composés conservent leur comportement ductile et anisotrope sur cet intervalle de pression [0 -50] GPa. L'étude des propriétés mécaniques a révélé que les full-Heusler  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  étaient énergétiquement et stable sur l'intervalle [0 - 50] GPa.



**Figure III.3:** Coefficients A,  $\sigma$  et B/G pour (a) les composés  $Mn_2LuSb$  et (b)  $Ir_2LuSb$  en utilisant l'approximation GGA.

### III.5 Propriétés de polarisation magnétique et de spin

À l'aide de l'approximation GGA, les propriétés magnétiques de  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  ont été déterminées. Les résultats obtenus des moments magnétiques totaux et partiels et du moment interstitiel dans la région sphérique pour les composés Heusler

complets  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  à des paramètres de réseau d'équilibre avec l'approximation GGA et les approximations GGA+U sont présentés dans le tableau 3. Avec l'approximation GGA, nos calculs montrent que le moment magnétique des composés Heusler complets  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$ . Nous avons noté différentes valeurs de moments magnétiques de spin partiel et de moment interstitiel sur le tableau 3. Nous avons trouvé pour  $Mn_2LuSb$  la valeur de 2,9122  $\mu_B$  pour Mn, -0,1914  $\mu_B$  pour Lu, -0,0182  $\mu_B$  pour Sb et 0,2465  $\mu_B$  dans la région interstitielle, le total le moment magnétique est estimé à 5,8612  $\mu_B$ . Pour  $Ir_2LuSb$  la valeur de 0,25591  $\mu_B$  pour Ir, -0,00656  $\mu_B$  pour Lu, 0,01361  $\mu_B$  pour Sb et 0,01361  $\mu_B$  dans la région interstitielle le moment magnétique total est égal à 0,52561  $\mu_B$ . Nos deux composés ont un comportement métallique ferromagnétique.

**Table III.3:** Total and local magnetic moments (in Bohr magneton  $\mu_B$  units) with *XA type structure*, FM states for full Heusler  $Mn_2LuSb$  and  $Ir_2LuSb$  in cubic  $AlCu_2Mn$ -type structure with GGA approximation and GGA+U approximations

	$Mn_2LuSb$								
	GGA	GGA+U							
		0.313	1	2	3	4	5	6	7
$\mu_{tot}$	5,861	6,003	6,273	6,585	6,675	6,859	7,080	7,347	7,586
$\mu_{Mn}$	2,923	3,007	3,176	3,595	3,5158	3,660	3,800	3,924	4,019
$\mu_{Lu}$	-0,197	-0,204	-0,223	-0,262	-0,301	-0,336	-0,360	-0,370	-0,363
$\mu_{Sb}$	-0,023	-0,022	-0,031	-0,064	-0,057	-0,063	-0,064	-0,060	-0,060
$\mu_{int}$	0,235	0,215	0,176	-0,279	0,002	-0,063	-0,096	-0,072	-0,029
	$Ir_2LuSb$								
	GGA	GGA+U							
		0.939	1	2	3	4	5	6	7
$\mu_{tot}$	0,526	1,001	1,021	1,492	1,756	1,829	1,869	1,896	1,915
$\mu_{Ir}$	0,256	0,483	0,496	0,752	0,879	0,950	1,011	1,071	1,127
$\mu_{Lu}$	-0,007	-0,014	-0,015	-0,030	-0,038	-0,055	-0,075	-0,096	-0,116
$\mu_{Sb}$	0,014	0,032	0,032	0,040	0,061	0,062	0,058	0,052	0,043
$\mu_{int}$	0,007	0,017	0,014	-0,022	-0,026	-0,078	-0,137	-0,202	-0,265

**Table III.4:** Spin polarization ratio for full Heusler  $Mn_2LuSb$  and  $Ir_2LuSb$  in cubic  $AlCu_2Mn$ -type structure with GGA approximation and GGA+U approximations

Material	Study		Spin polarization		
			$\rho_{\uparrow}(E_F)$	$\rho_{\downarrow}(E_F)$	P%
$Mn_2LuSb$	GGA		0,68011	3,20455	64,99%
	GGA+U	$U_{Mn} = 0.313$ eV	0,67625	2,77757	60,84%
$Ir_2LuSb$	GGA		1,27108	8,58649	74,21%
	GGA+U	$U_{Ir} = 0.939$ eV	0,90137	6,89473	76,876%

Le moment magnétique total du composé  $Mn_2LuSb$  est bien supérieur à celui du composé  $Ir_2LuSb$ . Le moment magnétique des deux composés se situe principalement autour des éléments de transition Mn et Ir

L'utilisation de l'approximation GGA + U, nous permettra de déterminer l'effet du traitement des liaisons fortement corrélées par le potentiel Hubbard des niveaux d sur les propriétés magnétiques. les valeurs suivantes ont été utilisées :  $UMn = UIr = 1 \text{ eV}$ ,  $2\text{eV}$ ,  $3 \text{ eV}$ ...,  $7 \text{ eV}$  pour faire face aux fortes corrélations dues aux atomes Mn et Ir.

Dans le tableau 3, les résultats obtenus pour les moments magnétiques totaux et partiels ont été répertoriés pour chaque matériau. selon ces constatations; on note la croissance des moments magnétiques totaux et partiels en fonction des valeurs croissantes de U. A partir de la Fig4a, représentant la variation du moment magnétique total pour le composé  $Mn_2LuSb$ , la croissance du moment magnétique total en fonction du potentiel U est linéaire. Le moment magnétique total passe de la valeur  $M_{tot} = 5.861 \mu B$  pour  $UMn = 0\text{eV}$  à la valeur  $M_{tot} = 7.586 \mu B$  pour  $UMn = 7\text{eV}$ . Pour la valeur  $U = 0,313 \text{ eV}$ , une valeur entière du moment magnétique total  $M$  à  $t = 6 \mu B$  est enregistrée. D'après le tableau 3, la même nature de variation est observée pour le moment magnétique partiel de l'atome Mn. La variation des moments magnétiques partiels de Lu, Sb et dans la région interstitielle est constante pour le composé  $Mn_2LuSb$ .

Pour le composé  $Ir_2LuSb$  comme le montre la figure 4b, la croissance du moment magnétique total en fonction du potentiel U se produit rapidement dans l'intervalle  $[0-3] \text{ eV}$ . Pour des valeurs de U supérieures à  $3 \text{ eV}$  la croissance de  $M_{tot}$  est plus lente et tend vers  $2 \mu B$ . Pour  $UIr = 0,9 \text{ eV}$ , nous avons enregistré une valeur entière pour le moment magnétique total  $M_{tot} = 1 \mu B$ . Une variation similaire du moment magnétique total est enregistrée à partir du tableau 3, pour l'atome d'Ir. Le moment magnétique total passe de la valeur  $M_{tot} = 0,526 \mu B$  pour  $UIr = 0\text{eV}$  à la valeur  $M_{tot} = 1,915 \mu B$  pour  $UIr = 7.\text{eV}$ . La variation des moments magnétiques partiels de Lu, Sb et dans la région interstitielle est constante pour le composé  $Ir_2LuSb$ . L'application du potentiel U augmente le moment magnétique total du composé et le moment magnétique partiel autour de l'élément de transition.



La polarisation de spin (P) au niveau de Fermi ( $E_F$ ) est liée à la DOS dépendante du spin via [64]

$$P = \frac{\rho^{\uparrow}(E_F) - \rho^{\downarrow}(E_F)}{\rho^{\uparrow}(E_F) + \rho^{\downarrow}(E_F)} \quad (10)$$

Où  $\rho^{\uparrow}(E_F)$  et  $\rho^{\downarrow}(E_F)$  sont les valeurs de DOS majoritaire et minoritaire au niveau de Fermi ( $E_F$ ). Nos valeurs calculées sont présentées dans le tableau 4. Au paramètre d'équilibre et avec  $U=0$  eV, nous avons noté  $P = 65,04\%$  pour  $Mn_2LuSb$  et  $P = 74,46\%$  pour  $Ir_2LuSb$ . Sur les figures 5a et 5b nous avons montré la variation de la polarisation de spin P en fonction du potentiel U pour les composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  respectivement.

A partir de la courbe Fig 5a représentant  $Mn_2LuSb$ , la polarisation décroît en fonction des valeurs croissantes du potentiel U, elle atteint son minimum pour  $U = 5$  eV ou  $P = 33,83\%$  pour ensuite augmenter avec les valeurs croissantes de U. On peut le voir à partir de Fig 5b, représentant  $Ir_2LuSb$ , il y a une croissance de P dans l'intervalle [0-3] eV. Pour des valeurs de U comprises entre 1 eV et 3 eV il y a une diminution de P. Au point  $U = 3$  eV on enregistre un minimum de P correspondant à la valeur 34,72%. Au-delà de  $U = 3$  eV, il y a une croissance rapide de P qui commence à se stabiliser et à devenir constante à partir de 5 eV. Pour les deux valeurs de U donnant un moment magnétique total entier pour les deux composés ; on note : (i) pour le composé  $Mn_2LuSb$   $P = 60,84\%$  (ii) pour le composé  $Ir_2LuSb$   $P = 76,88\%$ .

### III.5.1 Propriétés électroniques

Pour comprendre les propriétés électroniques des composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$ , nous avons calculé les structures de bandes polarisées en spin, la densité totale d'états (TDos) et la densité partielle d'états (PDos), au paramètre de réseau d'équilibre, en utilisant les approches GGA et GGA+U.

### III.5.2 Structure de bande

Nous avons exploré les calculs de structure de bande électronique afin d'expliquer la nature électronique des composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$ . La structure de bande de nos

composés le long de la direction de symétrie élevée de la première zone de Brillouin est présentée dans les Fig. 6 et Fig7.

Avec l'approximation GGA, la figure 6a et la figure 7c montrent que dans le canal de spin minoritaire et le canal de spin majoritaire, les états, il y a une intersection entre les niveaux de valence et de conduction avec le niveau de Fermi.

Nous avons conclu que les bandes de spin majoritaires et les bandes de spin minoritaires sont fortement métalliques. Cette caractéristique nous a permis de conclure que les composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  sont des FM métalliques.

Avec l'approximation GGA+U, les présentations de la structure de bande pour les deux composés sont montrées sur la Fig 6b et la Fig 7d avec les deux valeurs particulières de  $U$  :  $U_{Mn} = 0,313$  eV pour le composé  $Mn_2LuSb$  et  $U_{Ir} = 0,9$  eV pour le composé  $Ir_2LuSb$ . Pour ces valeurs d' $U_{Mn}$  et  $U_{Ir}$ , les bandes de valence et de conduction coupent le niveau de Fermi, ce qui préserve la nature métallique FM des composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$

### III.5.3 Densité d'états

Nous avons calculé la densité totale d'états (TDOS) et la densité partielle d'états (PDOS) en utilisant GGA et GGA+U avec  $U_{Mn} = 0,313$  eV pour  $Mn_2LuSb$  et  $U_{Ir} = 0,9$  eV pour  $Ir_2LuSb$ . Les densités d'états totales et partielles (DOS) pour les composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  sont montrées dans les Fig 8 et Fig 9. Les parties supérieures des courbes Fig 8 et Fig 9 représentent les densités de spin majoritaires et la partie inférieure de la courbe montre le spin minoritaire densités.

Pour  $Mn_2LuSb$  au sein de GGA et GGA+U, les TDos de spin majoritaire et minoritaire sont fortement métalliques et confirment le comportement FM métallique. La représentation des PDos pour chaque composé et chaque approximation, nous permettra d'identifier l'origine des différents pics qui apparaissent dans les TDos pour les états de spin minoritaire et majoritaire. En quoi ci-après, nous donnerons une description de la disposition des différents pics ainsi que leur origine.

Pour le composé  $Mn_2LuSb$  Fig8a, en utilisant l'approximation GGA, plusieurs pics aigus ont été obtenus dans la bande de valence du spin majoritaire. Dans la basse énergie un pic aigu est détecté au point - 4,54 eV, ce pic est dû à une hybridation entre les états Mn-3d, Lu-5d et Sb-5p. Dans la région située dans l'intervalle [-3.30 – -1.33] eV, plusieurs pics aigus sont présents formés suite à une hybridation entre les états

Mn-3d et Lu-5d. Un pic pointu apparaît dans la région entourant le niveau de Fermi au point  $-0,86$  eV, un pic pointu apparaît suite à une hybridation entre les états Mn-3d et Sb-5p. Dans la bande de conduction, il y a une apparition d'une région dans la zone  $[0,59 - 8]$  eV. Cette région est légèrement aplatie et surmontée de quelques pics légèrement pointus dus à l'hybridation entre les états Lu-d et Sb-p.

Dans la bande de valence des spins minoritaires, nous avons détecté un pic aigu au point  $-4,54$  V dû à l'hybridation entre les états Lu-5d et Sb-5p. Dans la zone  $[-2,5 - 1,43]$  eV : région limitant le haut de la bande de valence et le bas de la bande de conduction, plusieurs pics sont détectés autour du niveau de Fermi. Ils sont dus à une hybridation entre les états Mn-3d et Lu-5d.

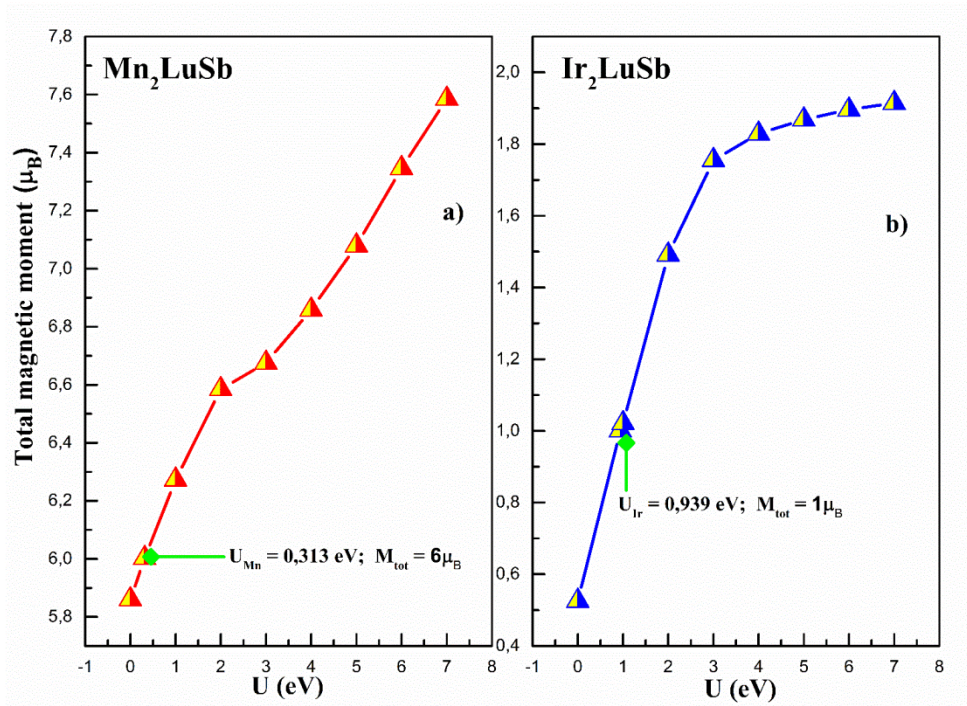
L'hybridation entre les états Mn-3d, Lu-5d et Sb-5p est à l'origine du pic aigu détecté au point  $1,82$  eV et des pics occupant la région  $[2,75 - 5,38]$  eV de la bande de conduction.

Avec l'approximation GGA + U, dans la courbe Fig8b illustrant les PDos de Mn-3d, on voit le déplacement des différents pics aigus de la bande de valence pour les états de spin majoritaires vers les basses énergies et les pics de la bande de conduction des spins minoritaires vers les hautes énergies. Ce nouvel arrangement apparaît sur les TDos, tous les pics auxquels il y a une contribution des états Mn-3d sont éloignés du niveau de Fermi. Le niveau de Fermi est occupé par les états Lu-5d et Sb-5p pour le spin majoritaire et minoritaire.

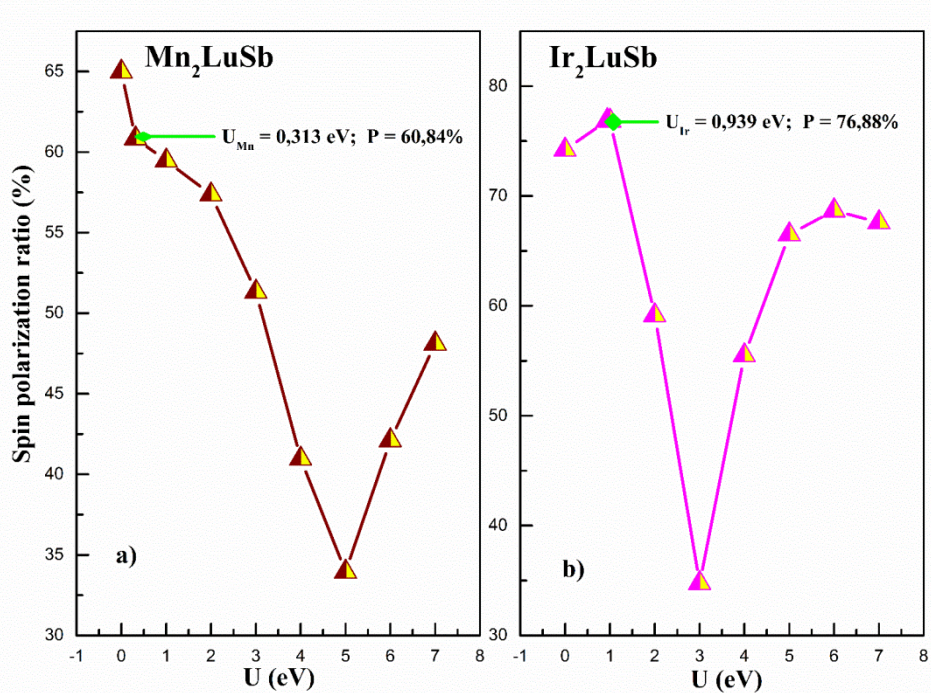
Pour le composé Ir<sub>2</sub>LuSb, avec l'approximation GGA, il a été observé que le niveau de Fermi est occupé pour les spins majoritaire et minoritaire. Une description des TDos et PDos à travers la figure 9c, élucidera l'arrangement et l'origine des différents pics. Pour les spins majoritaires, un pic pointu est détecté au point  $-4,42$  eV et un autre moins pointu est situé au point  $-0,26$  eV. Ces deux pics proviennent d'une hybridation entre les états Ir-5d, Lu-5d et Sb-5p. Dans la région comprise dans l'intervalle  $[-6,96 - -1,06]$  eV, on note la présence des états Ir-5d, Lu-5d et Sb-5p. Le niveau de Fermi est également occupé par ces trois états électroniques. Sur toute la bande de conduction, il y a une contribution électronique des états Ir-5d, Lu-5d et Sb-5p.

Avec l'approximation GGA + U Fig9d,  $U_{Ir} = 0,9$  eV et les pics aigus des états Ir-5d occupant le niveau de Fermi sont comparés aux énergies basse et haute des bandes de valence et de conduction respectivement. L'occupation du niveau de Fermi est faite

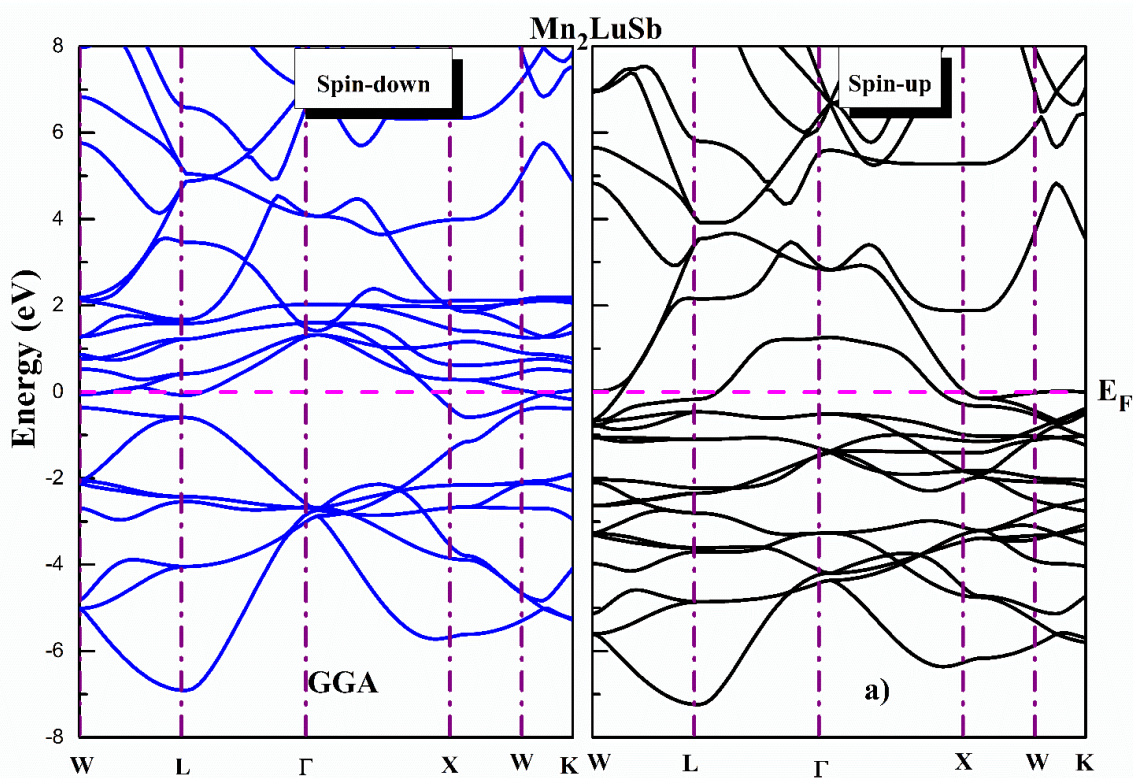
par Lu-5d et Sb-5p donnant ainsi toujours le comportement métallique FM au composé Ir<sub>2</sub>LuSb.



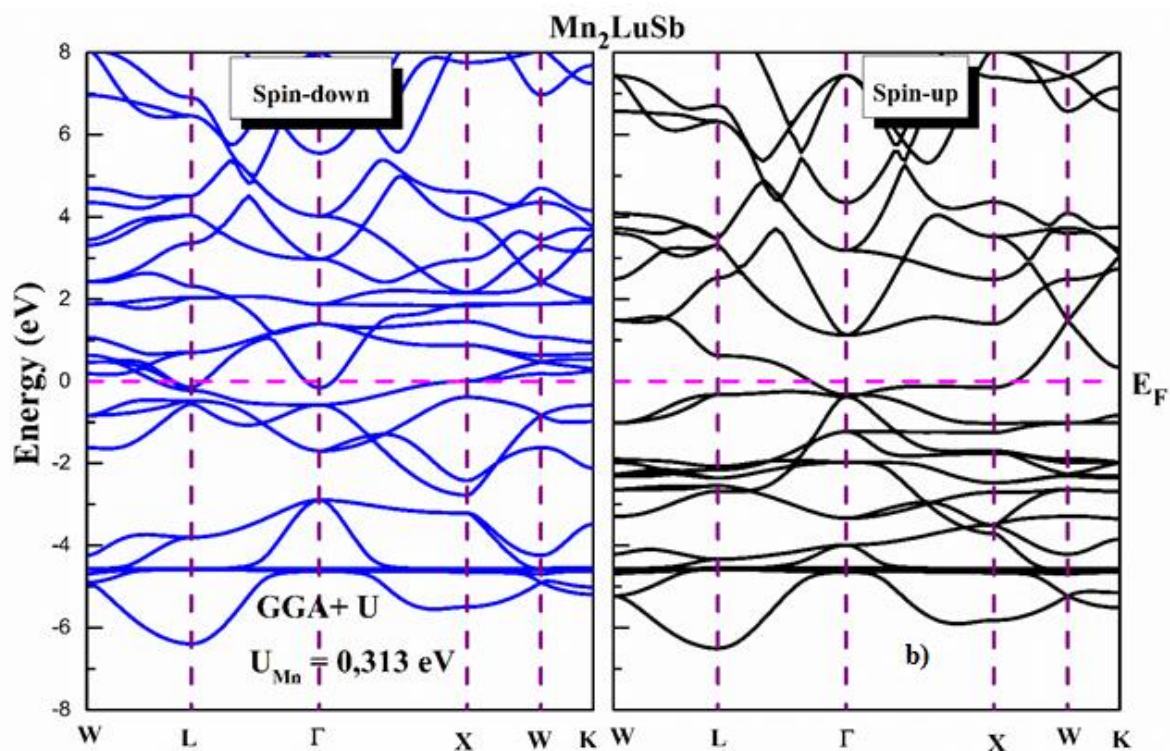
**Figure III.4:** Total magnetic moment dependence of Hubbard potential for (a) Mn<sub>2</sub>LuSb and (b) Ir<sub>2</sub>LuSb compounds



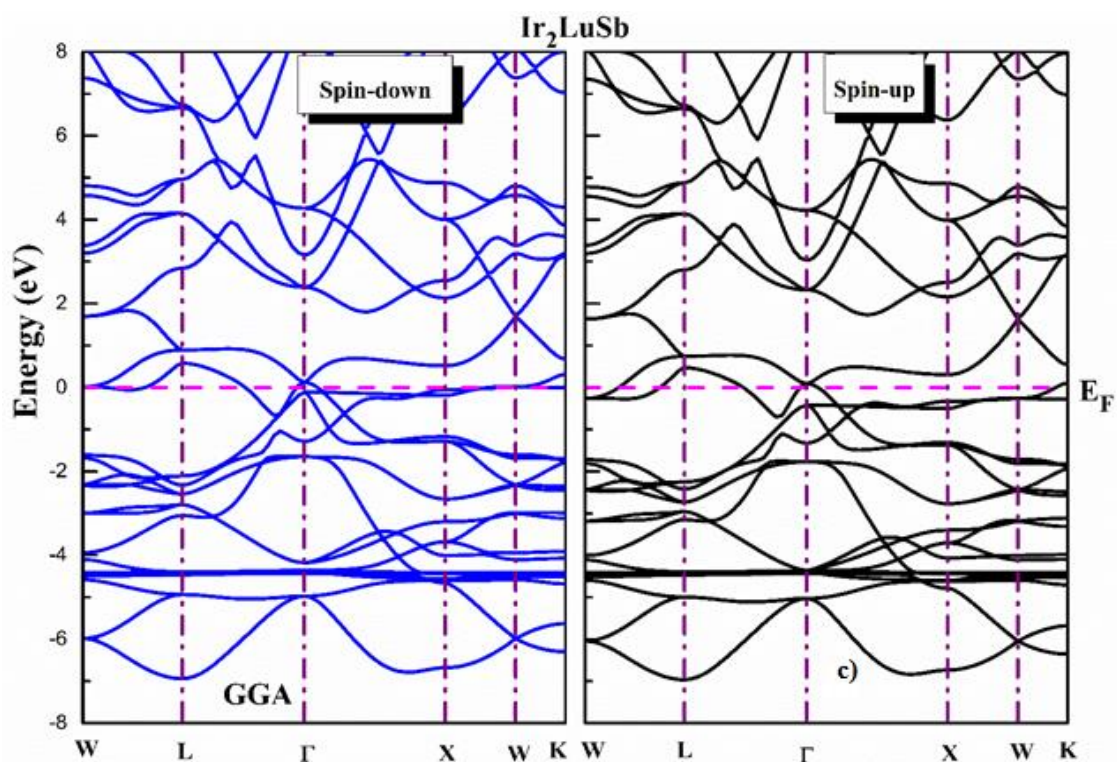
**Figure III.5:** Spin polarization ratio dependence of Hubbard potential for (a)  $Mn_2LuSb$  and (b)  $Ir_2LuSb$  compounds

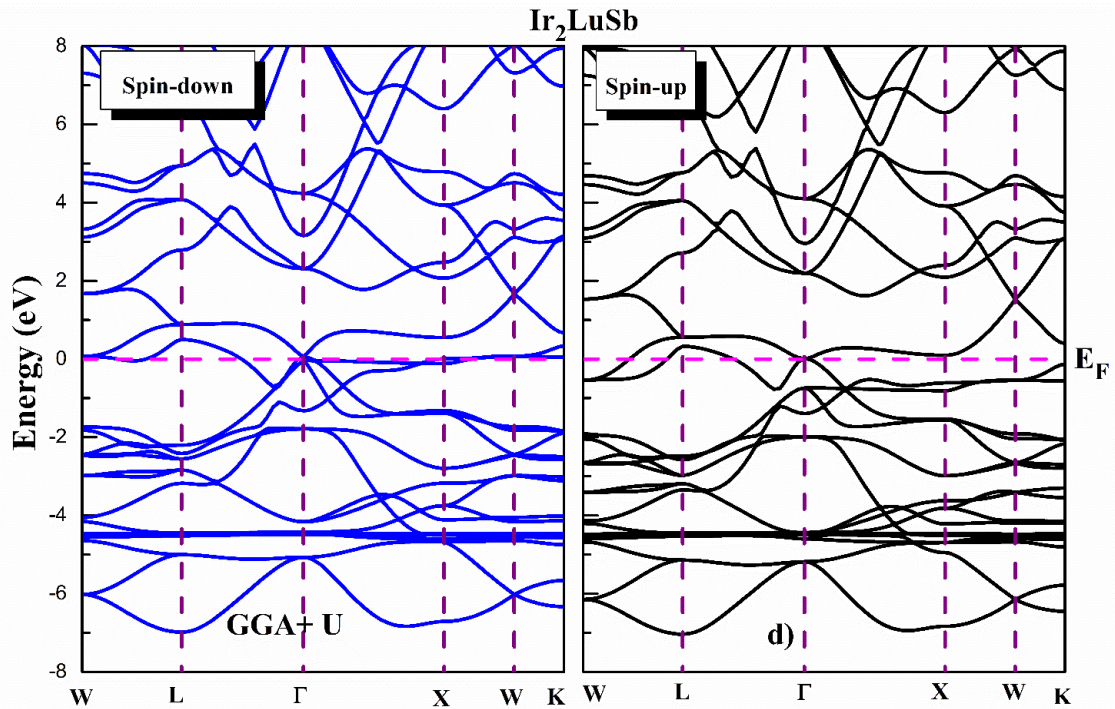




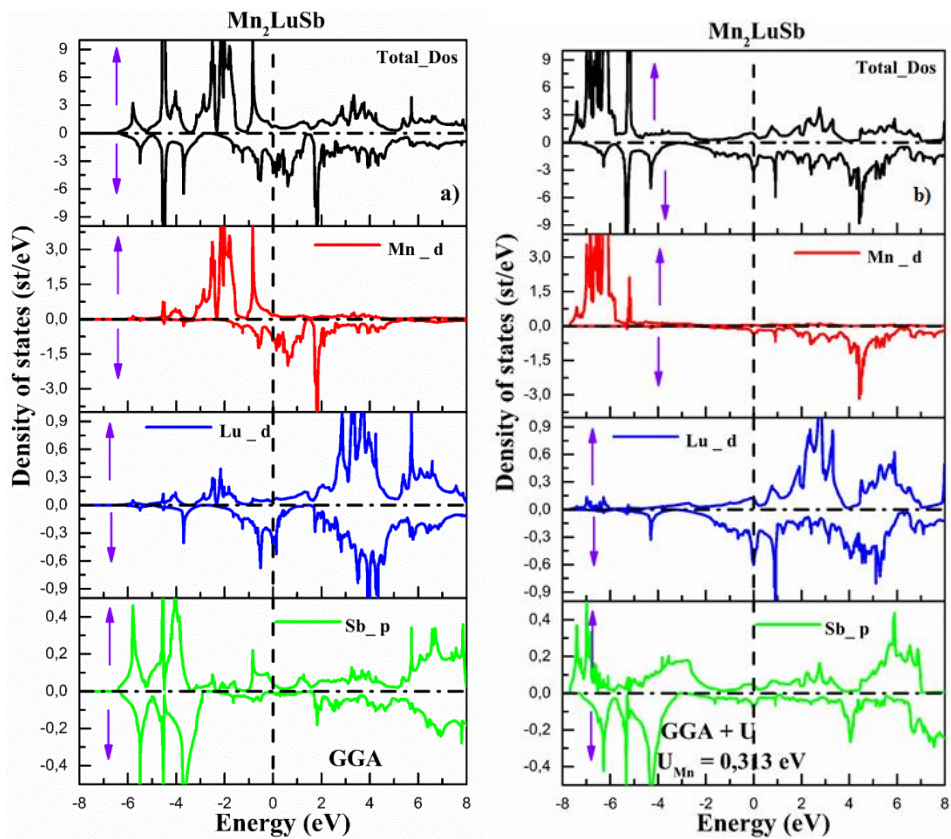


**Figure III.6:** The band structures of the full- Heusler compound Mn<sub>2</sub>LuSb with (a) GGA and (b) with GGA+U, for the spin-up and spin-down electrons.



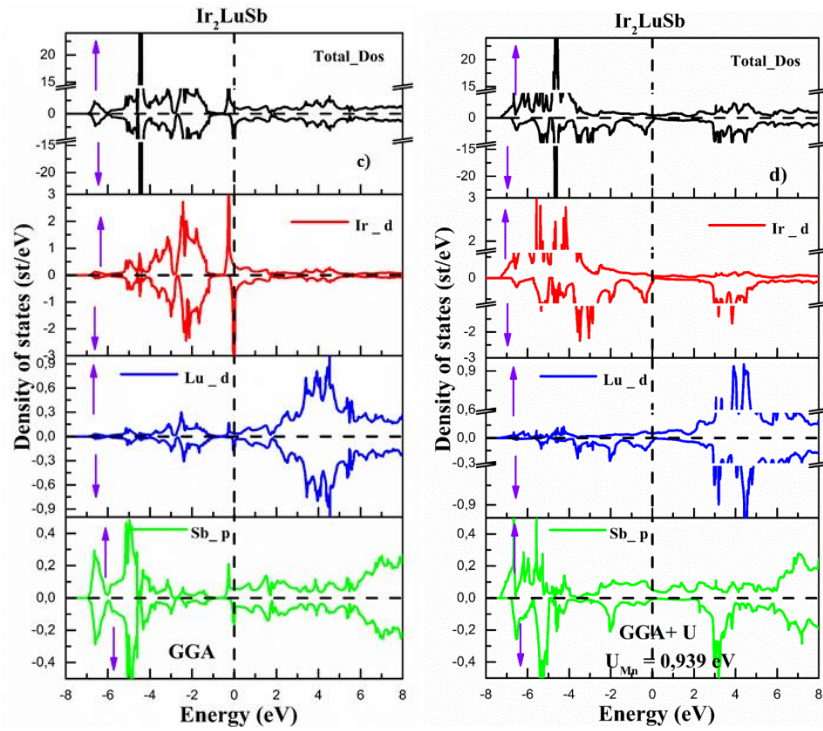


**Figure III.7:** The band structures of the full- Heusler compound  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  with (c) GGA and (d) with GGA+U, for the spin-up and spin-down electrons.



**Figure III.8:** Spin-polarized total and partial densities of states (TDos) and (PDos) of  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  full-Heusler compound with (a) GGA and with (b) GGA+U. The Fermi level is set at zero energy.





**Figure III.9:** Spin-polarized total and partial densities of states (TDos) and (PDos) of  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  full-Heusler compound with (c) GGA and with (d) GGA +U. The Fermi level is set at zero energy.



## Bibliographie

- [1] Manna, K., Muechler, L., Kao, T. H., Stinshoff, R., Zhang, Y., Gooth, J., & Felser, C. (2018). From Colossal to Zero: Controlling the Anomalous Hall Effect in Magnetic Heusler Compounds via Berry Curvature Design. *Physical Review X*, 8(4). [doi:10.1103/physrevx.8.041045](https://doi.org/10.1103/physrevx.8.041045)
- [2] Noky, J., Zhang, Y., Gooth, J., Felser, C., & Sun, Y. (2020). Giant anomalous Hall and Nernst effect in magnetic cubic Heusler compounds. *Npj Computational Materials*, 6(1). [doi:10.1038/s.41524.020.0342.5](https://doi.org/10.1038/s.41524.020.0342.5)
- [3] Serrano-Sánchez, F., Luo, T. Yu., J., Xie, W., Le, C., & Auffermann, G. Fu., C. (2020). Thermoelectric properties of n-type half-Heusler NbCoSn with heavy-element Pt substitution. *Journal of Materials Chemistry A*. [doi:10.1039/d.0ta04644b](https://doi.org/10.1039/d.0ta04644b)
- [4] Aull, T., Şaşıoğlu, E., Maznichenko, I. V., Ostanin, S., Ernst, A., Mertig, I., & Galanakis, I. (2019). Abinitio design of quaternary Heusler compounds for reconfigurable magnetic tunnel diodes and transistors. *Physical Review Materials*, 3(12). [doi:10.1103/physrevmaterials.3.1](https://doi.org/10.1103/physrevmaterials.3.1)
- [5] Huang, H. L., Tung, J. C., & Jeng, H. T. (2021). A first-principles study of rare earth quaternary Heusler compounds: RXVZ (R = Yb, Lu, X = Fe, Co, Ni, Z = Al, Si). *Physical Chemistry Chemical Physics*, 23(3), 2264–2274. [doi:10.1039/d.0cp05191h](https://doi.org/10.1039/d.0cp05191h)
- [6] Fadila, B., Ameri, M., Bensaid, D., Noureddine, M., Ameri, I., Mesbah, S., & Al-Douri, Y. (2018). Structural, magnetic, electronic and mechanical properties of full-Heusler alloys Co<sub>2</sub>YA1 (Y = Fe, Ti): First principles calculations with different exchange-correlation potentials. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 448, 208–220. [doi:10.1016/j.jmmm.2017.06.048](https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2017.06.048)
- [7] Asma, B., Belkharroubi, F., Ibrahim, A., Lamia, B., Mohammed, A., Belkilali, W., Al-Douri, Y. (2021). Structural, mechanical, magnetic, electronic, and thermal investigations of Ag<sub>2</sub>YB (Y = Nd, Sm, Gd) full-Heusler alloys. *Emergent Materials*. [doi:10.1007/s.42247-021-00257-8](https://doi.org/10.1007/s.42247-021-00257-8)
- [8] Saib, H., Dergal, S., Rached, H., & Dergal, M. (2020). Spin gapless semiconductor behavior in d<sup>0</sup>-d half-Heusler CrSbSr: Potential candidate for spintronic application. *SPIN*. [doi:10.1142/s.2010324720500253](https://doi.org/10.1142/s.2010324720500253)
- [9] Zerrouki, T., Rached, H., Rached, D., Caid, M., Cheref, O., & Rabah, M. (2020). First-principles calculations to investigate structural stabilities, mechanical and

optoelectronic properties of NbCoSn and NbFeSb half-Heusler compounds. International Journal of Quantum Chemistry. [doi:10.1002/qua.26582](https://doi.org/10.1002/qua.26582)

[10] Benidris, M., Aziz, Z., Khandy, S. A., Terkhi, S., Ahmad, M. A., Bouadjemi, B., Laref, A. (2021). Electronic structure, thermoelectric, mechanical and phonon properties of full-Heusler alloy (Fe<sub>2</sub>CrSb): first-principles study. Bulletin of Materials Science, 44(3). [doi:10.1007/s.12034.021.02496.1](https://doi.org/10.1007/s.12034.021.02496.1)

[11] Kim, S. J., Ryu, W. H., Oh, H. S., & Park, E. S. (2018). A large reversible room temperature magneto-caloric effect in Ni-TM-Co-Mn-Sn (TM = Ti, V, Cr) meta-magnetic Heusler alloys. Journal of Applied Physics, 123(3), 033903. [doi:10.1063/1.5000147](https://doi.org/10.1063/1.5000147)

[12] Guillemard, C., Petit-Watlot, S., Rojas-Sánchez, J. C., Hohlfeld, J., Ghanbaja, J., Bataille, A., Andrieu, S. (2019). Polycrystalline Co<sub>2</sub>Mn-based Heusler thin films with high spin polarization and low magnetic damping. Applied Physics Letters, 115(17), 172401. [doi:10.1063/1.5121614](https://doi.org/10.1063/1.5121614)

[13] Chadov, S., Wu, S. C., Felser, C., & Galanakis, I. (2017). Stability of Weyl points in magnetic half-metallic Heusler compounds. Physical Review B, 96(2). [doi:10.1103/physrevb.96.024435](https://doi.org/10.1103/physrevb.96.024435)

[14] Faleev, S. V., Ferrante, Y., Jeong, J., Samant, M. G., Jones, B., & Parkin, S. S. P. (2017). Heusler compounds with perpendicular magnetic anisotropy and large tunneling magnetoresistance. Physical Review Materials, 1(2). [doi:10.1103/physrevmaterials.1](https://doi.org/10.1103/physrevmaterials.1)

[15] Gazi Yalcin Battal, Ground state properties and thermoelectric behavior of Ru<sub>2</sub>VZ (Z=Si, Ge, Sn) half-metallic ferromagnetic full-Heusler compounds, J MagnMagn Mater 408(2016)137.146. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmmm.2016.02.064>

[16] Wu, C., Zheng, W., Feng, W., Jiang, W. Band Structures, Magnetism, Half-metallicity and Elastic Properties of Full-Heusler Alloy Cr<sub>2</sub>VSb. Journal of the Physical Society of Japan, 89. (2020) .064713. [doi:10.7566/jpsj.89.064713](https://doi.org/10.7566/jpsj.89.064713)

[17] Hussain MK, Hassan OT, Alqubili AM, Investigations of the Electronic and Magnetic Structures of Zr<sub>2</sub>NiZ (Z = Ga, In, B) Heusler Compounds : First Principles Study, Journal of Electronic Materials. (2018) 6512.2. <https://doi.org/10.1007/s.11664.018.6512.2>

- [18] Galehgirian, S, Ahmadian, F, First principles study on half-metallic properties of Heusler compounds  $Ti_2VZ$  ( $Z=Al, Ga, \text{ and } In$ ), Solid State Communications 202.(2015) 52.57. <https://doi.org/10.1016/j.ssc.2014.10.017>
- [19] Hussain MK, Gao GY, Yao K-L, Half-Metallic Properties in the New  $Ti_2NiB$  Heusler Alloy, Journal of Superconductivity and Novel Magnetism 28(11).(2015)3285.3291. <https://doi.org/10.1007/s10948-015-3149-8>
- [20] Benaddi, F., Belkharroubi, F., Ramdani, N., Ameri, M., Haouari, S., Ameri, I., Al-Douri, Y. (2021). Electronic and magnetic investigation of half-metallic ferrimagnetic full-Heusler  $Mn_2IrGe$ . Emergent Materials. [doi:10.1007/s.42247.021.00231.4](https://doi.org/10.1007/s.42247.021.00231.4)
- [21] Yao, W., Zhou, J., Zeng, D., Wan, H., Ruan, W., Liu, L., & Wen, Y. (2020). Computational discovery of the novel half-metallic full-Heusler alloys  $Mn_2LiAs$  and  $Mn_2LiSb$ . Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 166642. [doi:10.1016/j.jmmm.2020.166642](https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2020.166642)
- [22] Patel, P. D., Pandya, J. B., Shinde, S. M., Gupta, S. D., Narayan, S., & Jha, P. K. (2020). Investigation of Full-Heusler compound  $Mn_2MgGe$  for magnetism, spintronics and thermoelectric applications: DFT study. Computational Condensed Matter, e00472. [doi:10.1016/j.cocom.2020.e00472](https://doi.org/10.1016/j.cocom.2020.e00472)
- [23] Hao, L., Khenata, R., Wang, X., & Yang, T. (2019). Ab Initio Study of the Structural, Electronic, Magnetic, Mechanical and Thermodynamic Properties of Full-Heusler  $Mn_2CoGa$ . Journal of Electronic Materials. [doi:10.1007/s.11664.019.07417.x](https://doi.org/10.1007/s.11664.019.07417.x)
- [24] Guermit, Y., Caid, M., Rached, D., Drief, M., Rekab-Djabri, H., Lantri, T., Benkhattou, N. (2021). Investigation of Structural, Elastic, Electronic, Magnetic and Thermoelectric Properties for  $Mn_2RhZ$  ( $Z = Al, Si \text{ and } Ge$ ) Full-Heusler Alloys. International Journal of Thermophysics, 42(6). [doi:10.1007/s.10765.021.02841.w](https://doi.org/10.1007/s.10765.021.02841.w)
- [25] Maizia A, Belkharroubi F, Bourdim M, Khelfaoui F, Azzi S, Amara K, First-principles study of a half-metallic ferrimagnetic new full-Heusler  $Mn_2OsGe$  alloy, Journal SPIN 10(4). (2020).2050026.1. <https://doi.org/10.1142/S2010324720500265>
- [26] Prakash, R., & Kalpana, G. (2021). Prediction of structural, electronic and magnetic properties of full Heusler alloys  $Ir_2YSi$  ( $Y = Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, \text{ and } Ni$ ) via first-principles calculation. AIP Advances, 11(1), 015042. [doi:10.1063/9.0000101](https://doi.org/10.1063/9.0000101)
- [27] Candan, A. (2019). A study on magnetic, electronic, elastic and vibrational

properties of Ir<sub>2</sub>MnAl Heusler alloy for spintronic applications. *Materials Research Express*. [doi:10.1088/2053.1591/ab308b](https://doi.org/10.1088/2053.1591/ab308b)

[28] Forozani, G., Karami, F., & Moradi, M. (2020). Structural, Electronic, Magnetic, and Optical Properties of Ir<sub>2</sub>ScZ (Z = Si, Ge, Sn) Full-Heusler Compounds: A First-Principles Study. *Journal of Electronic Materials*. [doi:10.1007/s.11664.020.08308.2](https://doi.org/10.1007/s.11664.020.08308.2)

[29] Blaha P, Schwarz K, Sorantin P, Trickey SB, Full-potential, linearized augmented plane wave programs for crystalline systems, *Comput Phys Commun* 59(2) (1990). 399-415, [https://doi.org/10.1016/0010.4655\(90\)90187.6](https://doi.org/10.1016/0010.4655(90)90187.6)

[30] Hohenberg P, Kohn W, Inhomogeneous electron gas, *Phys Rev* 136(3B). (1964) .B864.B871, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.136.B864>

[31] Hadji Tariq, Khalfoun Hfid, Rached Habib, Guermit Youcef, Azzouz-Rached Ahmed, Rached Djamel, DFT study with different exchange-correlation potentials of physical properties of the new synthesized alkali-metal based Heusler alloy, *The European Physical Journal B* 93(11). (2020). 10204.5 <https://doi.org/10.1140/epjb/e2020.10204.5>

[32] Saib H, Dergal S, Rached H, Dergal M, Spin gapless semiconductor behavior in d<sup>0</sup>-d half-Heusler CrSbSr: Potential candidate for spintronic application, *Journal SPIN* (2020) 1-18, <https://doi.org/10.1142/S2010324720500253>

[33] Ouadha Ismail, Rached Habib, Azzouz-Rached Ahmed, Reggad Abderrahmane, Rached Djamel, Study of the structural, mechanical and thermodynamic properties of the new MAX phase compounds (Zr<sub>1-x</sub>Ti<sub>x</sub>)<sub>3</sub>AlC<sub>2</sub>, *Computational Condensed Matter* 23(2020) e00468.1, <https://doi.org/10.1016/j.cocom.2020.e00468>

[34] Rached H, Bendaoudia S, Rached D, Investigation of Iron-based double perovskite oxides on the magnetic phase stability, mechanical, electronic and optical properties via first-principles calculation, *Materials Chemistry and Physics* 193(2017) 453–469. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2017.03.006>

[35] Elahmar MH, Rached H, Rached D, Benalia S, Khenata R, Biskri ZE, & Bin Omran S, Structural stability, electronic structure and magnetic properties of the new hypothetical half-metallic ferromagnetic full-Heusler alloy CoNiMnSi, *Materials Science-Poland* 34(1)(2016) 85-93. <https://doi.org/10.1515/msp-2016-0011>

[36] Benkabou M, Rached H, Abdellaoui A, Rached D, Khenata R, Elahmar MH, Abidri B, Benkhetou N, Bin-Omran S, Electronic structure and magnetic

- properties of quaternary Heusler alloys  $\text{CoRhMnZ}$  ( $Z = \text{Al, Ga, Ge and Si}$ ) via first-principle calculations, *Journal of Alloys and Compounds* 647.(2015) .276.286. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2015.05.273>
- [37] Rached H, Elahmar MH, Rached D , Khenata R , Murtaza G, Bin Omran S, Ahmed WK, Structural , mechanical, electronic and magnetic properties of a new series of quaternary Heusler alloys  $\text{CoFeMnZ}$  ( $Z=\text{Si, As, Sb}$ ): A first-principle study, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 393.(2015) 165.174. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2015.05.019>
- [38] Rached H , Rached D , Khenata R, Abidri B, Rabah M, Benkhattou N, Omran SB, A first principle study of phase stability , electronic structure and magnetic properties for  $\text{Co}_{2-x}\text{Cr}_x\text{MnAl}$  Heusler alloys ,*Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 379.(2015). 84.89 <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2014.12.013>
- [39] Perdew JP , Burke Kieron , Ernzerhof Matthias , Generalized gradient approximation made simple , *Phys Rev Lett* 77(18). (1996). 3865.3868. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.77.3865>
- [40].Blaha P, Schwarz K , Medsen GKH , Kvasnicka D, Luitz J, WIEN2k: An Augmented Plane Wave Local Orbitals Program for Calculating Crystal Properties, Techn University at Wien Austria .(2001) . <http://www.wien2k.at/>
- [41] Saad H. E., M. M., & Elhag, A. (2018). DFT study on the crystal, electronic and magnetic structures of tantalum based double perovskite oxides  $\text{Ba}_2\text{MTaO}_6$  ( $M = \text{Cr, Mn, Fe}$ ) via GGA and GGA+U. *Results in Physics*, 9, 793.805. [doi:10.1016/j.rinp.2018.03.055](https://doi.org/10.1016/j.rinp.2018.03.055)
- [42] Sofi, S. A., & Gupta, D. C. (2019). Exploration of electronic structure, mechanical stability, magnetism, and thermophysical properties of L2 1 structured  $\text{Co}_2\text{XSb}$  ( $X = \text{Sc and Ti}$ ) ferromagnets. *International Journal of Energy Research*. [doi:10.1002/er.5071](https://doi.org/10.1002/er.5071)
- [43] Murnaghan FD , The Compressibility of Media under Extreme Pressures, *ProcNatlAcadSci* 30(9) .(1944). 244.247.<http://dx.doi.org/10.1073/pnas.30.9.244>
- [44] Belkharroubi, F., Khelfaoui, F., Amara, K., Marbough, N., Ameri, M., & Si Abderrahmane, Y. (2018). Robust half metallicity state with the hydrostatic and tetragonal distortion for a new quaternary Heusler  $\text{ZrTiRhGa}$ : FP-LAPW calculations. *Physica B: Condensed Matter*. [doi:10.1016/j.physb.2018.12.037](https://doi.org/10.1016/j.physb.2018.12.037)
- [45] Hoat, D. M., Naseri, M., Binh, N. T. T., Vu, T. V., Rivas-Silva, J. F., Obeid, M.

- M., & Coccoletzi, G. H. (2021). Strain-tunable electronic, optical and thermoelectric properties of BP monolayer investigated by FP-LAPW calculations. *Physica B: Condensed Matter*, 603, 412757. [doi:10.1016/j.physb.2020.412757](https://doi.org/10.1016/j.physb.2020.412757)
- [46] Mehl MJ, Pressure dependence of the elastic moduli in aluminum-rich Al-Li compounds, *Phys Rev B* 47. (1993). 2493.2500  
[.https://doi.org/10.1103/PhysRevB.47.2493](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.47.2493)
- [47] Schreiber E, Anderson OL, Soga N, *Elastic Constants and Their Measurements*, McGraw-Hill (New York, 1973)
- [48] M. Jamal a, M. Bilal b, Iftikhar Ahmad b, c, S. Jalali-Asadabadi *Relast package Journal of Alloys and Compounds Volume 735*, 25 February 2018, Pages 569-579
- [49] Wallace DC, *Thermodynamics of Crystals*, *Acta Crystallographica Section A* 29(5). (1973). 582–583. <https://doi.org/10.1107/S056773947300149X>
- [50] Born M, On the stability of crystal lattices. IV, *Proc Cambridge Philos Soc* 36(04). (1940). 466-478. <https://doi.org/10.1017/S0305004100017515>
- [51] Born M, Huang K, *Dynamical Theory of Crystal Lattices*, *Acta Crystallographica*, 8(7). (1956). 444–444.  
<https://doi.org/10.1107/S0365110X5500279X>
- [52] Born, M, Huang, K, (1954) *Dynamical theory of crystal lattices*, Clarendon press. <http://dx.doi.org/10.4236/oalib.1100648>
- [53] Cheng, H. C., Yu, C.-F., & Chen, W. H., (2013). First-principles density functional calculation of mechanical, thermodynamic and electronic properties of CuIn and Cu<sub>2</sub>In crystals. *Journal of Alloys and Compounds*, 546, 286-295. [doi:10.1016/j.jallcom.2012.08.077](https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.08.077)
- [54] Mayer, B., Anton, H., Bott, E, Methfessel, M., Sticht, J, Harris, J, Schmidt, PC. (2003) Ab-initio calculation of the elastic constants and thermal expansion coefficients of Laves phases, *Intermetallics* 11 00127-00129  
<http://dx.doi.org/10.1002/andp.18892741206>
- [55] Hill R, (1952) The Elastic Behaviour of a Crystalline Aggregate, *Proc Phys Soc London*, A 65 349–354 <http://dx.doi.org/10.1002/zamm.19290090104>
- [56] Hayat Ullah H, Kayani F. S., Khenata R. (2019). Insight into the mechanical, thermal, electronic and magnetic properties of cubic lanthanide built perovskites oxides PrXO<sub>3</sub> (X=Al, Ga). *Journal of Materials Research Express*. [doi:10.1088/2053-1591/ab5903](https://doi.org/10.1088/2053-1591/ab5903)

- [57] Singh, S., Kumar, R. (2017). Ab-initio calculations of elastic constants and thermodynamic properties of LuAuPb and YAuPb half-heusler compounds. *Journal of Alloys and Compounds*, 722, 544–548. [doi:10.1016/j.jallcom.2017.06.131](https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2017.06.131)
- [58] Nye, J.F. (1961). *Propriétés physiques des matériaux*, Dunod 84 335-341  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.08.077>
- [59] Yalameha S, Vaez A.(2019). Structural, electronic, elastic and thermodynamic properties of  $\text{Al}_{1-x}\text{ZxNi}$  ( $\text{Z}=\text{Cr, V}$  and  $x= 0, 0.125, 0.25$ ) alloys: First-principle calculations *journal Computational Condensed Matter*.<https://doi.org/10.1016/j.cocom.2019.e00415>
- [60] Cheng, H.-C., Yu, C. F., & Chen, W. H., (2013). First-principles density functional calculation of mechanical, thermodynamic and electronic properties of CuIn and Cu<sub>2</sub>In crystals. *Journal of Alloys and Compounds*, 546, 286–295. [doi:10.1016/j.jallcom.2012.08.077](https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.08.077)
- [61] Mayer, B., Anton, H., Bott, E., Methfessel, M., Sticht, J., Harris, J., Schmidt, P.C. (2003). Ab-initio calculation of the elastic constants and thermal expansion coefficients of Laves phases, *Intermetallics* 11 00127-00129  
<http://dx.doi.org/10.1002/andp.18892741206>
- [62] Hill, R. (1952). The Elastic Behaviour of a Crystalline Aggregate, *Proc Phys Soc London, A* 65 349–354 <http://dx.doi.org/10.1002/zamm.19290090104>
- [63] Popoola, A. I., Odusote, A. Y., Ayo-Ojo, O. E. (2017). Stability and the Electronic Structure of XB<sub>2</sub> (X = Pt, Ir, Pd, Rh, Os) Diborides. *Latvian Journal of Physics and Technical Sciences*, 54(4), 49–57. [doi:10.1515/lpts-2017-0026](https://doi.org/10.1515/lpts-2017-0026)
- [64] S M Azar, B. A., Hamad and J M Khalifeh *J MagnMagn Mater* 324 1776 (2012)

# CONCLUSION



## **Conclusion**

Dans ce travail, nous avons étudié les propriétés structurales, élastiques, magnétiques et électroniques des composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  full-Heusler, en utilisant la théorie fonctionnelle de la densité basée sur la méthode des ondes planes augmentées linéarisées à plein potentiel (FP-LAPW), au sein de GGA. et les approximations GGA+U.

L'étude des propriétés structurales des deux composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  a montré qu'ils sont stables dans la structure cubique régulière avec  $AlCu_2Mn$ , état FM. Le calcul des constantes élastiques a révélé que nos deux composés obéissent aux critères de stabilité, ils sont de nature anisotrope et ductile. La stabilité mécanique du  $Mn_2LuSb$  et de l' $Ir_2LuSb$  reste vérifiée dans la plage de pression comprise entre 0 GPa et 50 GPa.

L'utilisation de l'approximation GGA + U a montré que le traitement d'états énergétiques fortement corrélés par le potentiel Hubbard affecte considérablement les propriétés magnétiques et électroniques. Les moments magnétiques totaux et partiels auxquels le potentiel Hubbard est appliqué sont proportionnels à cela. Les composés  $Mn_2LuSb$  et  $Ir_2LuSb$  conservent leur comportement FM métallique avec les deux approximations GGA et GGA + U.

La variation du potentiel Hubbard avec les mêmes conditions de stabilité permet d'obtenir des matériaux ayant des moments magnétiques totaux entiers qui peuvent être candidats pour des applications dans le domaine de la spintronique. Nous souhaitons par ce présent travail contribuer aux recherches futures destinées à la découverte de nouveaux matériaux aux propriétés technologiques nouvelles.



# Investigation of structural, elastic, electronic, and magnetic properties for $X_2\text{LuSb}$ ( $X = \text{Mn}$ and $\text{Ir}$ ) full-Heusler alloys

Laroussi Samia<sup>1</sup> · Fadila Belkharroubi<sup>1,2</sup> · Ameri Ibrahim<sup>1</sup> · Blaha Farah Lamia<sup>1</sup> · Asma Saim<sup>2</sup> · Ahmed Maizia<sup>2</sup> · Ameri Mohammed<sup>1</sup> · Y. Al-Douri<sup>3,4</sup>

Received: 22 November 2021 / Accepted: 24 February 2022  
© Qatar University and Springer Nature Switzerland AG 2022

## Abstract

A study on the structural, elastic, electronic, and magnetic properties of full-Heusler  $X_2\text{LuSb}$  ( $X = \text{Mn}$  and  $\text{Ir}$ ) compounds by using the first principle calculations within generalized gradient approximation Perdew, Burke, and Ernzerhof GGA-PBE for electron exchange and correlation is reported. The GGA + U approximation is utilised to determine the effect of the Hubbard correction on the magnetic and electronic properties. According to the results obtained for the structural properties, our compounds are stable in the regular structure and ferromagnetic states. The elastic properties have shown the conformity of elastic constants with the stability criteria and the ductile nature of the compounds. This mechanical stability is preserved over the interval, 0–50 GPa. The using of GGA and GGA + U approximations has shown the effect of Hubbard correction applied to the two atoms Mn and Ir on the variation of their magnetic moment.

**Keywords** DFT · Full Heusler · Hubbard potential · Magnetic properties

## 1 Introduction

Heusler alloys have sparked scientific interest among researchers to be future candidates for revolutionary applications [1–8]. This class of remarkable materials is including an extensive collection of over 1000 compounds, known as Heusler compounds or alloys. A distinction is made between the quaternary Heusler compound with the composition  $\text{XX}'\text{YZ}$  [9, 10] the full-Heusler compound with the

composition  $X_2\text{YZ}$  [11, 12], and the half-Heusler compound with the composition  $\text{XYZ}$  [13, 14] Full-Heusler intermetallic compounds are ternary ferromagnetic compounds of the formula  $X_2\text{YZ}$  to study the ferromagnetic behavior [15]. The large class of magnetic compounds ( $X_2\text{YZ}$ ) shows all types of the magnetic and multifunctional magnetic properties, such as magnetic characteristics magneto-caloric effect [16] in addition to high spin polarization and low magnetic damping [17], half-metallic behavior [18], magnetic anisotropy, and tunneling magnetoresistance [19]. Full-Heusler alloys are ternary intermetallic compounds with stoichiometric composition ( $X_2\text{YZ}$ ), where (X) and (Y) are transition metal elements and (Z) is a group (III, IV, or V Element). These compounds crystallize in a face-centered cubic (fcc) lattice. They are recognized in two groups: regular and inverse full-Heusler compounds. Regular full-Heusler compounds type ( $\text{AlCu}_2\text{Mn}$ ,  $L2_1$  prototype) belong to  $Fm\bar{3}m$  (space group no, 225) symmetry if X atom is more electronegative than Y, and inverse full-Heusler compounds type ( $\text{CuHg}_2\text{Ti}$ ,  $\text{XA}$  prototype) belong to  $F43m$  (space group no, 216) when Y element is more electronegative rather than  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$  ( $L2_1$ ) or  $\text{CuHg}_2\text{Ti}$ -type structures. In  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$  type structure, X atoms occupy the Wyckoff positions 4a (0, 0, 0), 4b (0.5, 0.5, 0.5) sites, Y atom occupies 4c (0.25, 0.25, 0.25) site, and Z atom occupies 4d (0.75, 0.75, 0.75). In  $\text{CuHg}_2\text{Ti}$ -type

✉ Y. Al-Douri  
yaldouri@yahoo.com

<sup>1</sup> Laboratory of Physical Chemistry of Advanced Materials (LPCMA), University of Djillali Liabes, BP 89, 22000 Sidi-Bel-Abbes, Algeria

<sup>2</sup> Department of Engineering Physics, Faculty of Physics, Laboratory of Analysis and Application of Radiations (LAAR), University of Science and Technology of Oran Mohamed Boudiaf (USTO-MB), 1505 El Menouar 31000, Oran, Algeria

<sup>3</sup> Engineering Department, American University of Iraq-Sulaimani, P.O.Box 46001, Sulaimani, Kurdistan, Iraq

<sup>4</sup> Department of Mechatronics Engineering, Faculty of Engineering and Natural Sciences, Bahcesehir University, 34349 Besiktas, Istanbul, Turkey

structure, the X atoms are placed in Wyckoff positions 4a (0, 0, 0) and 4c (0.25, 0.25, 0.25), while Y and Z in 4b (0.5, 0.5, 0.5) and 4d (0.75, 0.75, 0.75) positions, respectively [20–25]. The Mn-based full Heusler and chemical composition  $Mn_2YZ$  have been widely studied where the Y element takes different electronic configuration.

Yao et al. have studied  $Mn_2LiAs$  and  $Mn_2LiSb$  compounds to establish their half-metallic ferrimagnetic behavior [26]. The theoretical study has shown that this compound is stable in two types of cubic structures  $AlCu_2Mn$  and  $CuHg_2Ti$ . With the regular structure, it has a metallic behavior with an inverse structure, it has a half-metallic ferrimagnetic behavior [27]. The ab initio study has devoted to  $Mn_2CoGa$  for showing that this compound is stable in the inverse XA-type structure; it has a metallic ferrimagnetic behavior with a magnetic moment equals  $2 \mu_B$  [28]. A series of full-Heusler  $Mn_2RhZ$  ( $Z = Al, Si, \text{ and } Ge$ ) is investigated by Guermit et al. [29]; the results obtained has shown that the full-Heusler is ferrimagnetic half-metals with good thermoelectric characteristics allowing them to be a good candidate for applications in spintronics, while Maizia et al. [30] have studied different properties of full-Heusler  $Mn_2OsGe$  compound and their predictive result to reveal the half-metallic ferrimagnetic behavior. Several theoretical researches have been carried out on Ir-based full Heusler, Prakash et al. have researched the full-Heusler series  $Ir_2YSi$  ( $Y = Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, \text{ and } Ni$ ) to study the stability of the mentioned compounds in the  $L_{21}$  cubic structure as well as their half-metallic ferromagnetic behavior [31] using (FP-LAPW) method. The research work done by Candal [32] for the full-Heusler  $Ir_2MnAl$  has revealed that it constitutes a good candidate for spintronic behavior applications. Forozani et al. [33] have worked on three full-Heusler  $Ir_2ScSi, Ir_2ScGe, \text{ and } Ir_2ScSn$ . The results obtained by the computational calculations have shown that the  $Ir_2ScSi$  has a half-metallic behavior with a polarization, 100% at the equilibrium parameter while the  $Ir_2ScGe$  and  $Ir_2ScSn$  compounds have same behavior under stress.

In this work, we chose to study again full-Heusler  $Mn_2LuSb$  and  $Ir_2LuSb$ ; the Y element for both compounds is a rare earth element. Our work is based on calculations made by (FP-LAPW) method [34] within the framework of the density functional theory (DFT) [35–43]. The Perdew-Burke-Ernzerhof-generalized gradient approximation (PBE-GGA) [44] is employed for exchange–correlation potential functional implemented within Wien2k code [45]. GGA + U approximation [46, 47] is employed to treat the strongly correlated states. We are especially interested in the effect of Hubbard potential on the electronic and magnetic properties to develop new materials, which will find their applications in spintronic field. The rest of this work is presented as follows: Sect. 2 gives a brief description of the computational methods. In Sect. 3, we present our results and discussion of

the structural, elastic, electronic, and magnetic properties. The conclusion is summarized in Sect. 4.

## 2 Computational details

The structural, elastic, electronic, magnetic calculations of  $X_2LuSb$  ( $X = Mn \text{ and } Ir$ ) are performed using (FP-LAPW) method [34] as implemented within Wien2k code [45] in the framework of (DFT) [35–43]. The DFT method has proven to be one of the most accurate methods for the computation of the electronic structure of solids [48–56]. In this method, we have used a parameter  $R_{mt}$ .  $K_{max} = 8$ , which determines the matrix size (convergence), where  $K_{max}$  is the plane wave cutoff and the muffin-tin-radii (RMT) is chosen to ensure nearly touching spheres and minimizing the interstitial space. The parameters  $G_{max}$  and  $l_{max}$  (angular momentum vector) are taken as 14 and 10, respectively. We used a  $k$ -mesh of order  $14 \times 14 \times 14$  inside the irreducible first Brillion zone and for ensuring excellent convergence of the total energy; we have considered the convergence tolerance,  $10^{-4}$  Ry. We have chosen the muffin-tin radii (RMT) for Mn, Ir, Lu, and Sb to be 2.0, 2.5, 2.45, and 2.3 (a.u), respectively. The valence configurations of  $Mn = [Ar]3d^54s^2, Ir = [Xe]4f^{14}5d^76s^2, Lu = [Xe]4f^{14}5d^16s^2,$  and  $Sb = [Kr]4d^{10}5s^25p^3$  elements are employed.

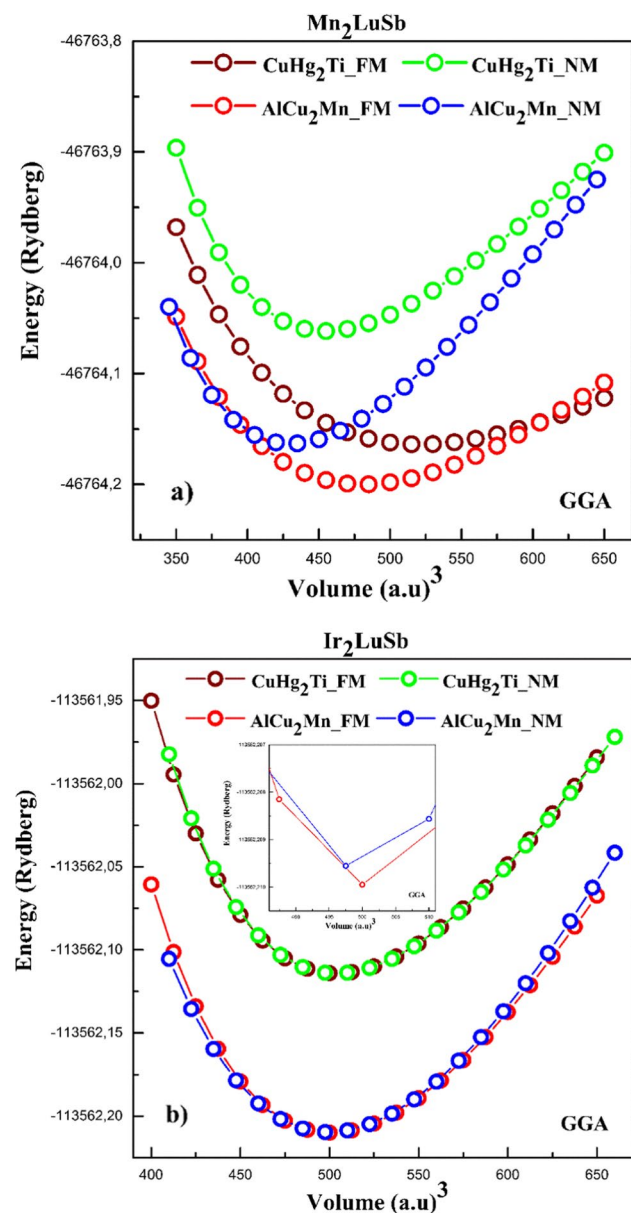
The 3d orbital for manganese and 5d orbital for iridium atoms are examined by using the GGA + U approximation [38], where this approach makes it possible to treat strongly correlated systems [39–42]. By using the Hubbard model, which takes into account the on-site Coulomb interactions ( $U$ ), Hund's rule exchanges ( $J$ ), a single term named the effective potential  $U_{eff} = U - J$  is added as a correction to the GGA approximation [46, 47]. For the calculation of the magnetic properties and of the polarization of the compounds  $Mn_2LuSb$  and  $Ir_2LuSb$ , all integer values belong to 0–7 eV that are used for  $U_{eff}$ . For the calculation of electronic properties, we have used  $U_{Mn} = 0.313$  eV for  $Mn_2LuSb$  and  $U_{Ir} = 0.939$  eV for  $Ir_2LuSb$ . This choice of  $U_{eff}$  for the study of electronic properties is based on obtaining an integer value for the total magnetic moment for each compound.

## 3 Results and discussion

### 3.1 Structural properties

We have calculated the total energy as a function of lattice constant of  $Mn_2LuSb$  and  $Ir_2LuSb$  compounds, for the ferromagnetic (FM) state, non-magnetic (NM) state, and anti-ferromagnetic (AFM) state for  $AlCu_2Mn$  structure. We have used the two cubic structures: in the cubic regular structure

with  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$  in  $L2_1$  as the prototype and in the cubic inverse full-Heusler alloy in XA structure with  $\text{CuHg}_2\text{Ti}$  as prototype. The total energies versus changed volumes have been fitted to Murnaghan's equation of state [57]. The plots of calculated total energies versus reduced volume of this alloy are shown in Fig. 1. We can see from these representations that our compounds are stable in the regular cubic structure  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$ , ferromagnetic states. The results obtained from the calculations of structural properties concerning the equilibrium lattice parameters  $a_0$ , bulk modulus  $B_0$  and its pressure derivatives  $B_0'$  and the total energies ( $E_{\text{tot}}$ )



**Fig. 1** Volume optimization of full-Heusler **a**  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$ , **b**  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  in cubic  $L2_1$ -type structure and cubic XA-type structure with GGA approximation

per formula parameters of  $\text{X}_2\text{LuSb}$  ( $X = \text{Mn, Ir}$ ) compounds are reported in Table 1. In the most stable structure, a value of  $6.582 \text{ \AA}$  for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  compound and value of  $6.670 \text{ \AA}$  for the compound  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  are noted for the lattice parameter. The values of the bulk modulus are  $79.75 \text{ GPa}$  and  $147.86 \text{ GPa}$  and their derivatives are  $3.79$  and  $4.04$  for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ , respectively. The minimum energy recorded for the  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  is  $-46,764.199873 \text{ Ryd}$  and it is noted for  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  to be  $-113,562.209948 \text{ Ryd}$ . On another side, we have seen that the lattice parameter and bulk modulus of each compound in its most stable structure increase with the increasing of atomic number  $Z$  of the chemical elements ( $X = \text{Mn, Ir}$ ). Our results have been compared to theoretical results to present a good agreement.

The calculation of the formation energy using the density functional theory can help to predict whether this alloy is chemically stable or not. The formation energy ( $E_f$ ) shows the stability of the compound is defined by the following equation [58, 59].

$$E_f = E_{X_2\text{LuSb}}^{\text{total}} - \left[ 2E_X^{\text{bulk}} + E_{L_u}^{\text{bulk}} + E_{S_b}^{\text{bulk}} \right] \quad (1)$$

where  $E_{X_2\text{LuSb}}^{\text{total}}$  is the calculated equilibrium total energy of the Full-Heusler  $\text{Mn}_2\text{OsGe}$  compound per formula unit and  $E_X^{\text{bulk}}$ ,  $E_{L_u}^{\text{bulk}}$ , and  $E_{S_b}^{\text{bulk}}$  correspond to the total energy per atom for the  $X = \text{Mn, Ir, Lu, and Sb}$  atoms. The calculated formation energies are shown in Table 1. The negative values of formation energies denote that the  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds are energetically and chemically stable. It has been found that for each compound, the value of the formation energy calculated in the cubic  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$  type structure, ferromagnetic state is the most negative, thus showing these compounds are the most stable under these conditions. The Curie temperature  $T_c$  in the mean field approximation (MFA) that can be evaluated by the following formula [60]:

$$T_C = \frac{2(E_{AFM} - E_{FM})}{3k_B} \quad (2)$$

where  $E_{AFM}$  and  $E_{FM}$  are the total energies per formula unit in (AFM) and (FM) states and  $k_B$  is the Boltzmann constant. The values of the minimum energies of the states (FM) and (AFM) of the  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds for the structure  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$  are grouped together in Table 1. The Curie temperatures  $T_C$  are  $447.14 \text{ }^\circ\text{K}$  and  $509.21 \text{ }^\circ\text{K}$  for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ , respectively. One can see that the estimated  $T_C$  for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  are higher than room temperature.

### 3.2 Elastic and mechanical properties

Knowing that the structure of our compounds is cubic, three elastic constants  $C_{11}$ ,  $C_{12}$ , and  $C_{44}$  are necessary to give a

**Table 1** The calculated equilibrium lattice constant ( $a_0$ ) in Å, bulk modulus ( $B$ ) in GPa and its derivatives ( $B'$ ); and the total energies ( $E_{\text{tot}}$ ) per formula (Ryd) and the formation energies  $E_f$  (Ryd), for full-Heusler  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  in cubic  $\text{CuHg}_2\text{Ti}$ -type structure and cubic  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$ -type structure with GGA approximation and with FM and NM states in comparison with other theoretical results

Alloy	Type structure	State	$a$ (Å)	$B$ (GPa)	$B'$	$E$ (Ryd)	$E_{\text{fom}}$ (Ryd)
$\text{Mn}_2\text{LuSb}$	$\text{CuHg}_2\text{Ti}$	FM	6.758	55.10	3.80	-46,764.163743	-0.790
	$\text{CuHg}_2\text{Ti}$	NM	6.460	117.65	5.06	-46,764.061527	-
	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	FM	6.582	79.75	3.79	-46,764.199873	-0.826
	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	NM	6.341	141.48	4.64	-46,764.163195	-
	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	A FM	7.750	74.76	4.54	-46,764,195,625	-
$\text{Mn}_2\text{IrGe}$	$\text{Hg}_2\text{CuTi}$	FM	5.931 <sup>(a)</sup>	220.134 <sup>(a)</sup>	4.415 <sup>(a)</sup>	-44,549.128144 <sup>(a)</sup>	-0.954 <sup>(a)</sup>
	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	FM	6.111 <sup>(a)</sup>	118.557 <sup>(a)</sup>	3.133 <sup>(a)</sup>	-44,549.062791 <sup>(a)</sup>	-0.887 <sup>(a)</sup>
$\text{Mn}_2\text{OsGe}$	$\text{Hg}_2\text{CuTi}$	FM	5.908 <sup>(b)</sup>	221.906 <sup>(b)</sup>	4.81 <sup>(b)</sup>	-43,396:773,554 <sup>(b)</sup>	-1:063 <sup>(b)</sup>
	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	FM	5.855 <sup>(b)</sup>	253.671 <sup>(b)</sup>	4.75 <sup>(b)</sup>	-43,396:693,341 <sup>(b)</sup>	-0:983 <sup>(b)</sup>
$\text{Ir}_2\text{LuSb}$	$\text{CuHg}_2\text{Ti}$	FM	6.683	145.90	4.71	-113,562.114026	-0.466
	$\text{CuHg}_2\text{Ti}$	NM	6.684	147.74	4.68	-113,562.114018	-
	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	FM	6.670	147.86	4.04	-113,562.209948	-0.562
	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	NM	6.666	144.63	3.29	-113,562.209592	-
	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	A FM	7.930	154.82	4.81	-113,562.2002725	-
$\text{Ir}_2\text{ScGe}$	$\text{AlCu}_2\text{Mn}$	FM	6.2478 <sup>(c)</sup>	157.2 <sup>(c)</sup>	-	-	-

<sup>(a)</sup>Ref [25]; <sup>(b)</sup>Ref [30]; <sup>(c)</sup>Ref[33]

complete description of the elastic properties [61, 62]. From different relations grouping these elastic constants, different characteristics of the material can be deduced. The elastic properties are calculated using [63] as implemented within Wien2k code. We cite certain formulas describing these properties: The traditional Born mechanical stability conditions of the elastic constants of cubic crystals [64–66].

$$C_{11} - C_{12} > 0, C_{11} + 2C_{12} > 0, C_{11} > 0, \text{ and } C_{44} > 0 \quad (3)$$

The compressibility module [67].

$$B = \frac{C_{11} + 2C_{12}}{3} \quad (4)$$

The Zener anisotropy factor  $A$  [68, 69]:

$$A = \frac{2C_{44}}{C_{11} - C_{12}} \quad (5)$$

The Voigt shear modulus,  $G_V$  and the Reuss shear modulus,  $G_R$  are obtained by [70–73]:

$$G_V = \frac{C_{11} - C_{12} + 3C_{44}}{5} \quad (6)$$

$$G_R = \frac{5(C_{11} - C_{12})C_{44}}{4C_{44} + 3(C_{11} - C_{12})} \quad (7)$$

The shear modulus  $G$  represents the resistance to plastic deformation [70–73]:

$$G = \frac{G_R + G_V}{2} \quad (8)$$

The Poisson's ratio  $\nu$  is expressed as [74]:

$$\sigma = \frac{3B - 2G}{2(3B + G)} \quad (9)$$

The Young's modulus  $E$  is given [75, 76] by:

$$E = \frac{9BG}{3B + G} \quad (10)$$

All the results obtained by our calculations are present in Table 2. According to the results obtained from the calculation of the elastic constants of the  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds in the most stable cubic  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$  structure (FM) states obtained previously by the calculation of the structural properties, we have recorded the following values: (i) the elastic constant  $C_{11}$  is worth 120.20 GPa and 220.41 GPa for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  respectively, (ii) the

**Table 2** Calculated elastic constants  $C_{ij}$ , bulk modulus  $B$  (GPa), Young's modulus  $E$ (GPa), shear modulus  $G$  (GPa), Poisson's ratio  $\nu$ ,  $B/G$  ratio, and anisotropy factor  $A$  for for full-Heusler  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  in cubic  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$ -type structure with GGA approximation

	$C_{11}$	$C_{12}$	$C_{44}$	$B$	$E$	$G$	$\nu$	$A$	$B/G$
$\text{Mn}_2\text{LuSb}$	120.20	63.06	60.57	82.11	108.41	44.80	0.27	2.12	1.83
$\text{Ir}_2\text{LuSb}$	220.41	113.68	111.32	149.26	209.79	82.87	0.34	2.09	1.80



elastic constant  $C_{12}$  is estimated at 63.06 GPa and 113.68 GPa for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  respectively, and (iii) the elastic constant  $C_{44}$  equals 60.57 GPa and 111.32 GPa for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ , respectively. The results obtained comply with the stability criteria. Our  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds are mechanically stable in the cubic  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$  structure, FM states.

For the bulk modulus, the following values are noted: 82.11 GPa for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and 149.26 GPa for  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ .

The  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compound has the highest bulk modulus value. Our results are too close to the results found in the calculation of structural properties. The Pugh's ratio  $B/G$  ratio describes the brittle or ductile nature of a material. Indeed, the value 1.75 delimits the domain of the validity of each nature. If the  $B/G$  ratio is less than 1.75, the compound behaves brittle behavior and if the  $B/G$  ratio is greater than this critical value, the compound has ductile behavior. In our work, we recorded the following values for the Pugh's ratio;  $B/G$  ratio is 1.83 for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and 1.80 for  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ . These results show the ductile character of  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds.

The anisotropy factor  $A$  shows the dependence of the direction measurements. If  $A = 1$ , the compound is isotropic and if it is different from 1 then it is anisotropic [69]. The results are found 2.12 for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and 2.09 for  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ . The  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds have  $A$  different from unity; they are called anisotropic compounds. The Poisson's ratio characterizing the bonding forces between the constituent atoms and Poisson's ratio describes the ratio of the transverse strain to longitudinal deformation. Indeed,

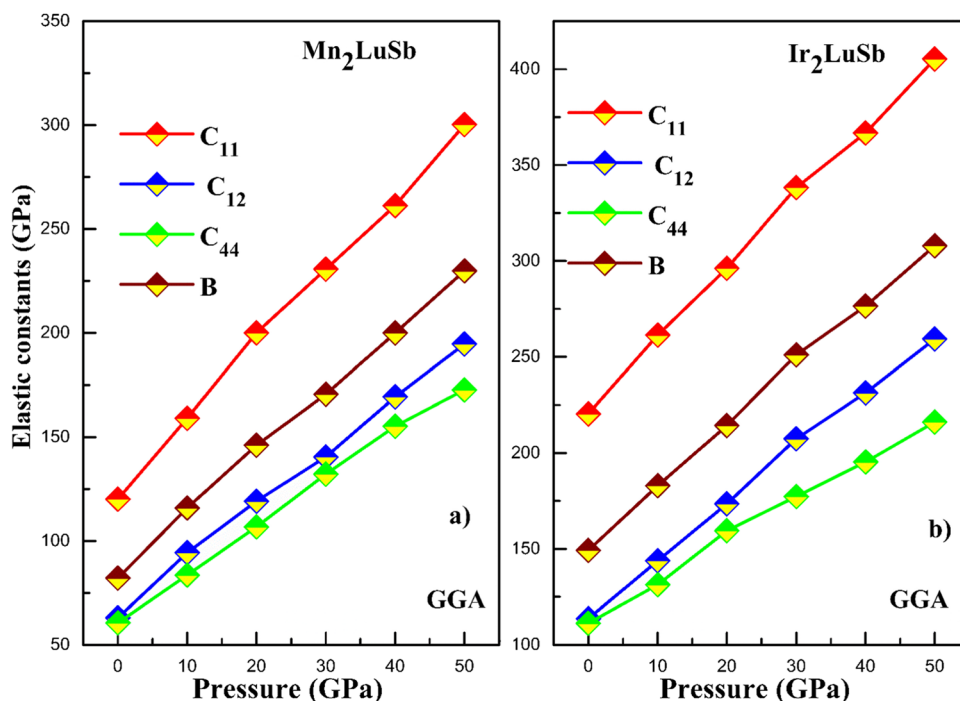
if the Poisson's ratio belongs to 0–0.5, the forces are considered central [77]. The values of Poisson's ratio recorded from our calculations are 0.26 for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and 0.34 for  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ . These results show the good plasticity of the two compounds. The Young's modulus ( $E$ ) describes the materials response to linear strain and a large value of  $E$  implies the stiffness of the material. A higher  $E$  value for a material indicates that it is more rigid. The values obtained for Young's modulus ( $E$ ) are 108.41 GPa for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and 209.79 GPa for  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ . We have concluded that  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compound is the most rigid.

In Figs. 2a and 2b, we have shown the variation of elastic constants  $C_{11}$ ,  $C_{12}$ ,  $C_{44}$  and bulk modulus  $B$  for the compounds  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  in the pressure range, 0–50 GPa. From these illustrations, it can be confirmed that the full-Heusler  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  in this pressure interval meet the stability criteria. In Figs. 3a and 3b, the variation of the Poisson's ratio of the anisotropy coefficient and the  $B/G$  ratio has been illustrated. From the results obtained, it can be confirmed that our compounds retain their ductile and anisotropic behavior over this pressure, 0–50 GPa. The study of the mechanical properties has revealed that the full-Heusler  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  are energetically and chemically stable over 0–50 GPa.

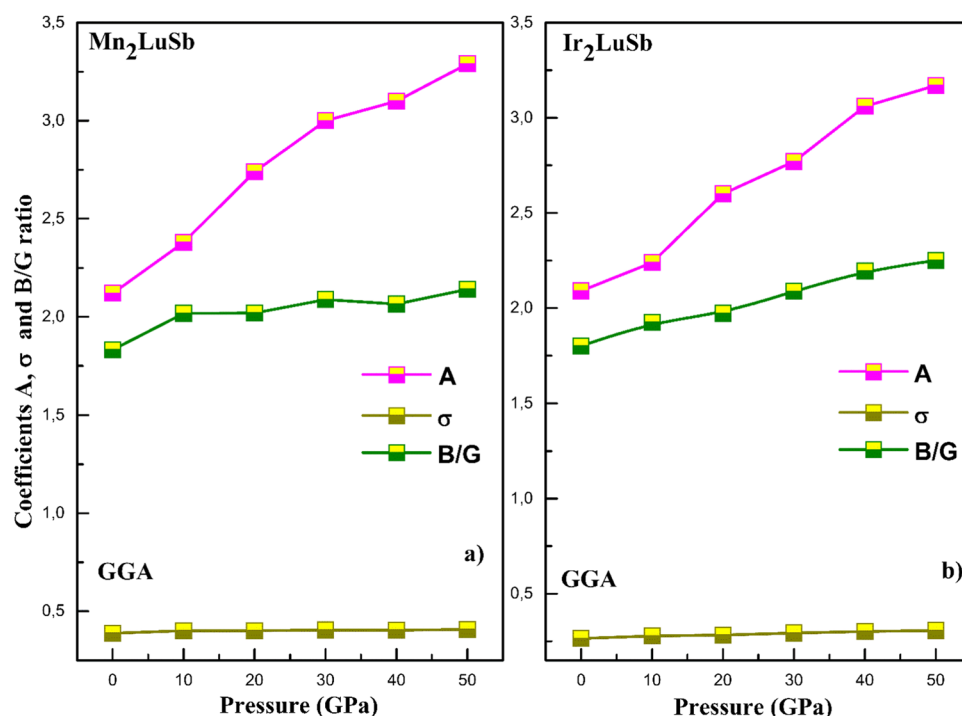
### 3.3 Electronic properties

To understand the electronic properties of  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds, we have calculated the spin-polarized band structures, total density of states (TDOS), and partial

**Fig. 2** Pressure dependence of the elastic constants ( $C_{11}$ ,  $C_{12}$ , and  $C_{44}$ ) and bulk modulus  $B$  for **a**  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and **b**  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds in (GPa) using GGA approximation



**Fig. 3** Pressure dependence of coefficients  $A$ ,  $\sigma$ , and  $B/G$  for **a**  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and **b**  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds using GGA approximation



density of states (PDOS), at equilibrium lattice parameter, using GGA and GGA + U approaches.

### 3.3.1 Band structure

We have explored the electronic band structure calculations in order to explain the electronic nature of  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds. The band structure for our compounds along the high symmetry direction of the first Brillouin zone is presented in Figs. 4 and 5. With GGA approximation, Figs. 4a and 5c show that in minority spin channel and the majority spin channel, the states have an intersection between the valence and conduction levels with the Fermi level ( $E_F$ ). We have concluded that the majority spin bands and minority spin bands are strongly metallic. This feature has permitted us to conclude that  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds are metallic (FM).

With GGA + U approximation, the presentations of band structure for the compounds are shown in Figs. 4b and 5d with the two particulars  $U$ :  $U_{\text{Mn}} = 0.313$  eV for the compound  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $U_{\text{Ir}} = 0.939$  eV for the compound  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ . For these values of  $U_{\text{Mn}}$  and  $U_{\text{Ir}}$ , the valence and conduction bands, the ( $E_F$ ) preserves the metallic nature FM of the  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds.

### 3.3.2 Density of states

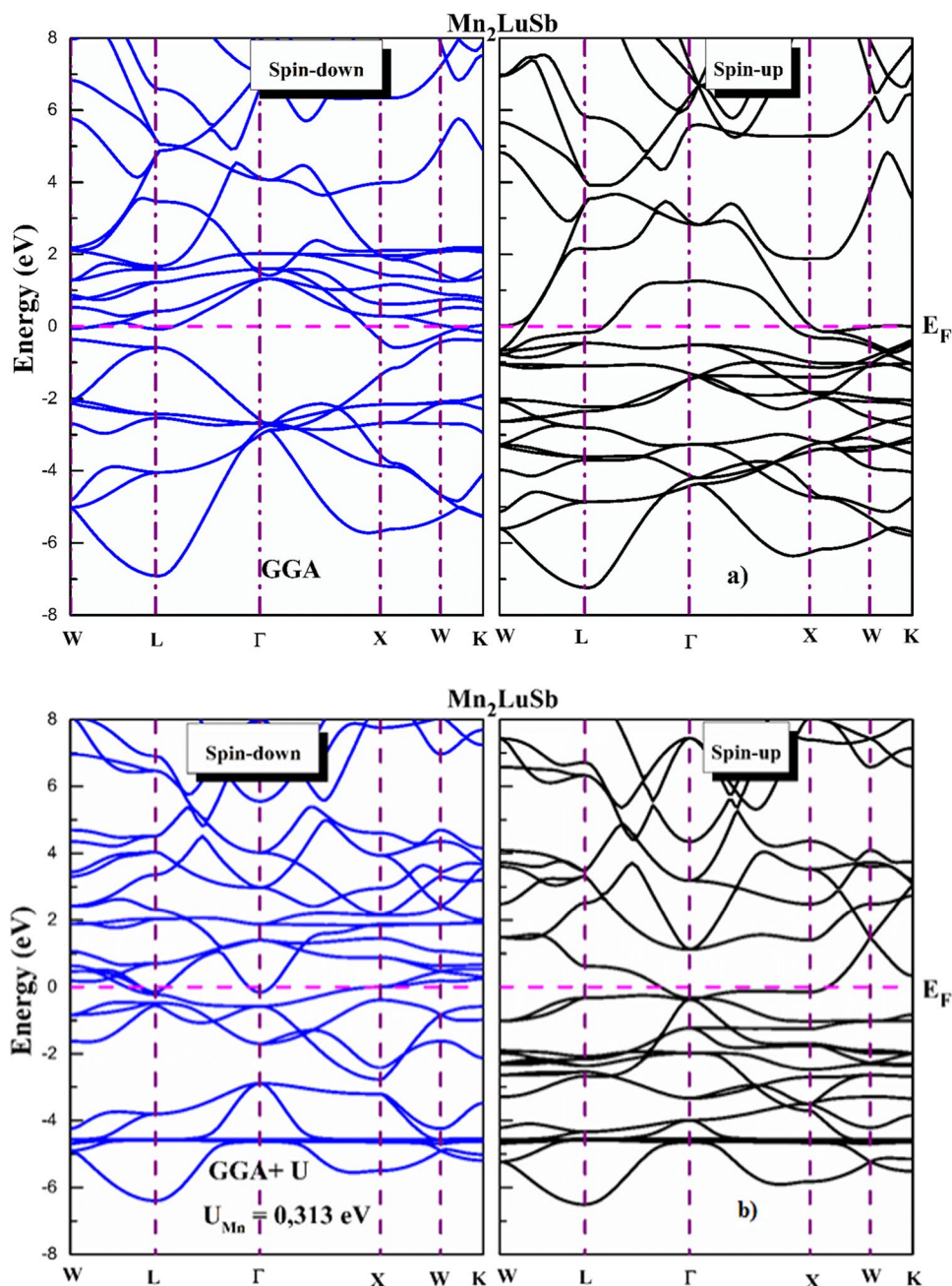
We have calculated the total density of states (TDOS) and partial density of states (PDOS) using GGA and GGA + U with  $U_{\text{Mn}} = 0.313$  eV for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $U_{\text{Ir}} = 0.939$  eV

for  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ . The (TDOS) and (PDOS) for  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds are illustrated in Figs. 6 and 7. The superior parts of the curves Figs. 6 and 7 represent the majority spin densities, while the inferior of the curve shows the minority spin densities.

For  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  within GGA and GGA + U, (TDOS) of majority spin and minority spin are strongly metallic and these confirm metallic FM behavior. The representation of (PDOS) for each compound and each approximation will allow us to identify the origin of the different peaks that appear in (TDOS) for the minority and majority spin states. In what follows, we will give a description of the arrangement of the different peaks as well as their origin.

For the compound  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  Fig. 6a, using the GGA approximation, several acute peaks are obtained in the valence band of the majority spin. In the low energy, an acute peak is detected at the point  $-4.54$  eV; this peak is due to a hybridization between the states Mn-3d, Lu-5d, and Sb-5p. In the region located in  $-3.30$  to  $-1.33$  eV, several acute peaks are present formed subsequent, of hybridization between Mn-3d and Lu-5d states. A sharp peak appears in the region surrounding the ( $E_F$ ) at the point  $-0.86$  eV, one sharp peak appears following a hybridization between Mn-3d and Sb-5p states. In the conduction band, there is an appearance of a region in the zone  $0.59$ – $8$  eV. This region is slightly flattened and topped with a few slightly sharp peaks due to hybridization between Lu-5d and Sb-5p states. In the valence band of the minority spin, we have detected an acute peak at the point  $-4.54$  V due to hybridization between Lu-5d and Sb-5p states. In the area  $-2.5$  to  $1.43$  eV,

**Fig. 4** The band structures of the full- Heusler compound  $Mn_2LuSb$  with **a** GGA and **b** with GGA + U, for the spin-up and spin-down electrons



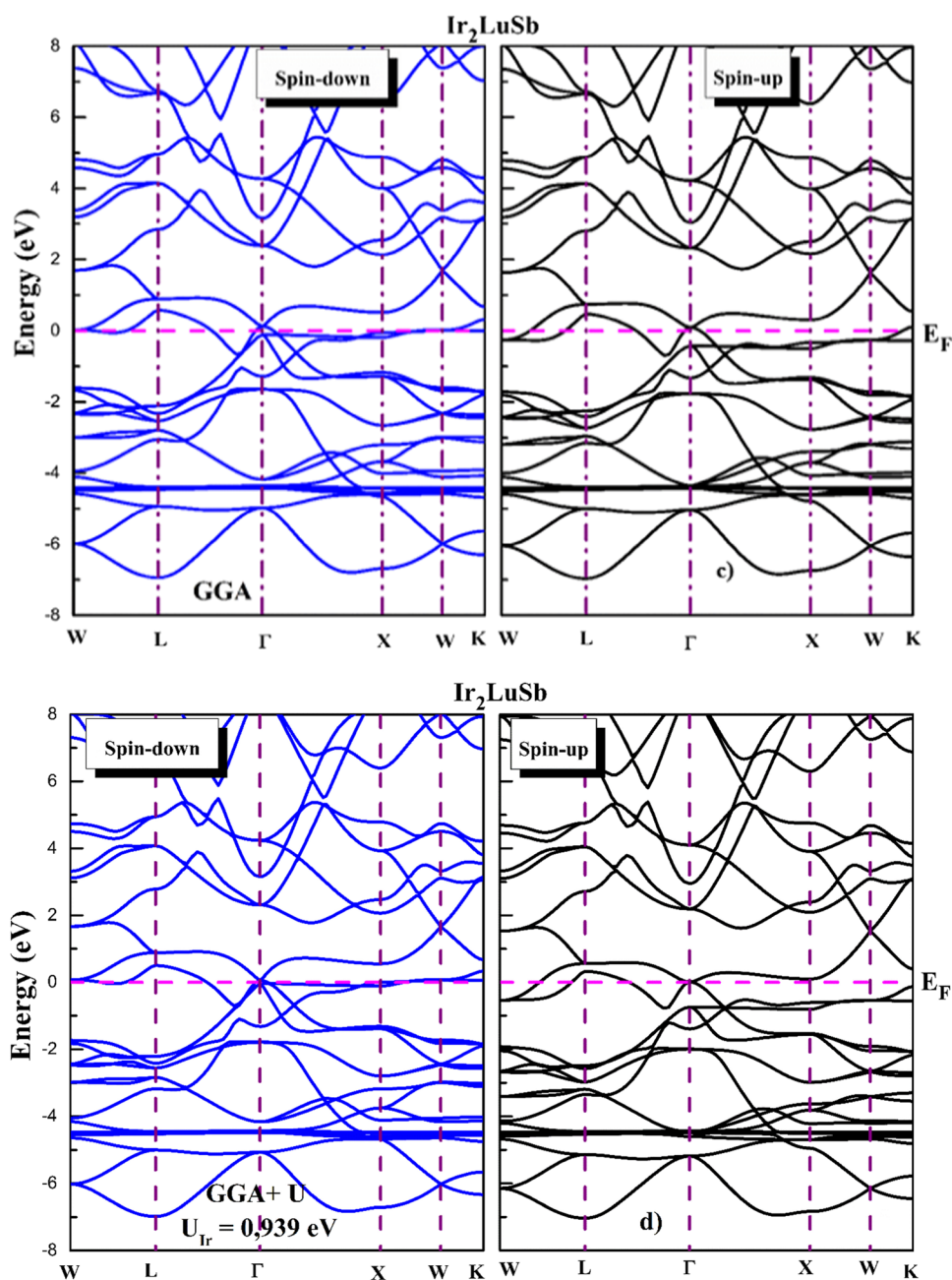
a region limiting to the top of valence band and bottom of conduction band, several peaks are detected around the ( $E_F$ ). They are due to a hybridization between Mn-3d and Lu-5d states. Hybridization between Mn-3d, Lu-5d, and Sb-5p states is at the origin of the acute peak detected at the point 1.82 eV and of the peaks occupying the region 2.75–5.38 eV of the conduction band. With the GGA + U approximation, the curve at Fig. 6b illustrates the (PDOS) of Mn-3d; we see the displacement of various sharp peaks of the valence band for the majority spin states towards low energies and the peaks of the conduction band of minority spins towards high energies. This new arrangement appears on the (TDOS); all

the peaks to which there is a contribution of the Mn-3d states are moved far from the ( $E_F$ ). The ( $E_F$ ) is occupied by Lu-5d and Sb-5p states for majority and minority spin.

For  $Ir_2LuSb$  compound, with the GGA approximation, it is observed that the ( $E_F$ ) is occupied for the majority and minority spins. A description of (TDOS) and (PDOS) through the Fig. 7c will elucidate the arrangement and origin of the different peaks. For the majority spins, a sharp peak is detected at  $-4.42$  eV point and another less sharp is located at  $-0.26$  eV point. These two peaks originate from a hybridization between Ir-5d, Lu-5d, and Sb-5p



**Fig. 5** The band structures of the full- Heusler compound  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  with **c** GGA and **d** with GGA + U, for the spin-up and spin-down electrons

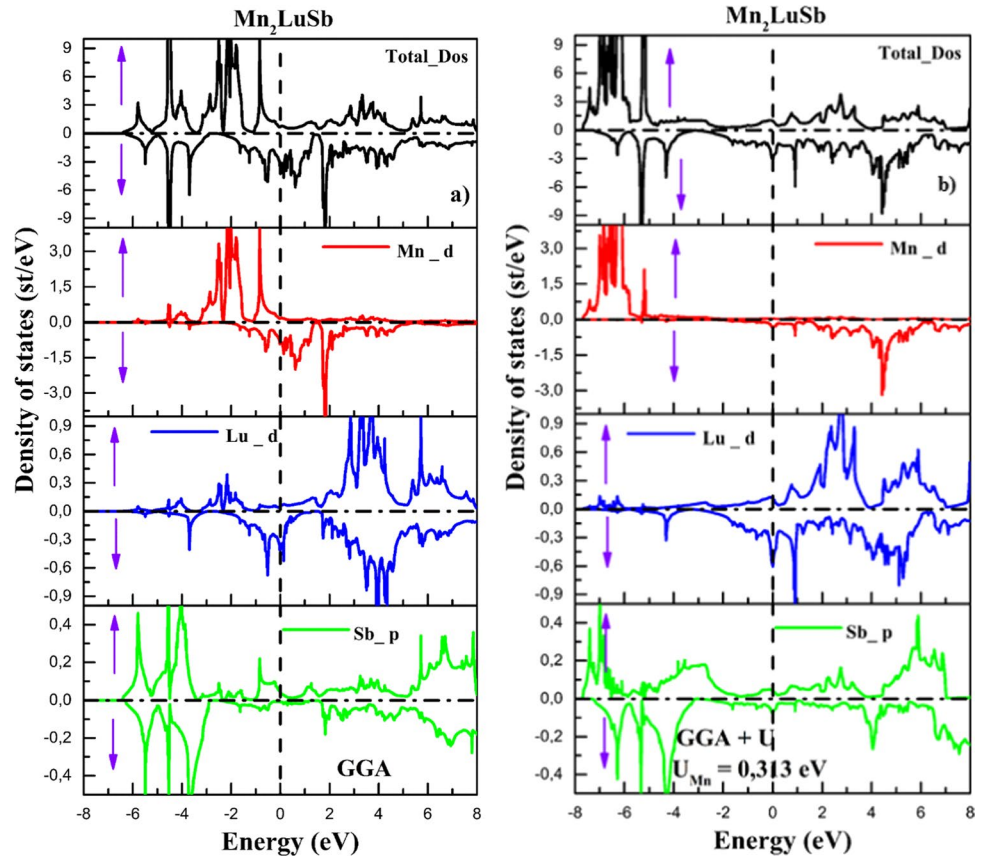


states. In the region included in  $-6.96$  to  $-1.06$  eV, we note the presence of Ir-5d, Lu-5d, and Sb-5p states. The ( $E_F$ ) is also occupied by these three electronic states. Over the entire conduction band, there is an electronic contribution of Ir-5d, Lu-5d, and Sb-5p states. With the GGA + U approximation (Fig. 7d),  $U_{\text{Ir}} = 0.939$  eV; acute peaks from Ir-5d states occupying the ( $E_F$ ) are matched against the low and high energies of the valence and conduction bands. The occupation of the ( $E_F$ ) is made by Lu-5d and Sb-5p thus always giving the metallic behavior (FM) to the compound  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$ .

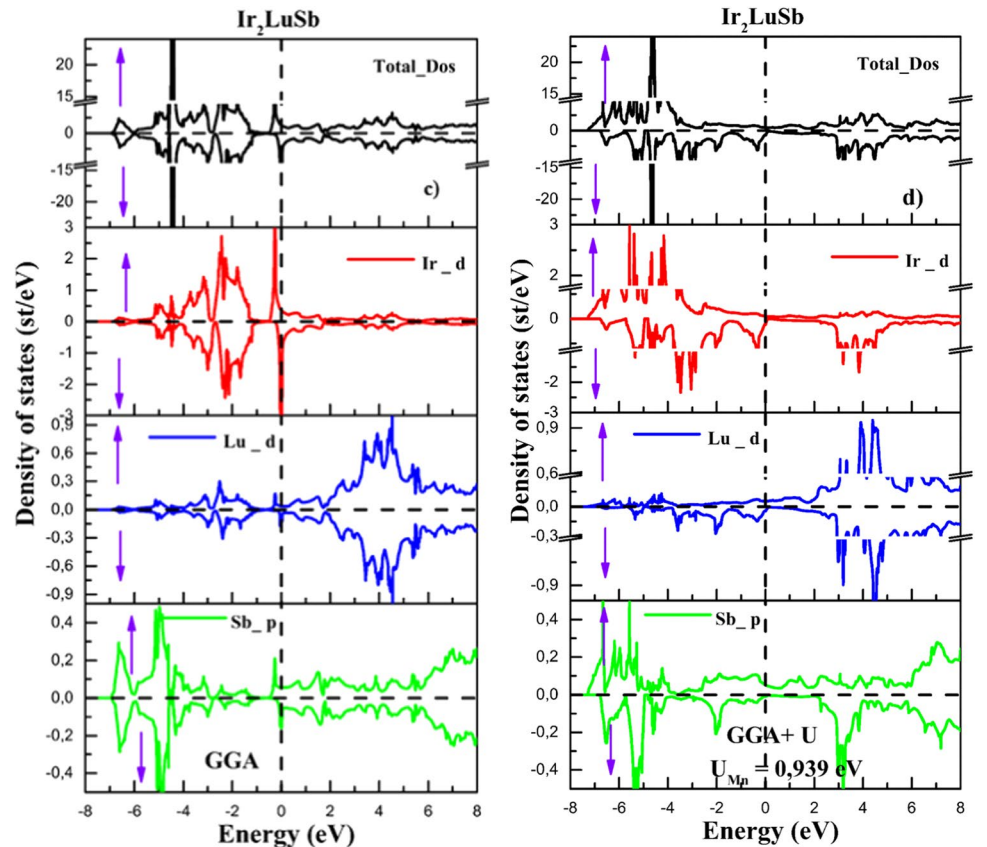
### 3.4 Magnetic and spin polarization properties

With the help of GGA approximation, the magnetic properties of  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  are determined. The results obtained for the total, partial spin magnetic moments and interstitial moment in the spherical region for full-Heusler  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds at equilibrium lattice parameters with GGA and GGA + U approximations are shown in Table 3. With GGA approximation, our calculations show the magnetic moment of full-Heusler  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds. We have noted different values of partial spin magnetic moments and interstitial moment in

**Fig. 6** Spin-polarized total and partial densities of states (TDOS) and (PDOS) of  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  full-Heusler compound with **a** GGA and with **b** GGA + U. The Fermi level is set at zero energy



**Fig. 7** Spin-polarized total and partial densities of states (TDOS) and (PDOS) of  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  full-Heusler compound with **c** GGA and with **d** GGA + U. The Fermi level is set at zero energy



**Table 3** Total and local magnetic moments (in Bohr magneton  $\mu_B$  units) with  $XA$  type structure, FM states for full-Heusler  $Mn_2LuSb$  and  $Ir_2LuSb$  in cubic  $AlCu_2Mn$ -type structure with GGA approximation and GGA +  $U$  approximations

	$Mn_2LuSb$								
	GGA	GGA + $U$							
		0.313	1	2	3	4	5	6	7
$\mu_{tot}$	5.861	6.003	6.273	6.585	6.675	6.859	7.080	7.347	7.586
$\mu_{Mn}$	2.923	3.007	3.176	3.595	3.5158	3.660	3.800	3.924	4.019
$\mu_{Lu}$	-0.197	-0.204	-0.223	-0.262	-0.301	-0.336	-0.360	-0.370	-0.363
$\mu_{Sb}$	-0.023	-0.022	-0.031	-0.064	-0.057	-0.063	-0.064	-0.060	-0.060
$\mu_{int}$	0.235	0.215	0.176	-0.279	0.002	-0.063	-0.096	-0.072	-0.029
	$Ir_2LuSb$								
	GGA	GGA + $U$							
		0.939	1	2	3	4	5	6	7
$\mu_{tot}$	0.526	1.001	1.021	1.492	1.756	1.829	1.869	1.896	1.915
$\mu_{Ir}$	0.256	0.483	0.496	0.752	0.879	0.950	1.011	1.071	1.127
$\mu_{Lu}$	-0.007	-0.014	-0.015	-0.030	-0.038	-0.055	-0.075	-0.096	-0.116
$\mu_{Sb}$	0.014	0.032	0.032	0.040	0.061	0.062	0.058	0.052	0.043
$\mu_{int}$	0.007	0.017	0.014	-0.022	-0.026	-0.078	-0.137	-0.202	-0.265

Table 3. We have found for  $Mn_2LuSb$  the value of 2.923  $\mu_B$  for Mn, -0.197  $\mu_B$  for Lu, -0.023  $\mu_B$  for Sb, and 0.235  $\mu_B$  in the interstitial region, the total magnetic moment is estimated at 5.861  $\mu_B$ . For  $Ir_2LuSb$ , the value of 0.256  $\mu_B$  for Ir, -0.007  $\mu_B$  for Lu, 0.014  $\mu_B$  for Sb, and 0.014  $\mu_B$  in the interstitial region the total magnetic moment is equal to 0.526  $\mu_B$ . Our compounds have (FM) metallic behavior.

The total magnetic moment of the compound  $Mn_2LuSb$  is much greater than that of  $Ir_2LuSb$ . The magnetic moment for the compounds is located mainly around the transition elements Mn and Ir. The use of the GGA +  $U$  approximation will allow us to determine the effect of the treatment of the bonds strongly correlated by the Hubbard potential of the  $d$  levels on the magnetic properties. The following values are used:  $U_{Mn} = U_{Ir} = 1$  eV, 2 eV, 3 eV..., 7 eV to deal with the strong correlations due to the Mn and Ir atoms. In Table 3, the results obtained for the total and partial magnetic moments have been listed for each material. According to these findings, we note the growth of the total and partial magnetic moments as a function of the increasing values of  $U$ . From Fig. 8a, representing variation of total magnetic moment for  $Mn_2LuSb$  compound, the growth of the total magnetic moment as a function of potential  $U$  is linear. The total magnetic moment passes from the value  $M_{tot} = 5,861 \mu_B$  for  $U_{Mn} = 0$  eV to the value  $M_{tot} = 7,586 \mu_B$  for  $U_{Mn} = 7$  eV. For the value  $U = 0.313$  eV, an integer value of the total magnetic moment  $M_{tot} = 6 \mu_B$  is recorded. From Table 3, the same nature of variation is observed for the partial magnetic moment of the atom Mn. The variation of the partial magnetic moments of Lu, Sb and in interstitial region is constant for the compound  $Mn_2LuSb$ .

For  $Ir_2LuSb$  compound as shown in Fig. 8b, the growth of the total magnetic moment as a function of the potential

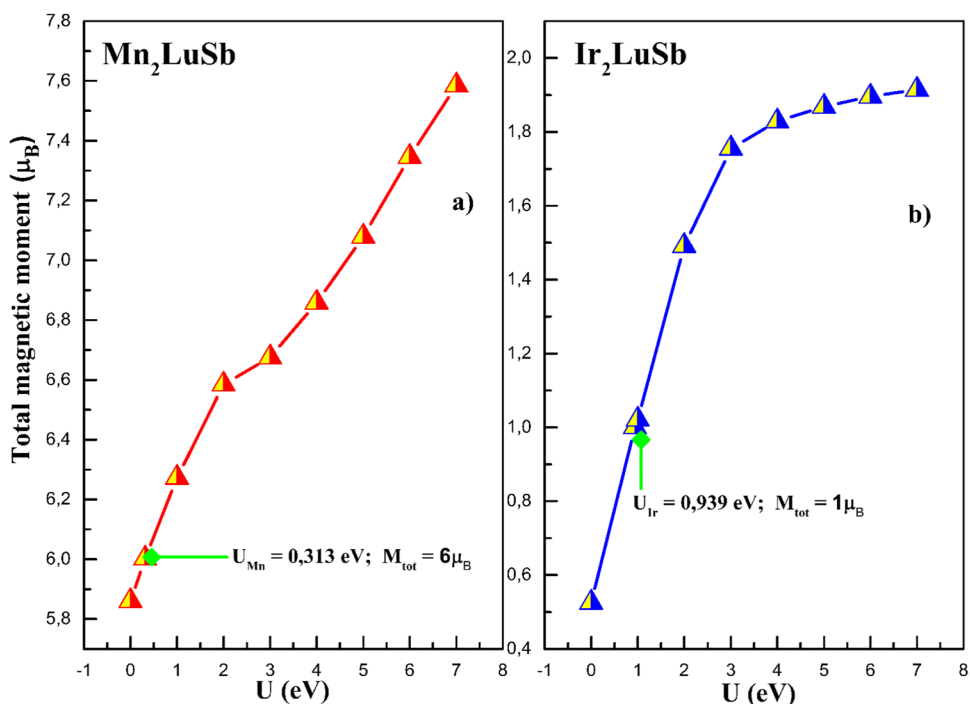
$U$  occurs rapidly in 0–3 eV. For values of  $U$  greater than 3 eV, the growth of  $M_{tot}$  is slower and tends towards 2  $\mu_B$ . For  $U_{Ir} = 0.939$  eV, we have recorded an integer value for the total magnetic moment  $M_{tot} = 1 \mu_B$ . A similar variation of the total magnetic moment is recorded from Table 3 for the Ir atom. The total magnetic moment passes from the value  $M_{tot} = 0.526 \mu_B$  for  $U_{Ir} = 0$  eV to the value  $M_{tot} = 1.915 \mu_B$  for  $U_{Ir} = 7$  eV. The variation of the partial magnetic moments of Lu, Sb and in interstitial region is constant for the compound  $Ir_2LuSb$ . The application of the potential  $U$  increases, while the total magnetic moment and partial magnetic moment are around the transition element.

The spin polarization ( $P$ ) at the ( $E_F$ ) is linked to the spin-dependent (DOS) via [78]

$$P = \frac{\rho \uparrow (E_F) - \rho \downarrow (E_F)}{\rho \uparrow (E_F) + \rho \downarrow (E_F)} \quad (11)$$

where  $\rho \uparrow (E_F)$  and  $\rho \downarrow (E_F)$  are the values of majority and minority (TDOS) at ( $E_F$ ). Our calculated values are displayed in Table 4. At equilibrium parameter and with  $U = 0$  eV, we have noted  $P = 65.04\%$  for  $Mn_2LuSb$  and  $P = 74.46\%$  for  $Ir_2LuSb$ . In Figs. 9a and 9b, we have shown the variation of spin polarization  $P$  as a function of the potential  $U$  for the  $Mn_2LuSb$  and  $Ir_2LuSb$  compounds. From the curve Fig. 9a representing  $Mn_2LuSb$ , the polarization decreases according to the increasing values of the potential  $U$ ; it reaches its minimum for  $U = 5$  eV or  $P = 33.83\%$  then increases with increasing of  $U$ . It can be seen from Fig. 9b, representing  $Ir_2LuSb$ , there is a growth of  $P$  in 0–3 eV. For the mentioned values, there is a decreasing in  $P$ . At the point  $U = 3$  eV, we have recorded a minimum of  $P$  corresponding to 34.72%. Beyond  $U = 3$  eV, there is a rapid growth of  $P$

**Fig. 8** Total magnetic moment dependence of Hubbard potential for **a**  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and **b**  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds



**Table 4** Spin polarization ratio for full-Heusler  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  in cubic  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$ -type structure with GGA approximation and GGA + U approximations

Material	Study	Spin polarization		
		$\rho\uparrow(E_F)$	$\rho\downarrow(E_F)$	$P\%$
$\text{Mn}_2\text{LuSb}$	GGA	0.68011	3.20455	64.99%
	GGA + U $U_{\text{Mn}} = 0.313$ eV	0.67625	2.77757	60.84%
$\text{Ir}_2\text{LuSb}$	GGA	1.27108	8.58649	74.21%
	GGA + U $U_{\text{Ir}} = 0.939$ eV	0.90137	6.89473	76.876%

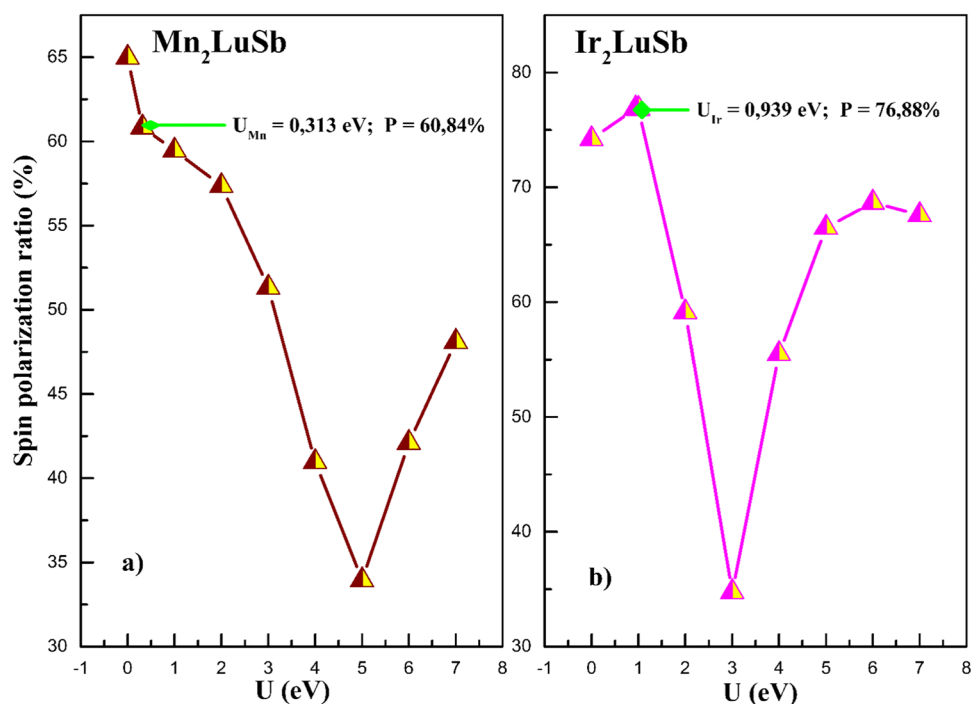
which begins to stabilize and become constant from 5 eV. For the two values of  $U$  giving an integer total magnetic moment for the compounds, we have record (i) for the compound  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$   $P = 60.84\%$  (ii) for the compound  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$   $P = 76.88\%$ .

## 4 Conclusions

In this work, we have studied the structural, elastic, electronic, and magnetic properties of  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  full-Heusler compounds, by employing the density functional theory based on full-potential linearized augmented plane-wave (FP-LAPW) method within GGA and GGA + U approximations. The study of the structural properties of the  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds has shown that they are stable in the cubic regular structure  $\text{AlCu}_2\text{Mn}$  with (FM) state. The calculation of the elastic constants has revealed that our compounds obey to the stability criteria; they are anisotropic and ductile in nature. The mechanical stability of  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  remains verified in the pressure range between 0–50 GPa. The use of GGA + U approximation has shown that the treatment of energy states strongly correlated by the Hubbard potential considerably affects the magnetic and electronic properties. The total and partial magnetic moments at which the Hubbard potential is applied are proportional.  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds retain their metallic (FM) behavior within the GGA and GGA + U approximations. The variation of Hubbard potential with the same conditions of stability makes it possible to obtain materials having an integer total magnetic moment, which can be a candidate for spintronics applications. It is expected that this work is to contribute for future research to discover new materials with new technological properties.



**Fig. 9** Spin polarization ratio dependence of Hubbard potential for **a**  $\text{Mn}_2\text{LuSb}$  and **b**  $\text{Ir}_2\text{LuSb}$  compounds



## Declarations

**Conflict of interest** The authors declare no competing interests.

## References

- Manna K., Muechler L., Kao T. H., Stinshoff R., Zhang Y., Gooth J., Felser C. (2018). From colossal to zero: controlling the anomalous hall effect in magnetic Heusler compounds via berry curvature design. *Physical Review X*, 8(4). <https://doi.org/10.1103/physrevx.8.041045>
- Noky J., Zhang Y., Gooth J., Felser C., Sun Y. (2020). Giant anomalous Hall and Nernst effect in magnetic cubic Heusler compounds. *Npj Computational Materials*, 6(1). <https://doi.org/10.1038/s.41524.020.0342.5>
- F. Serrano-Sánchez, T. Luo, J. Yu, W. Xie, C. Le, G.F.C. Auffermann, Thermoelectric properties of n-type half-Heusler  $\text{NbCoSn}$  with heavy-element Pt substitution. *Journal of Materials Chemistry A* (2020). <https://doi.org/10.1039/d.0ta04644b>
- S. Tabassam, A.H. Reshak, G. Murtaza, S. Muhammad, A. Laref, M. Masood Yousaf, M.A. Bakri, A.M. Bila, J.  $\text{Co}_2\text{YZ}$  (Y = Cr, Nb, Ta, V and Z = Al, Ga) Heusler alloys under the effect of pressure and strain. *J. Mol. Graph. Model.* **104**, 107841 (2021). <https://doi.org/10.1016/j.jmgm.2021.107841>
- A. Abdullah, M. Husain, N. Rahman, R. Khan, Z. Iqbal, S. Zulfiqar, M. Sohail, M. Umer, G. Murtaza, S. Naz Khan, A. Khan, A.H. Reshak, Computational investigation of structural, magnetic, elastic, and electronic properties of Half-Heusler  $\text{ScVX}$  (X = Si, Ge, Sn, and Pb) compounds *Eur. Phys. J. Plus* **136**, 1176 (2021). <https://doi.org/10.1140/epjp/s13360-021-02175-4>
- Boumia L, Dahmane F, Doumi B, Rai DP, Khandy S A, Khachai H, Meradji H, Reshak A H, Khenata R (2019) Structural, electronic and magnetic properties of new full Heusler alloys  $\text{Rh}_2\text{CrZ}$  (Z=Al, Ga, In): First-principles calculations. *Chinese Journal of Physics*. <https://doi.org/10.1016/j.cjph.2019.04.002>
- A.H. Reshak, Transport properties of Co-based Heusler compounds  $\text{Co}_2\text{VAI}$  and  $\text{Co}_2\text{VGa}$ : spin-polarized DFT+U. *RSC Adv.* **6**(59), 54001–54012 (2016). <https://doi.org/10.1039/c6ra10226c>
- M. Berrahal, A. Bentouaf, H. Rached, R. Mebsout, B. Aissa, Investigation of Ruthenium based Full-Heusler compound for thermic, spintronics and thermoelectric applications: DFT computation. *Mater. Sci. Semicond. Process.* **134**, 106047 (2021). <https://doi.org/10.1016/j.mssp.2021.106047>
- Aull, T., Şaşıoğlu, E., Maznichenko, I. V., Ostanin, S., Ernst, A., Mertig, I., Galanakis, I. (2019). Abinitio design of quaternary Heusler compounds for reconfigurable magnetic tunnel diodes and transistors. *Physical Review Materials*, 3(12). <https://doi.org/10.1103/physrevmaterials.3.1>
- H.L. Huang, J.C. Tung, H.T. Jeng, A first-principles study of rare earth quaternary Heusler compounds:  $\text{RXVZ}$  (R = Yb, Lu, X = Fe Co, Ni, Z = Al, Si). *Phys. Chem. Chem. Phys.* **23**(3), 2264–2274 (2021). <https://doi.org/10.1039/d.0cp05191h>
- B. Fadila, M. Ameri, D. Bensaid, M. Noureddine, I. Ameri, S. Mesbah, Y. Al-Douri, Structural, magnetic, electronic and mechanical properties of full-Heusler alloys  $\text{Co}_2\text{YAl}$  (Y = Fe, Ti): First principles calculations with different exchange-correlation potentials. *J. Magn. Magn. Mater.* **448**, 208–220 (2018). <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2017.06.048>
- Asma B, Belkharroubi F, Ibrahim, A., Lamia B, Mohammed A, Belkilali W, Al-Douri Y. (2021). Structural, mechanical, magnetic, electronic, and thermal investigations of  $\text{Ag}_2\text{YB}$  (Y = Nd, Sm, Gd) full-Heusler alloys. *Emergent Materials*. <https://doi.org/10.1007/s.42247-021-00257-8>
- H. Saib, S. Dergal, H. Rached, M. Dergal, Spin gapless semiconductor behavior in  $d^0-d$  half-Heusler  $\text{CrSbSr}$ : Potential candidate for spintronic application. *SPIN* (2020). <https://doi.org/10.1142/s.2010324720500253>
- T. Zerrouki, H. Rached, D. Rached, M. Caid, O. Cheref, M. Rabah, First-principles calculations to investigate structural stabilities, mechanical and optoelectronic properties of  $\text{NbCoSn}$

- and NbFeSb half-Heusler compounds. *Int. J. Quantum Chem.* (2020). <https://doi.org/10.1002/qua.26582>
15. Benidris M, Aziz Z, Khandy S A, Terkhi S, Ahmad M. A, Bouadjemi B, Laref A. (2021). Electronic structure, thermoelectric, mechanical and phonon properties of full-Heusler alloy (Fe<sub>2</sub>CrSb): first-principles study. *Bulletin of Materials Science*, 44(3). <https://doi.org/10.1007/s.12034.021.02496.1>
  16. S.J. Kim, W.H. Ryu, H.S. Oh, E.S. Park, A large reversible room temperature magneto-caloric effect in Ni-TM-Co-Mn-Sn (TM = Ti, V, Cr) meta-magnetic Heusler alloys. *J. Appl. Phys.* **123**(3), 033903 (2018). <https://doi.org/10.1063/1.5000147>
  17. C. Guillemard, S. Petit-Watelot, J.C. Rojas-Sánchez, J. Hohlfeld, J. Ghanbaja, A. Bataille, S. Andrieu, Polycrystalline Co<sub>2</sub>Mn-based Heusler thin films with high spin polarization and low magnetic damping. *Appl. Phys. Lett.* **115**(17), 172401 (2019). <https://doi.org/10.1063/1.5121614>
  18. Chadov S, Wu S C, Felser C., Galanakis I. (2017). Stability of Weyl points in magnetic half-metallic Heusler compounds. *Physical Review B*, 96(2). <https://doi.org/10.1103/physrevb.96.024435>
  19. Faleev S V, Ferrante Y, Jeong J, Samant M G, Jones B., Parkin, S S P (2017). Heusler compounds with perpendicular magnetic anisotropy and large tunneling magnetoresistance. *Physical Review Materials*, 1(2). <https://doi.org/10.1103/physrevmaterials.1>
  20. Gazi Yalcin Battal, Ground state properties and thermoelectric behavior of Ru<sub>2</sub>VZ (Z=Si, Ge, Sn) half-metallic ferromagnetic full-Heusler compounds. *J Magn Magn Mater* **408**(137), 146 (2016)  
[1016/j.jmmm.2016.02.064](https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2016.02.064)
  22. C. Wu, W. Zheng, W. Feng, W. Jiang, Band structures, magnetism, half-metallicity and elastic properties of full-Heusler alloy Cr<sub>2</sub>Vsb. *J. Phys. Soc. Jpn.* **89**, 064713 (2020). <https://doi.org/10.7566/jpsj.89.064713>
  23. M.K. Hussain, O.T. Hassan, A.M. Algubili, Investigations of the electronic and magnetic structures of Zr<sub>2</sub>NiZ (Z = Ga, In, B) Heusler compounds: first principles study. *J. Electron. Mater.* **65**12, 2 (2018). <https://doi.org/10.1007/s.11664.018.6512.2>
  24. S. Galehgirian, F. Ahmadian, First principles study on half-metallic properties of Heusler compounds Ti<sub>2</sub>VZ (Z=Al, Ga and In). *Solid State Commun.* **202**(52), 57 (2015). <https://doi.org/10.1016/j.ssc.2014.10.017>
  25. Hussain MK , Gao GY, Yao K-L, (2015) Half-metallic properties in the new Ti<sub>2</sub>NiB Heusler alloy, *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 28 (11) 3285 3291 <https://doi.org/10.1007/s10948-015-3149-8>
  26. F. Benaddi, F. Belkharroubi, N. Ramdani, M. Ameri, S. Haouari, I. Ameri, Y. Al-Douri, Electronic and magnetic investigation of half-metallic ferrimagnetic full-Heusler Mn<sub>2</sub>IrGe. *Emergent Materials* (2021). <https://doi.org/10.1007/s.42247.021.00231.4>
  27. W Yao J Zhou D Zeng H Wan W Ruan L Liu Y Wen 2020 Computational discovery of the novel half-metallic full-Heusler alloys Mn<sub>2</sub>LiAs and Mn<sub>2</sub>LiSb *J. Magn. Magn. Mater.* 166642 <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2020.166642>
  28. Patel P D, Pandya J. B, Shinde, S. M, Gupta S. D, Narayan S, Jha P K (2020). Investigation of Full-Heusler compound Mn<sub>2</sub>MgGe for magnetism, spintronics and thermoelectric applications: DFT study. *Computational Condensed Matter*, e00472. <https://doi.org/10.1016/j.cocom.2020.e00472>
  29. L. Hao, R. Khenata, X. Wang, T. Yang, Ab Initio study of the structural, electronic, magnetic, mechanical and thermodynamic properties of full-Heusler Mn<sub>2</sub>CoGa. *J. Electron. Mater.* (2019). <https://doi.org/10.1007/s.11664.019.07417.x>
  30. Guermit Y, Caid M, Rached D, Drief M, Rekab-Djabri H, Lantri T, Benkhetou N. (2021) Investigation of structural, elastic, electronic, magnetic and thermoelectric proprieties for Mn<sub>2</sub>RhZ (Z = Al, Si and Ge) full-Heusler alloys. *International Journal of Thermophysics*, 42(6). <https://doi.org/10.1007/s.10765.021.02841.w>
  31. Maizia A, Belkharroubi F, Bourdim M, Khelfaoui F, Azzi S, Amara K (2020) First-principles study of a half-metallic ferrimagnetic new full-Heusler Mn<sub>2</sub>OsGe alloy, *Journal SPIN* 10(4) 2050026.1 <https://doi.org/10.1142/S2010324720500265>
  32. R. Prakash, G. Kalpana, Prediction of structural, electronic and magnetic properties of full Heusler alloys Ir<sub>2</sub>YSi (Y = Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe Co, and Ni) via first-principles calculation. *AIP Adv.* **11**(1), 015042 (2021). <https://doi.org/10.1063/9.0000101>
  33. A. Candal, A study on magnetic, electronic, elastic and vibrational properties of Ir<sub>2</sub>MnAl Heusler alloy for spintronic applications. *Materials Research Express* (2019). <https://doi.org/10.1088/2053.1591/ab308b>
  34. G. Forozani, F. Karami, M. Moradi, Structural, electronic, magnetic, and optical properties of Ir<sub>2</sub>ScZ (Z = Si, Ge, Sn) full-Heusler compounds: a first-principles study. *J. Electron. Mater.* (2020). <https://doi.org/10.1007/s.11664.020.08308.2>
  35. Blaha P, Schwarz K, Sorantin P, Trickey SB, Full-potential linearized augmented plane wave programs for crystalline systems *Comput Phys Commun* 59 (2) 1990 399 415, [https://doi.org/10.1016/0010.4655\(90\)90187.6](https://doi.org/10.1016/0010.4655(90)90187.6)
  36. Hohenberg P, Kohn W, Inhomogeneous electron gas *Phys Rev* 136(3B) (1964) B864 B871, <https://doi.org/10.1103/PhysRev.136.B864>
  37. Hadji T, Khalfoun H, Rached H , Guermit Y, Azzouz-Rached A ,Rached D. (2020) , DFT study with different exchange-correlation potentials of physical properties of the new synthesized alkali-metal based Heusler alloy , *The European Physical Journal B* 93(1110204.5 <https://doi.org/10.1140/epjb/e2020.10204.5>
  38. M. Ram, A. Saxena, A.E. Aly, A. Shankar, Half-metallicity in new Heusler alloys Mn<sub>2</sub>ScZ (Z = Si, Ge, Sn). *RSC Adv.* **10**(13), 7661–7670 (2020). <https://doi.org/10.1039/c9ra09303f>
  39. Ouadha I, Rached H, Azzouz-Rached A, Reggad A, Rached D, Study of the structural, mechanical and thermodynamic properties of the new MAX phase compounds (Zr<sub>1-x</sub>Ti<sub>x</sub>)<sub>3</sub>AlC<sub>2</sub>. *Computational Condensed Matter* 23(2020) e00468.1, <https://doi.org/10.1016/j.cocom.2020.e00468>
  40. Rached H, Bendaoudia S, Rached D (2017) Investigation of iron-based double perovskite oxides on the magnetic phase stability, mechanical, electronic and optical properties via first-principles calculation, *Materials Chemistry and Physics* 193453–469 <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2017.03.006>
  41. Elahmar MH, Rached H, Rached D, Benalia S, Khenata R, Biskri ZE , Bin Omran S (2016), Structural stability, electronic structure and magnetic properties of the new hypothetical half-metallic ferromagnetic full-Heusler alloy CoNiMnSi , *Materials Science-Poland* 34(1) 85 93 <https://doi.org/10.1515/msp-2016-0011>
  42. Benkabou M , Rached H, Abdellaoui A, Rached D, Khenata R, Elahmar MH, Abidri B, Benkhetou N, Bin-Omran (2015) S, Electronic structure and magnetic properties of quaternary Heusler alloys CoRhMnZ (Z = Al, Ga, Ge and Si) via first-principle calculations, *Journal of Alloys and Compounds* 647 276 286 <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2015.05.273>
  43. Rached H, Elahmar MH, Rached D, Khenata R , Murtaza G, Bin Omran S, Ahmed WK, (2015) Structural , mechanical, electronic and magnetic properties of a new series of quaternary Heusler alloys CoFeMnZ (Z=Si, As, Sb): a first-principle study, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 393 165 174 <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2015.05.019>
  44. Rached H, Rached D, Khenata R, Abidri B, Rabah M, Benkhetou N, Omran SB, (2015) A first principle study of phase stability, electronic structure and magnetic properties for Co<sub>2-x</sub>Cr<sub>x</sub>MnAl Heusler alloys ,*Journal of Magnetism and Magnetic Materials*

379. 84–89 <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2014.12.013>
45. Perdew JP, Burke Kieron, Ernzerhof Matthias (1996) Generalized gradient approximation made simple, *Phys Rev Lett* 77(18) 3865–3868 <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.77.3865>
  46. Blaha P, Schwarz K, Madsen GKH, Kvasnicka D, Luitz J (2001) WIEN2k: an augmented plane wave local orbitals program for calculating crystal properties, Techn University at Wien Austria, <http://www.wien2k.at/>
  47. H.E. Saad, M M Elhag A., DFT study on the crystal, electronic and magnetic structures of tantalum based double perovskite oxides  $\text{Ba}_2\text{MTaO}_6$  (M = Cr, Mn, Fe) via GGA and GGA + U. *Results in Physics* 9(793), 805 (2018). <https://doi.org/10.1016/j.rinp.2018.03.055>
  48. S.A. Sofi, D.C. Gupta, Exploration of electronic structure, mechanical stability, magnetism, and thermophysical properties of  $\text{L}_{21}$  structured  $\text{Co}_2\text{XSb}$  (X = Sc and Ti) ferromagnets. *Int. J. Energy Res.* (2019). <https://doi.org/10.1002/er.5071>
  49. B. Merabet, A.J.H. Almaliky, A.H. Reshak, M.M. Ramli, J. Bila, Dielectric absorption correlated to ferromagnetic behavior in (Cr, Ni)-codoped 4H–SiC for microwave applications. *J. Mol. Struct.* 1248, 131462 (2022). <https://doi.org/10.1016/j.molstruc.2021.131462>
  50. H Yu H Huang AH Reshak S Auluck L Liu T Ma Y Zhang 2020 Coupling ferroelectric polarization and anisotropic charge migration for enhanced CO2 photoreduction Appl. Catal. B 119709 <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2020.119709>
  51. R. Ullah, A.H. Reshak, M. Azmat Ali, A. Khan, G. MurtazaAL-Anazy M, Althib H, Flemban T H., Pressure-dependent elastomechanical stability and thermoelectric properties of  $\text{MYbF}_3$  (M = Rb, Cs) materials for renewable energy. *Int. J. Energy Res.* 45(6), 8711–8723 (2021). <https://doi.org/10.1002/er.6408>
  52. D.M. Hoat, S. Amirian, H. Alborznia, A. Laref, A.H. Reshak, M. Naseri, Strain effect on the electronic and optical properties of 2D Tetrahexcarbon: a DFT-based study. *Indian J. Phys.* (2021). <https://doi.org/10.1007/s12648-020-01913-1>
  53. M. Husain, N. Rahman, A.H. Reshak, H.A. Zulfiqar, S. Ali, S. A. Laref A, A. M. Mustafa Al Bakri A M, Bila J, Insight into the physical properties of the inter-metallic titanium-based binary compounds *Eur. Phys. J. Plus* 136, 624 (2021). <https://doi.org/10.1140/epjp/s13360-021-01590-x>
  54. Shakil M., Arshad H., Zafar M., Rizwan M., Gillani S. S. A., Ahmed S. (2020). First-principles computation of new series of quaternary Heusler alloys  $\text{CoScCrZ}$  (Z = Al, Ga, Ge, In): a study of structural, magnetic, elastic and thermal response for spintronic devices. *Molecular Physics*, e1789770. <https://doi.org/10.1080/00268976.2020.1789770>
  55. M. Zafar, S. Amjad, M. Shakil, S.S.A. Gillani, H. Arshad, M.B. Tahir, N.H. Tariq, Determination of structural, mechanical, thermal and magnetic properties of Cr based new quaternary Heusler alloys with GGA and GGA+U. *Phys. Scr.* 96, 035701 (2021). <https://doi.org/10.1088/1402-4896/abd443>
  56. M. Shakil, H. Sadia, I. Zeba, S.S.A. Gillani, S. Ahmad, M. Zafar, First-principles study of structural, mechanical, thermal, electronic and magnetic properties of highly spin-polarized quaternary Heusler alloy  $\text{CoYVSn}$ . *Solid State Commun.* 325, 114157 (2021). <https://doi.org/10.1016/j.ssc.2020.114157>
  57. MI Khan H Arshad M Rizwan SSA Gillani M Zafar S Ahmed M Shakil 2019 Investigation of structural, electronic, magnetic and mechanical properties of a new series of equiatomic quaternary Heusler alloys  $\text{CoYCrZ}$  (Z = Si, Ge, Ga, Al): A DFT study *J. Alloy. Compd.* 152964 <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2019.152964>
  58. Murnaghan FD, The compressibility of media under extreme pressures, *Proc Natl Acad Sci* 30(9) (1944) 244–247 <http://dx.doi.org/10.1073/pnas.30.9.244>
  59. F. Belkharroubi, F. Khelifaoui, K. Amara, N. Marbouh, M. Ameri, Y. Si Abderrahmane, Robust half metallicity state with the hydrostatic and tetragonal distortion for a new quaternary Heusler  $\text{ZrTiRhGa}$ : FP-LAPW calculations. *Physica B* (2018). <https://doi.org/10.1016/j.physb.2018.12.037>
  60. D.M. Hoat, M. Naseri, N.T.T. Binh, T.V. Vu, J.F. Rivas-Silva, M.M. Obeid, G.H. Coccoletzi, Strain-tunable electronic, optical and thermoelectric properties of BP monolayer investigated by FP-LAPW calculations. *Physica B* 603, 412757 (2021). <https://doi.org/10.1016/j.physb.2020.412757>
  61. N. Kervan, S. Kervan, O. Canko, M. Atiş, F. Taşkın, Half-metallic ferrimagnetism in the  $\text{Mn}_2\text{NbAl}$  Full-Heusler compound: a first-principles study. *J. Supercond. Novel Magn.* 29(1), 187–192 (2015). <https://doi.org/10.1007/s10948-015-3228-x>
  62. M.J. Mehl, Pressure dependence of the elastic moduli in aluminum-rich Al-Li compounds. *Phys Rev B* 47(2493), 2500 (1993). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.47.2493>
  63. E. Schreiber, O.L. Anderson, N. Soga, *Elastic constants and their measurements* (McGraw-Hill, New York, 1973)
  64. M. Jamal, M. Bilal, A. Iftikhar, S.I. Jalali-Asadabadi, Relast package *Journal of Alloys and Compounds* 735, 569–579 (2018). <https://doi.org/10.1007/s12648-020-01913-1>
  65. D.C. Wallace, *Thermodynamics of Crystals*. *Acta Crystallographica Section A* 2, 582–583 (1973). <https://doi.org/10.1107/S056773947300149X>
  66. Born M, On the stability of crystal lattices. IV (1940) *Proc Cambridge Philos Soc* 36(04) 466–478 <https://doi.org/10.1017/S0305004100017515>
  67. Born M (1956) Huang K, *Dynamical Theory of Crystal Lattices*, *Acta Crystallographica*, 8(7) 444–444. <https://doi.org/10.1107/S0365110X5500279X>
  68. M. Born, K. Huang, *Dynamical theory of crystal lattices*. Clarendon press (1954). <https://doi.org/10.4236/oalib.1100648>
  69. H.C. Cheng, C.-F. Yu, W.H. Chen, First-principles density functional calculation of mechanical, thermodynamic and electronic properties of  $\text{CuIn}$  and  $\text{Cu}_2\text{In}$  crystals. *J. Alloy. Compd.* 546, 286–295 (2013). <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.08.077>
  70. Mayer B , Anton H , Bott E, Methfessel M, Sticht J, Harris J, Schmidt PC (2003) Ab-initio calculation of the elastic constants and thermal expansion coefficients of Laves phases, *Intermetallics* 11 00127–00129 <http://dx.doi.org/10.1002/andp.18892741206>
  71. R. Hill, The elastic behaviour of a crystalline aggregate. *Proc Phys Soc London, A* 65, 349–354 (1952). <https://doi.org/10.1002/zamm.19290090104>
  72. Ullah H, Kayani F S, Khenata R (2019). Insight into the mechanical, thermal, electronic and magnetic properties of cubic lanthanide built perovskites oxides  $\text{PrXO}_3$  (X=Al, Ga). *Journal of Materials Research Express*. <https://doi.org/10.1088/2053-1591/ab5903>
  73. S. Singh, R. Kumar, Ab-initio calculations of elastic constants and thermodynamic properties of  $\text{LuAuPb}$  and  $\text{YAuPb}$  half-Heusler compounds. *J. Alloy. Compd.* 722, 544–548 (2017). <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2017.06.131>
  74. J.F. Nye, *Propriétés physiques des matériaux*. Dunod 84, 335–341 (1961)
  75. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.08.077>
  76. Yalameha S, Vaez A (2019) Structural, electronic, elastic and thermodynamic properties of  $\text{Al}_{1-x}\text{Z}_x\text{Ni}$  (Z=Cr, V and x= 0, 0.125, 0.25) alloys: first-principle calculations *journal Computational Condensed Matter* <https://doi.org/10.1016/j.cocom.2019.e00415>
  77. Mayer B, Anton H, Bott E ,Methfessel , Sticht , Harris J, Schmidt PC (2003) Ab-initio calculation of the elastic constants and thermal expansion coefficients of Laves phases, *Intermetallics* 11 00127–00129 <http://dx.doi.org/10.1002/andp.18892741206>

78. Hill R, (1952) The elastic behaviour of a crystalline aggregate, Proc Phys Soc London, A 65 349–354 <http://dx.org/https://doi.org/10.1002/zamm.19290090104>
79. A.I. Popoola, A.Y. Odusote, O.E. Ayo-Ojo, Stability and the electronic structure of  $XB_2$  ( $X = Pt, Ir, Pd, Rh, Os$ ) diborides. Latv. J. Phys. Tech. Sci. **54**(4), 49–57 (2017). <https://doi.org/10.1515/lpts-2017-0026>
80. M. Belkhouane, S. Amari, A. Yakoubi, A. Tadjer, S. Méçabih, G. Murtaza, R. Khenata, First-principles study of the electronic and magnetic properties of  $Fe_2MnAl$ ,  $Fe_2MnSi$  and  $Fe_2MnSi_{0.5}Al_{0.5}$ . J. Magn. Magn. Mater. **377**, 211–214 (2015). <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2014.10.094>



## Résumé :

Nous rapportons dans cet thèse une étude sur les propriétés structurales, élastiques, électroniques, magnétiques des composés Full - Heusler  $X_2\text{LuSb}$  ( $X= \text{Mn}$  et  $\text{Ir}$ ) en utilisant les calculs de premier principe et en appliquant l'approximation du gradient généralisé Perdew, Burke et Ernzerhof GGA -PBE pour l'échange et la corrélation d'électrons. L'approximation GGA + U a également été utilisée pour déterminer l'effet de la correction Hubbard sur les propriétés magnétiques et électroniques. D'après les résultats obtenus pour les propriétés structurales, nos deux composés sont stables dans la structure régulière et les états ferromagnétiques. Les propriétés élastiques ont montré la conformité des constantes élastiques avec les critères de stabilité et la nature ductile des deux composés. Cette stabilité mécanique est conservée sur l'intervalle [0-50] GPa. L'utilisation des deux approximations GGA et GGA + U, a montré l'effet de la correction de Hubbard appliquée aux deux atomes Mn et Ir sur la variation de leur moment magnétique.

## Abstract:

In this thesis, we report a study on the structural, elastic, electronic, magnetic properties of Full - Heusler  $X_2\text{LuSb}$  compounds ( $X = \text{Mn}$  and  $\text{Ir}$ ) using first-principle calculations and applying the generalized gradient approximation Perdew, Burke and Ernzerhof GGA -PBE for electron exchange and correlation. The GGA + U approximation was also used to determine the effect of the Hubbard correction on magnetic and electronic properties. From the results obtained for structural properties, our two compounds are stable in regular structure and ferromagnetic states. The elastic properties showed the conformity of the elastic constants with the stability criteria and the ductile nature of the two compounds. This mechanical stability is preserved over the interval [0-50] GPa. The use of the two approximations GGA and GGA + U, showed the effect of the Hubbard correction applied to the two atoms Mn and Ir on the variation of their magnetic moment.

## ملخص

في هذه الرسالة ، قدمنا تقريراً عن دراسة الخصائص الهيكلية والمرنة والإلكترونية والمغناطيسية لمركبات Full Heusler  $X_2\text{LuSb}$  ( $X=\text{Mn}; \text{Ir}$ ) - باستخدام حسابات المبدأ الأول وتطبيق تقريب التدرج المعمم Perdew و Burke و Ernzerhof GGA -PBE للتبادل الإلكتروني والارتباط. تم استخدام تقريب GGA + U أيضاً لتحديد تأثير تصحيح Hubbard على الخصائص المغناطيسية والإلكترونية. من النتائج التي تم الحصول عليها للخصائص الهيكلية ، فإن مركبين لدينا مستقران في بنية منتظمة وحالات مغناطيسية حديدية. أظهرت الخصائص المرنة توافق الثوابت المرنة مع معايير الثبات وطبيعة الدكتايل للمركبين. يتم الحفاظ على هذا الاستقرار الميكانيكي خلال الفاصل الزمني [0-50] GPa. أظهر استخدام التقريبين GGA و GGA + U تأثير تصحيح Hubbard المطبق على الذرتين Mn و Ir على تباين عزمهما المغناطيسي.