



République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université 20 août 1955-Skikda

Faculté des Sciences

Département de Physique

Mémoire de Master

Filière : Physique

Spécialité : Rayonnement

Thème

Etude des propriétés optiques du Tellurure de Strontium SrTe

Présenté par :

Roumaissa RAHMOUNI

Soutenu le : 04/07/2022 devant le jury composé de :

Hayet BENZEROUK	MCB	Université de Skikda	Présidente
Fairouz CHOUIT	MCB	Université de Skikda	Rapporteuse
Asma BOUSSAHA	MCB	Université de Skikda	Examinatrice

Année Universitaire : 2021/2022

Dédicaces

*Grâce à mon "Dieu" Je dédie ce travail à
Les plus chères personnes dans ma vie :
Ma mère et mon père.*

Ma sœur

Mes frères

Toute ma famille

Toutes mes amies et collègues

*Tous ceux que
j'aime.*



Remerciements

*Tout d'abord, nous remercions **Allah** tout-puissant, qui nous a permis d'arriver là où nous sommes maintenant.*

*Nous remercions le Docteur supervisant ce mémoire, **Fairouz CHOUIT** parce qu'elle nous a présenté ce sujet intéressant et pour sa patience tout au long des jours de préparation du mémoire ses précieux conseil, et sa réponse à toutes nos questions liées au sujet, et nous exprimons également notre appréciation a tous les fonctionnaires et les enseignants du Département de physique de l'Université de Skikda qui nous ont fourni toutes les informations nécessaires tout au long de notre carrière universitaire.*

*Je remercie également **H. BENZEROUK** et **A. BOUSSAHA** enseignantes à l'université de Skikda d'avoir accepté d'examiner ce travail et de faire partie du jury.*

*Enfin, un grand merci à nos **Parents** pour tout le soutien tout au long du processus d'étude et la confiance qu'ils nous ont accordée.*

Et un grand merci aux personnes qui connaissent et nous ont soutenus afin de compléter ce travail de la meilleure des manières.

ملخص

تتضمن هذه الدراسة حساب مختلف الخصائص الفيزيائية للمركب الثنائي $SrTe$ وذلك بواسطة طريقة الأمواج المستوية خطيا $FP-LAPW$ والتي تركز على نظرية الكثافة الدالية DFT قمنا بحساب الخصائص البنيوية، الإلكترونية والضوئية من أجل ذلك تم استخدام تقريب التدرج العمومي $WC-GGA$.

النتائج المحصل عليها أظهرت تقارب معقول مع النتائج المتاحة المحصل عليها تجريبيا ونظريا.

الكلمات المفتاحية: نظرية دالة الكثافة الإلكترونية DFT ، مقارنة الأمواج المستوية المتزايدة خطيا $FP-LAPW$ ، الخصائص البنيوية الإلكترونية الضوئية

Résumé

Dans ce travail, nous avons étudié les propriétés structurales, électroniques et optiques du composé binaire $SrTe$ dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), en utilisant la méthode des ondes plans augmentée et linéarisées (FP-LAPW), afin de calculer les propriétés structurales, électroniques et optiques, nous avons employé l'approximation du gradient généralisé (WC-GGA),

Les résultats obtenus montrent une concordance raisonnable avec les résultats expérimentaux et théoriques disponibles.

Mots clés : DFT, FP-LAPW, propriété structurales, propriétés électroniques, propriétés optiques.

Abstract

In this work, we studied the structural, electronic and optical properties for binary compound SrTe in the framework of density functional theory (DFT), using the full potential and linearized augmented plane wave (FP-LAPW). In order to calculate the structural, electronic and optical properties, we used approximation of the generalized gradient, WC-GGA.

The results obtained show a reasonable concordance with the experimental and theoretical results available.

Key Words: DFT, FP-LAPW, structural properties, electronic properties, optical properties.

Table des matières

Dédicaces	II
Remerciements	III
ملخص.....	IV
Résumé	IV
Abstract	V
Introduction Générale.....	1

Chapitre I : Etude bibliographique sur le composé SrTe

I. Introduction.....	5
II. Le strontium(Sr).....	5
II.1 Propriétés du strontium	6
II.2 Utilisation du strontium.....	7
III. Le Tellure (Te)	7
III.1 Propriétés du tellure	7
III.2 Utilisation du tellure	9
VI Les effets du strontium et du tellure sur la santé et l'environnement.	9
VI. I Strontium	9
VI.1.1 les effets du strontium sur la santé	9
VI.1.2 les effets du strontium sur l'environnement	10
VI.2 Tellure	10
VI.2.1 les effets du tellure sur la santé	10
VI.2.2 les effets du tellure sur l'environnement	10
V. Composé binaire du tellure de strontium SrTe	11
❖ Caractéristiques de composé SrTe.....	11
❖ La structure cristallographique rocksalt (NaCl)	12
Références bibliographiques	13

Chapitre II: Théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)

I. Introduction.....	17
II. Principe de la DFT	17
III. L'origine	17
IV. Notions de base.....	18
IV.1 L'équation de Schrödinger.....	18
❖ L'approximation de Born –Oppenheimer(1928).....	19

❖ L'approximation de Born-Oppenheimer (adiabatique)	19
❖ L'approximation de Hartree -Fock	20
IV.2 Densité électronique	21
❖ Définition et propriétés	21
❖ Densité de paire	21
IV.3 Modèle de Thomas-Fermi	21
❖ Théorèmes de Hohenberg et Kohen.....	22
❖ Les équations de Kohen –Sham.....	23
❖ L'approximation de la densité local (LDA).....	24
❖ L'approximation du gradient généralise (GGA)	24
❖ Résolution des équations de Kohn-Sham	25
V. La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW)	25
V.1 Principe de l'énergie de linéarisation.....	25
V.2 Construction des fonctions radiales	27
V.3 Amélioration de méthode FP-LAPW.....	27
V.4 Les fenêtres d'énergie de linéarisation	27
V.6 Développement en orbital local	28
V.7 Traitement des effets de spin –orbital.....	28
VI. Le code Wien2k	29
Références Bibliographiques	31

Chapitre III: Résultats et discussions

I. Introduction	34
II. Méthode de calcul	34
III. Propriétés structurales	35
VI. Propriétés électroniques	36
VI.1 Structure de bande.....	36
V. Propriétés optiques	38
V.1Rappelle théorique.....	39
V.2.L'indice de réfraction	40
V.3 La fonction diélectrique	41
❖ Evolution de la partie réelles de la fonction diélectrique	42
❖ Evolution de la partie imaginaire de la fonction diélectrique	43
V.5.Réflexivité.....	45
Références bibliographiques	47

Liste des tableaux

Chapitre I : Etude Bibliographique sur le composé SrTe

Tableau 1: Propriétés physiques du strontium.....	6
Tableau 2: Propriétés physiques du Tellure	8

Chapitre III : Resultats et Discussion

Tableau 1 :paramètre du réseau a en (\AA), le module de compressibilité B en (GPa) pour le composé SrTe comparés à d'autres résultats expérimentaux et théoriques	36
Tableau 2 : Gap énergétiques du SrTe calculés par la GGA et comparés à d'autres valeurs théoriques.	37
Tableau 3 : Variation de l'indice de réfraction du SrTe.....	41
Tableau4 : Valeurs de la partie réelle de la fonction diélectrique $\epsilon_1(0)$ de SrTe	43
Tableau5 : Valeurs de la partie réelle de la fonction diélectrique $\epsilon_2(0)$ de SrTe	45

Liste des figures

Chapitre I : Etude Bibliographique sur le composé SrTe

Figure 1: échantillon d'un strontium conservé sous forme argon	5
Figure 2 :Echantillon du tellure présenté sous forme de petit lingot	12
Figure 3 : Structure cristalline du chlorure de sodium.	12

Chapitre II : Theorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)

Figure 1: les fenêtres d'énergie multiple	28
Figure 2 : Le code wien2k.....	30

Chapitre III :Resultats et Discussion

Figure1 : Variation de l'énergie totale en fonction du volume en (\AA^3) du composé binaire SrTe avec l'approximation: WC-GGA.....	35
Figure2 : Première zone de Brillouin de la maille CFC avec les points et les lignes de haute symétrie.....	36
Figure 3 : Structure de bandes du composé SrTe en utilisant l'approximation (GGA).....	38
Figure 4 :Variation de l'indice de réfraction du SrTe.....	41
Figure 5 :Variation de la partie réelle de la fonction diélectrique en fonction d'énergie.....	43
Figure6 : Variation de la partie imaginaire de la fonction diélectrique en fonction d'énergie.....	44
Figure7: Variation de la réflectivité en fonction d'énergie.....	46

Introduction Générale

La recherche de nouveaux matériaux aux propriétés physiques spécifiques constitue un défi majeur dans les industries et les technologies actuelles ainsi que leurs divers domaines d'application [1].

Les semi-conducteurs II-IV font l'objet d'un grand intérêt et suscitent de nombreuses recherches ces dernières années, généralement à des fins technologiques, pour leurs éventuelles applications. Parmi ces semi-conducteurs, la famille de chalcogénures alcalino-terreux, qui acquièrent une importance particulière, ils sont à la base de tous les composants électroniques et optoélectroniques qui entrent dans les dispositifs informatiques, de télécommunications... etc. [2]. Ces semi-conducteurs sont caractérisés par une large bande interdite, la plupart d'entre eux cristallisent dans la phase rock-salt dans les conditions normales [3] et ils ont été l'objet pour d'autres études à différentes conditions telles que la pression et la température [4,5].

Parmi ces composés binaires, le Tellure de Strontium (SrTe) ont fait l'objet de nombreuses études expérimentales [6] et théoriques au cours de ces dernières années. Le tellure de Strontium (SrTe) est un matériau semi-conducteur à bande énergétiquelarge utilisé dans les champs de catalyseurs électroniques, optiques, thermoélectriques [7].

Les simulations numériques des propriétés structurales, électroniques et optiques en utilisant la méthode des ondes planes augmentées et linéarisées (FP-LAPW) basée sur la DFT et implémentée dans le code WIEN2k est présenté dans ce travail. Il est maintenant possible d'expliquer et prévoir les propriétés des matériaux dans des conditions qui sont inaccessibles expérimentalement [8].

Le travail présenté dans ce mémoire est basé sur trois chapitres essentiels:

Le premier chapitre est destiné à une présentation bibliographique des matériaux de l'étude ainsi que la description de leurs propriétés physiques générales.

Ensuite, le deuxième chapitre est consacré à un rappel sur la théorie de la fonctionnelle de la densité DFT, les approximations utilisées pour traiter le potentiel d'échange et de corrélation, le principe de la méthode utilisée FP-LAPW et le code WIEN2k.

Le troisième chapitre résume les résultats de notre travail effectué pour déterminer les propriétés physiques qui regroupe les propriétés structurales, électroniques et optique de tellure de strontium (SrTe) ainsi que leurs interprétations et leurs comparaisons avec d'autres résultats disponibles.

Enfin, les résultats importants obtenus durant la réalisation de ce mémoire sont regroupés dans la conclusion générale.

Références

- [1] Yamaoka, S., Shimomuro, O., Nakasawa, H., and Fukunaga, O., Pressure-induced phase transformation in BaS, *Solid State Commun.*, 33, 87-89, (1980).
- [2] R. Khenata, H. Baltache, M. Sahnoun, M. Driz, M. Rerat, B. Abbar, *Physica B* 336, 321 (2003).
- [3] Le chiffre d'affaires mondial des semi-conducteurs a augmenté de 13,4 % en 2018 grâce au marché des puces, *Développez*, [https:// www.developpez.com/actu/240219/](https://www.developpez.com/actu/240219/), (02 mars 2019).
- [4] S. Kapoor, P. Bhardwaj, and N. Yaduvanshi, "Study of the phase transition phenomenon in SrTe under pressure." *Adv Phys Theories Appl*, 45, 92 (2015).
- [5] R. Mukhopadhyay, "High pressure phase transition in SrTe, *Solid State Physics*." *Solid State Physics: Proceedings of the D. A. E. Solid State Physics Symposium (Universities Press, India)* p. 548 (1999).
- [6] Lines, M. E., Bond-orbital theory of linear and nonlinear electronic response in ionic crystals. I. Linear response, *phys. Rev. B*, 41, 3372-3382, (1990).
- [7] Bouhemadou, A., Khenata, R., Zegrar, F., Sahnoun, M., Baltache, H., and Reshak, A.H., Ab initio study of structural, electronic, elastic and high pressure properties of barium chalcogenides, *Comp. Mat. Sci.*, 38, 263-270, (2006)
- [8] S.Mebarek ; MEMOIRE DE de Master ;Effets de la pression sur les propriétés structurales et électroniques des chalcogénures de Strontium SrX (X= S, Se et Te): Etude théorique ; Université de Mostaganem ; /2021

CHAPITRE I

I. Introduction

Ce chapitre sert à réaliser une étude bibliographique sur les composés Sr-Te, son objectif principal est de présenter les principales caractéristiques de ses matériaux purs.

Dans un premier temps une rapide définition. Les suites par paragraphe sera consacré une présentation des propriétés physiques des matériaux. Le tellure du strontium (SrTe) est un matériau semi-conducteur du groupe II-VI, composé du tellure Te et du strontium Sr et sont importants en raison de leurs potentiels d'applications [1].

II. Le strontium(Sr)

Le strontium (Sr) est un métal alcalino-terreux mou, jaune argenté. Il a trois formes cristallines allotropiques et ses propriétés physiques et chimiques sont similaires à celles du calcium et du baryum[2]. Il se substitue facilement avec plusieurs éléments, dont le calcium et le baryum. Ces substitutions se font en faibles quantités dans des minéraux tels que des carbonates[3].

Le strontium réagit vigoureusement avec l'eau et se ternit rapidement à l'air, il doit donc être stocké hors de contact avec l'air et l'eau. En raison de son extrême réactivité à l'air, cet élément se produit toujours naturellement combiné avec d'autres éléments et composés. Le métal de strontium en poudre fine s'enflammera spontanément dans l'air pour produire à la fois de l'oxyde de strontium et du nitrure de strontium [2].



Figure 1: échantillon d'un strontium conservé sous forme argon

II.1 Propriétés du strontium

Le strontium (Sr) est un élément dont le numéro atomique est **38**, il possède quatre isotopes principaux et stables dans la nature.

Ces derniers sont ^{84}Sr (0,56 %), ^{86}Sr (9,86 %), ^{87}Sr (7,0 %) et ^{88}Sr (82,58 o/o). Ces isotopes sont présents naturellement dans toute la lithosphère où ils y sont concentrés par rapport au manteau.

Parmi les isotopes du Sr, seul le ^{87}Sr est radiogénique, il produit par désintégration radioactive du rubidium (^{87}Rb), un métal alcalin. Le ^{87}Sr peut être trouvé dans les minéraux, il peut donc avoir deux sources distinctes : la désintégration du rubidium ^{87}Rb présent dans la roche, ou l'apport en ^{87}Sr présent dans l'environnement[4].

Tableau 1: Propriétés physiques du strontium

Symbole	Sr
Nom	Strontium
Numéro atomique	38
Groupe	2
Famille d'élément	Métal alcalino-terreux
Configuration électronique	[Kr] $5s^2$
Electrons par niveau d'énergie	2,8,18,8,2
Série	Métaux alcalino-terreux
Allotrope a l'état standard	Cristallisé
Autres allotropes	Solide(paramagnétique)
Masse volumique	$2.64\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}(20\text{C}^\circ)$
Système cristallin	Cubique a faces centrées
Couleur	Blanc argenté métallique
Point de fusion	777C°
Point d'ébullition	1382C°
Energie de fusion	$8.30\text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$
Volume molaire	$33,94 \times 10^{-6}\text{ m}^3 \cdot \text{Mol}^{-1}$
Chaleur massique	$300\text{ j}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{k}^{-1}$
Conductivité électrique	$7,62 \times 10\text{s}\cdot\text{m}^{-1}$
Conductivité thermique	$35\text{w}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{k}^{-1}$
Solubilité	Sol. Dans H ₂ O

II.2 Utilisation du strontium

Le strontium est utilisé sous forme de chlorate ou de nitrate, fait office de colorant rouge, notamment dans les feux d'artifice. On le teste aussi comme dopant pour des catalyseurs expérimentaux de pots catalytiques. Le strontium était principalement utilisé dans le verre pour les tubes à rayons cathodiques de télévision couleur[5], où il empêchait l'émission de rayons X. [6]. Avec le rubidium, il forme un couple dont la présence relative des membres permet une forme de datation. On retrouve l'hexa-ferrite de strontium dans certains aimants de réfrigérateur. Enfin, le strontium pourrait devenir une référence pour les horloges atomiques en remplacement du césium 133[7].

III. Le Tellure (Te)

Le tellure est un élément chimique qui porte le numéro **52** dans la classification périodique des éléments [8].

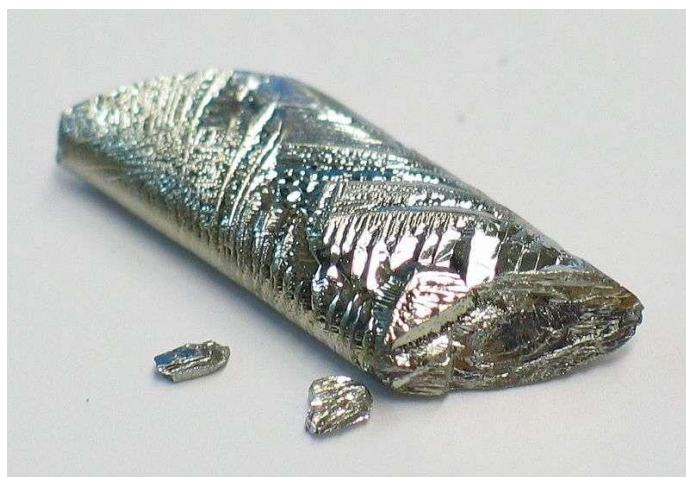


Figure 2 : Echantillon du tellure présenté sous forme de petit lingot

III.1 Propriétés du tellure

Le tellure appartient au groupe de l'oxygène de la table périodique des éléments. C'est un métalloïde rare de couleur blanche-argent présentant des caractéristiques à la fois métalliques et non métalliques [9]. Il montre des valences positives variables de + 2, +4 et + 6, et, comme le sélénium forme des oxydes divalents et trivalents.[10]

Argenté, le tellure est cassant et peut être facilement pulvérisé. Un aérosol explosif à l'air est obtenu à partir de particules de tellure finement dispersées. Des dérivés telluriques peuvent être fabriqués quand le tellure se combine avec l'hydrogène.

Tableau 2: Propriétés physiques du Tellure

Symbole	Te
Nom	Tellure
Numéro atomique	52
Groupe	16
Famille d'élément	Métalloïde
Configuration électronique	[Kr] 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴
Electrons par niveau d'énergie	2,8,18,18,6
Etat ordinaire	Solide diamagnétique
Allotrope a l'état standard	Cristallisé
Autres allotropes	Amorphe
Masse volumique	6.23g.cm ⁻³ (20C°)
Système cristallin	Hexagonal
Couleur	Gris argenté
Point de fusion	449.51C°
Point d'ébullition	988C°
Energie de fusion	17.49 kJ.mol ⁻¹
Volume molaire	20,46 x10 ⁻³ m ³ . mol ⁻¹
Chaleur massique	202 j.kg ⁻¹ .k ⁻¹
Conductivité électrique	200 s.m ⁻¹
Conductivité thermique	2,35w.m ⁻¹ .k ⁻¹
Solubilité	Sol. Dans HCl +bromate

En raison de sa faible électronégativité, le tellure forme une variété de matériaux avec de petites bandes interdites, qui sont adressables par une lumière à longueur d'onde relativement longue. Cette caractéristique est à la base d'applications potentielles dans les matériaux photoconducteurs, les cellules solaires, les détecteurs infrarouges. La principale préoccupation qui freine certaines applications est la stabilité modeste de ces matériaux et les préoccupations concernant l'impact environnemental. Un générateur photovoltaïque CdTe et les panneaux solaires au tellure de cadmium (CdTe) présentent certaines des plus grandes efficacités pour les générateurs d'énergie électrique à cellules solaires[11]. Des détecteurs de rayons X à base de (Cd, Zn) Te ont été réalisés[12]. Le tellure de mercure et de cadmium est un matériau semi-conducteur sensible au rayonnement infrarouge[13].

III.2 Utilisation du tellure

Le tellure possède des propriétés d'un semi-conducteur de type-p, et est donc utilisé dans l'électronique. Il est aussi employé dans la fabrication des redresseurs électriques des appareils thermoélectriques.

Ce métal est utilisé dans le raffinage du zinc où il élimine le cobalt de la transformation. D'autres applications métallurgiques comprennent son utilisation comme élément d'alliage avec, par exemple, le cuivre, le plomb et l'acier inoxydable. Les alliages qui en résultent sont plus faciles à usiner, Il est allié à la fonte pour favoriser le refroidissement pour la spectroscopie, où la présence de graphite libre électriquement conducteur a tendance à interférer avec les résultats des tests d'émission d'étincelles [14].

Il a d'autres utilisations telles que fabrication de détonateurs, protection du plomb des accumulateurs contre l'effet de corrosion par l'acide, fabrication des résistances électriques (il favorise la conductibilité). Un composé telluré est employé comme catalyseur dans la vulcanisation du caoutchouc(utilisé en tant que catalyseur et améliore également la propriété élastique à des températures élevées). Il peut être également utilisé comme revêtement pour métaux, fongicide, algicide, parasiticide, pigment pour la céramique et le verre et enfin dans les médicaments (contre les maladies de peau) [15]

VI Les effets du strontium et du tellure sur la santé et l'environnement.

VI. I Strontium

VI.1.1 les effets du strontium sur la santé

Le strontium ingéré se retrouve concentré à environ 99 % dans le système osseux, ainsi que dans le système conjonctif. Ingéré en trop grande quantité, le strontium provoque des troubles osseux proches du rachitisme. Le strontium a tendance à remplacer le calcium dans les os. De ce fait, le strontium 90, très radioactif, est particulièrement dangereux pour l'Homme.

Le corps humain absorbe le strontium comme s'il s'agissait de son congénère le plus léger, le calcium. Étant donné que les éléments sont chimiquement très similaires, les isotopes stables du strontium ne constituent pas une menace importante pour la santé. L'être humain moyen consomme environ deux milligrammes de strontium par jour. [16]

Chez les adultes, le strontium consommé a tendance à se fixer uniquement à la surface des os, mais chez les enfants, le strontium peut remplacer le calcium dans le minéral des os en croissance et ainsi entraîner des problèmes de croissance osseuse [17].

Il a été démontré que le strontium inhibe l'irritation sensorielle lorsqu'il est appliqué localement sur la peau [18, 19], il a été aussi établi que le strontium accélère le taux de récupération de la barrière de perméabilité épidermique (barrière cutanée) [20].

VI.1.2 les effets du strontium sur l'environnement

Les concentrations du strontium élevées dans la biosphère sont dues aux activités humaines comme le rejet de cendre de charbon. Le strontium présent dans le sol va alors se dissoudre dans l'eau, se déplacer profondément dans le sol et rejoindre les nappes phréatiques. Mais une partie du strontium ne peut pas ruisseler avec les eaux de surface et donc reste stagnée dans le sol durant des dizaines d'années. De ce fait, le strontium peut être absorbé par les poissons, les légumes, le bétail et ainsi contaminer l'Homme [21].

VI.2 Tellure

VI.2.1 les effets du tellure sur la santé

Un contact avec le métal pur ou ses composés doit être évité non seulement parce qu'ils sont toxiques mais encore parce que l'inhalation de leurs vapeurs provoque des odeurs corporelles déplaisantes : des travailleurs exposés à une concentration de $0,01 \text{ mg.m}^{-3}$, voire moins, développent une haleine alliagée caractéristique [22].

Le tellure est relativement toxique pour l'Homme et provoque des effets secondaires désagréables pour tous. Suite à une exposition à court terme, le tellure risque de provoquer des irritations des yeux mais également du système respiratoire. Le foie et le système nerveux central peuvent également subir les effets de cet élément chimique, s'il est ingéré, le tellure provoque une halène d'ail, des douleurs abdominales, des vomissements et une constipation [23].

VI.2.2 les effets du tellure sur l'environnement

Tellure, en tant que tel, ne représente pas de danger réel pour l'environnement puisqu'il est non nocif ou facilement rendu inoffensif suite à des processus classiques. Cependant, il faut être prudent lorsque le tellure est chauffé puisque le chlorure de tellure peut émettre des vapeurs toxiques de tellure mais aussi de chlore [24].

L'accumulation de tellure semble expliquer une grande partie des effets toxiques. De nombreux organismes métabolisent également le tellure en partie pour former du tellure de diméthyle, bien que le ditellure de diméthyle soit également formé par certaines espèces. Le tellure de diméthyle a été observé dans les sources chaudes à de très faibles concentrations.

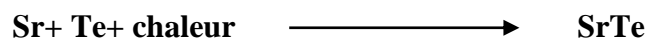
[25]

V. Composé binaire du tellure de strontium SrTe

Le tellure de strontium (SrTe) est un produit cristallisé généralement disponible dans la plupart des volumes. Des informations techniques, de recherche et de sécurité (MSDS) sont disponibles ainsi qu'un calculateur de référence pour convertir les unités de mesure pertinentes. Cet élément se spécialise dans la production de compositions personnalisées pour des applications commerciales et de recherche et pour de nouvelles technologies propriétaires

[26].

Le tellure de strontium a la formule moléculaire de SrTe et le poids moléculaire de 215,2238 g/mol. Il peut être préparé en chauffant les éléments ensemble sous atmosphère inerte :



Le tellure Te fond à 450 °C et Sr fond à 778 °C. Une température de chauffage de 750°C est suffisante pour provoquer une réaction complète. La poudre de SrTe peut également être préparée par la réaction de quantités stœchiométriques de Sr et de Te dans un creuset en graphite pur sous vide à 480 °C pendant 48 h. Son poids moléculaire est de 166,58 g/mol.

Ce composé porte le numéro CAS 12040-08-3. C'est un solide cristallin blanc d'une densité de 4,83 g/cm³. Il a la structure du rock salt avec une coordination octaédrique du cation Sr²⁺, son indice de réfraction est de 2,408. S'il est chauffé à 1605 °C, il se décompose.

Il a été rapporté que les nanostructures composées de tellure métallique présentent d'excellentes propriétés qui sont utilisées pour plusieurs applications telles que les champs de catalyseurs électroniques, optiques, thermoélectriques [27].

❖ Caractéristiques de composé SrTe

Les semi-conducteurs II-VI sont constitués par l'association d'un élément de la colonne II dans notre étude (Sr) avec un élément de la colonne VI dans notre étude (Te) de la classification périodique de Mendeleïev [28].

L'élément II (Sr) fournit 2 électrons de valence provenant de la dernière orbitale s et l'élément VI (Te) fournit 6 c'est-à-dire 2 d'une orbitale s et 4 d'une orbitale p, ce qui fait 8 électrons pour chaque couple d'élément comme pour tous les semi-conducteurs II-VI. La liaison II-VI résulte donc de l'hybridation des orbitales atomiques c'est une liaison covalente avec, en plus, une partie ionique non négligeable due à la différence de la nature chimique entre le cation qui représente l'élément II et l'anion qui représente élément VI très électronégatif [39].

❖ La structure cristallographique rocksalt (NaCl)

Les semi-conducteurs II-VI peuvent cristalliser dans différentes structures comme la structure de chlorure de césium (CsCl), de zinc blende (ZnS)..., etc. selon certaines conditions. Particulièrement, dans les conditions normales le composé SrTe a une structure cristallographique de type Rock Salt présentée par la structure NaCl [30], illustrée sur les figures (3).

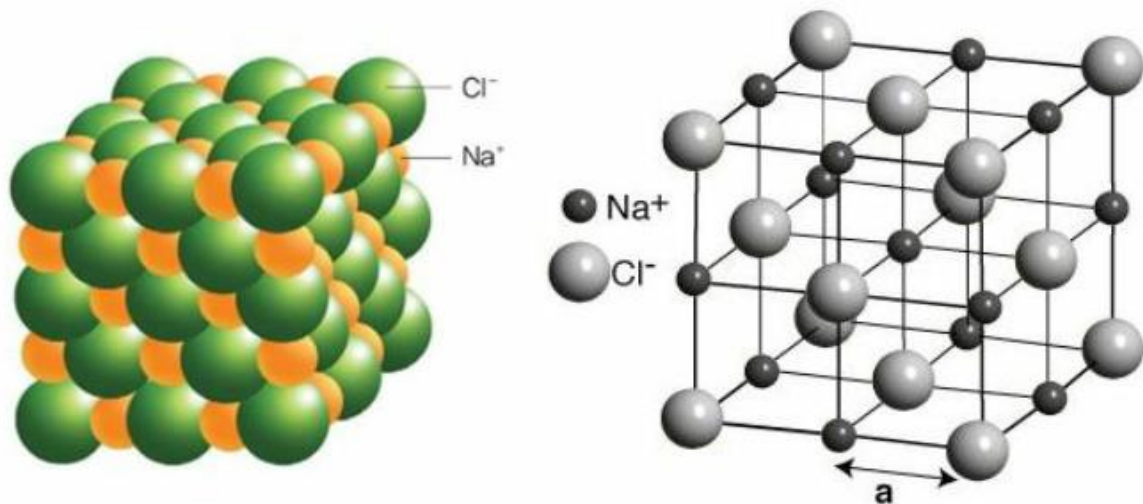


Figure 2 : Structure cristalline du chlorure de sodium.

Dans cette structure, les ions Cl^- constituent un réseau cubique à face centrées (CFC); ils occupent les sommets et les centres des faces d'un cube d'arête a . Les ions Na^+ occupent les sites octaédriques du réseau c'est-à-dire le centre du cube et les milieux des arêtes du cube.

Références bibliographiques

- [1] Labidi, S., Meradji, H., Labidi, M., Ghemid, S., Drablia, S., and El Haj Hassan F., First principles calculations of structural, electronic and thermodynamic properties of SrS, SrSe, SrTe compounds and SrS_{1-x}Se_x alloy, Phys. Procedia, 2, 1205-1212, (2009).
- [2] Strontium (Sr), site web: <http://www.lenntech.fr.com>.
- [3] Dickin. (2018). Radiogenic isotope geologie. Cambridge University Press.
- [4] MARTY, G. (2019, février). étude du strontium stable et radiogénique des barytines dans les séquences de caps carbonatés. université du Québec à montréal.
- [5] MacMillan, J. Paul; Park, Jai Won; Gerstenberg, Rolf; Wagner, Heinz; Köhler, Karl and Wallbrecht, Peter (2002) "Strontium and Strontium Compounds" in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Wiley-VCH, Weinheim. doi:10.1002/14356007.a25_321
- [6] Joyce A.; Polyak, Désirée E. "Mineral Yearbook 2007: Strontium" (PDF). United States Geological Survey. Retrieved 14 October 2008.
- [7] Kim, C.H. et al. Science 327, 1624-1627 (2010); Article [archive] ; ChemPort [archive] Stephen G. Hibbins, Kirk-Othmer encyclopedia of chemical technology 4th ed. Strontium and Strontium Compounds, vol. 22, John Wiley & Sons.
- [8] Anderson, Don L.; "Chemical Composition of the Mantle" in Theory of the Earth, pp.147-175 ISBN 0865421234.
- [9] Mahan BH (1967) & KLPLH. Edition Addison-Wesley.
- [10] Kabata-Pendias A et Pendias (2001) 7UDFH_HOHPHQWV_LQ_VRLOV_DQG_plants, 3rd Edition. CRC Press, Boca Raton, Florida.
- [11] Zweibel, K. (2010). "The Impact of Tellurium Supply on Cadmium Telluride Photovoltaics". Science. 328 (5979):699-701. Bibcode:2010Sci...328..699Z. doi:10.1126/science.1189690. PMID 20448173. S2CID 29231392.
- [12] Saha, Gopal B. (2001). "Cadmium zinc telluride detector". Physics and radiobiology of nuclear medicine. New York: Springer. pp. 87-88. ISBN 978-0-387-95021-1
- [13] Willardson, R.K.; Beer, Albert C, eds. (1981). Mercury cadmium telluride. New York: Academic Press. ISBN 978-0-12-752118-3.
- [14] Lide DR (1998) +DQGERRN_RI_&KHPLVWU_DQG_3K_VLFV, 78th edition. CRC Press, Boca Raton, Florida.

- [15] "Study on the structure and property of lead tellurium alloy as the positive grid of lead-acid batteries". *Journal of Alloys and Compounds*. 475 (1–2): 102–109. doi:10.1016/j.jallcom.2008.08.011.
- [16] Emsley, John (2011). *Nature's building blocks: an A–Z guide to the elements*. Oxford University Press. p. 507. ISBN 978-0-19-960563-7.
- [17] Agency for Toxic Substances and Disease Registry (21 January 2015). "ATSDR – Public Health Statement: Strontium". cdc.gov. Agency for Toxic Substances and Disease Registry. Retrieved 17 November 2016.
- [18] Hahn, G.S. (1999). "Strontium Is a Potent and Selective Inhibitor of Sensory Irritation" (PDF). *Dermatologic Surgery*. 25 (9): 689–94. doi:10.1046/j.1524-4725.1999.99099.x. PMID 10491058. Archived from the original (PDF) on 31 May 2016.
- [19] Hahn, G.S. (2001). *Anti-irritants for Sensory Irritation*. Handbook of Cosmetic Science and Technology. p. 285. ISBN 978-0-8247-0292-2
- [20] Kim, Hyun Jeong; Kim, Min Jung; Jeong, Se Kyoo (2006). "The Effects of Strontium Ions on Epidermal Permeability Barrier". *The Korean Dermatological Association, Korean Journal of Dermatology*. 44 (11): 1309
- [21] « Propriétés chimiques - Conséquences du strontium sur la santé - Impact du strontium sur l'environnement » [archive], sur LENNTECH BV (consulté le 14 mars 2013)
- [22] Lide DR (1998) +DQGERRN_RI_&KHPLVWU_DQG_3K\VLV, 78th edition. CRC Press, Boca Raton, Florida.
- [23] joy. (2018, avril 20). Consulté le mars 2022, sur superprof: <http://www.superprof.com>
- [24] Chasteen, Thomas G.; Bentley, Ronald (2003). "Biomethylation of Selenium and Tellurium: Microorganisms and Plants". *Chemical Reviews*. 103 (1): 1–26. doi:10.1021/cr010210+. PMID 12517179..
- [25] Taylor, Andrew (1996). "Biochemistry of tellurium". *Biological Trace Element Research*. 55 (3): 231–9. doi:10.1007/BF02785282. PMID 9096851. S2CID 10691234.
- [26] American Elements. (s.d.). Consulté le mars 2022, sur <http://www.americanelements.com>

[27]Strontium Telluried, Hubei Jusheng Technology Co.,Ltd. Consulté le 15/4/22,sur <http://chemicalbook.com>.

[28] Gheribi.L., Mémoire de master , Effet du dopage par le Barium sur les propriétés structurales, électroniques et élastiques du sulfure de strontium,Université de guelma , 2019

[29]Phillips, J. C., Ionicity of the Chemical Bond in Crystals, Rev. Mod. Phys. 42, 317, (1970).

[30]Les cristaux ioniques, doc player, <https://docplayer.fr/13986272-Chapitre-iii-les-cristaux-ioniques.html>, (10 mas 2019).

CHAPITRE II

I. Introduction

Les propriétés physiques d'un système solide, illustrées par l'image d'électrons légers en mouvement autour de noyaux lourds, dépendent du comportement de sa structure électronique [1]. La compréhension de ces différentes propriétés physiques des matériaux consiste à étudier le système d'électrons en interaction entre eux et avec les ions. Le calcul de ses propriétés à l'état fondamental d'un système à N électrons dans un cristal est très difficile, du fait que chaque particule interagit avec toutes les autres particules. L'équation de Schrödinger devient de ce fait mathématiquement insoluble. Plusieurs approximations ont été faites pour pallier à cette situation difficile. Une des méthodes utilisées est la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), développée par Hohenberg et Kohn. La DFT est la méthode la plus efficace dans le calcul des structures de bandes pour les solides, nous l'utiliserons par conséquent dans cette étude [2].

II. Principe de la DFT

La théorie de la fonctionnelle de la densité est une méthode basée sur la physique quantique et l'électromagnétisme qui permet d'étudier les structures électroniques des systèmes composés de plusieurs atomes et d'en déduire leurs propriétés physico-chimiques. Combinée avec des méthodes de physique numérique [3].

L'objectif principal de la théorie de la fonctionnelle de la densité est de remplacer la fonction d'onde multi électronique par la densité électronique en tant que quantité de base pour les calculs. Alors que la fonction d'onde multiélectronique dépend de $3N$ variables (ou N est le nombre total de particules du système), Le principe de la DFT consiste en une reformulation du problème quantique à N corps en un problème mono corps (ou, à la rigueur, bicorps si l'on considère les problèmes de spin), l'idée centrale de DFT est que la seule densité électronique de l'état fondamental du système détermine entièrement les valeurs moyennes des observables, comme l'énergie [4].

III. L'origine

La DFT trouve ses origines dans le modèle développé par *Llewellyn Thomas* et *Enrico Fermi* à la fin des années 1920. Néanmoins il faudra attendre le milieu des années 1960 et les contributions de *Pierre Hohenberg*, *Walter Kohn* et *Lu Sham* pour que soit établi le formalisme théorique sur lequel repose la méthode actuelle.

La DFT a été à l'origine développée dans le cadre de la théorie quantique non-relativiste (équation de Schrödinger indépendante du temps) et dans l'approximation de Born-Oppenheimer. La théorie fut par la suite étendue au domaine de la mécanique quantique dépendante du temps (on parle alors de TDDFT pour *Time-Dependent Density Functional Theory*) et au domaine relativiste. La DFT est également utilisée pour la description thermodynamique des fluides classiques [4].

IV. Notions de base

Les lois physiques nécessaires à la théorie mathématique d'une grande partie de la physique et de la totalité de la chimie sont ainsi complètement connues, et la difficulté est seulement que l'application exacte de ces lois mène à des équations beaucoup trop complexes pour être résolues [5].

IV.1 L'équation de Schrödinger

L'équation de Schrödinger est l'équation de base de la mécanique quantique, Elle permet de trouver les énergies et les fonctions d'ondes associées aux régimes stationnaires d'un système donné [6]. Le calcul de l'énergie totale d'un système composé d'ions et d'électrons en interaction est obtenu dans le cas général par la résolution de l'équation de Schrödinger des états stationnaires [2].

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

Avec

H: l'opérateur Hamiltonien du cristal.

Ψ : fonction d'onde décrivant l'état du système.

E: L'énergie totale du système.

$$\mathbf{H}_e = \mathbf{T}_e + \mathbf{T}_N + \mathbf{V}_{ee} + \mathbf{V}_{NN} + \mathbf{V}_{eN} \quad (\text{II.2})$$

L'opérateur Hamiltonien peut être décomposé en deux contributions, cinétique et potentielle.

T_e : l'énergie cinétique des électrons.

T_N : l'énergie cinétique des électrons.

V_{ee} : l'énergie potentielle de répulsion entre les électrons.

V_{NN} : l'énergie potentielle de répulsion entre les noyaux.

V_{eN} : l'énergie potentielle d'attraction électrons-noyaux.

Les formules utilisées sont exprimées en unités atomiques (u .a)

$$H\Psi = \left[-\sum_i^N \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 - \sum_I^A \frac{\hbar^2}{2M} \nabla_I^2 - \sum_{i,I} \frac{z_I e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_I|} + \sum_{I < J} \frac{z_I z_J e^2}{|\vec{R}_I - \vec{R}_J|} \right] \Psi = E\Psi \quad (\text{II.3})$$

La solution de l'équation (II.2) conduit à la résolution d'un problème à N corps qui n'est accessible qu'au prix de certaines approximations. Ces dernières doivent refléter une certaine réalité physique.

❖ L'approximation de Born –Oppenheimer(1928)

Considère la position des noyaux atomiques comme fixes ; leur énergie cinétique peut donc être négligée et le terme d'interaction entre noyaux considéré comme une constante, cette approximation se justifie par le rapport de masse entre les particules constitutives du noyau (proton et neutrons) et les électrons [7]. L'équation à résoudre s'écrit alors :

$$H\Psi = [T_e + V_{ei} + V_{ee} + E_{II}] \Psi = E\Psi (\text{II.4})$$

Avec :(II. 4)

$$T_e = \sum_i^N \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2$$

$$v_{ei} = - \sum_{i,I} \frac{z_I e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_I|}$$

$$V_{ee} = \sum_{i < j} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|}$$

❖ L'approximation de Born-Oppenheimer (adiabatique)

Born et Oppenheimer [8] et de fait que les noyaux sont plus lourds que les électrons, donc plus lent, on commence par négliger le mouvement des noyaux par rapport à celui des électrons et l'on ne prend en compte que celui des électrons dans le réseau rigide périodique des potentiels nucléaires. On néglige ainsi l'énergie cinétique des noyaux et l'énergie potentielle noyaux-noyaux devient une constante.

Nous pouvons donc définir un nouveau Hamiltonien, c'est celui des électrons H_e donné par :

$$\mathbf{H}_e = \mathbf{T}_e + \mathbf{V}_{ee} + \mathbf{V}_{eN} \quad (\text{II.5})$$

Alors :

$$H_e = \frac{\hbar^2}{2m} \sum_i^n \nabla_i^2 + \frac{1}{2} \sum_i^n \sum_{i \neq j}^n \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} - \sum_i^n \sum_k^n \frac{Z_k e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ik}} \quad (\text{II.6})$$

L'équation de Schrödinger s'écrit alors

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \sum_i^n \nabla_i^2 + \frac{1}{2} \sum_i^n \sum_{i \neq j}^n \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} - \sum_i^n \sum_k^n \frac{Z_k e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ik}} \right] \Psi_e = E_e \Psi_e \quad (\text{II.7})$$

A ce niveau, il existe plusieurs méthodes de résolution dont les premières sont celles de Hartree [9] et Hartree-Fock [10] basées sur l'hypothèse des électrons libres (individuels) interagissant avec les noyaux et tous les autres électrons [11] du système.

❖ L'approximation de Hartree -Fock

En 1928, Hartree considère que chaque électron se déplace de façon indépendante dans le champ moyen créé par les noyaux et l'ensemble des autres électrons [8]. L'Hamiltonien peut être écrit comme une somme des Hamiltoniens chacun décrit le comportement d'un seul électron :

$$H = \sum_i H_i \quad (\text{II.8})$$

Avec:

$$H_i = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i + U_i(\vec{r}_i) + V_i(\vec{r}_i) \quad (\text{II.9})$$

Tel que:

$$U_i(\vec{r}_i) = -\sum_{i,l} \frac{Z_l e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_k^0|} \quad (\text{II.10})$$

U_i : l'énergie potentielle de l'électron (i) dans le champ de tous les noyaux (k).

\vec{R}_k^0 : est la position fixe des noyaux (k).

$$V_i(\vec{r}_i) = \frac{1}{2} \sum_j \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \quad (\text{II.11})$$

V_i : le champ effectif de Hartree.

IV.2 Densité électronique

❖ Définition et propriétés

La probabilité de trouver un électron parmi les N électrons du système dans un élément de volume \vec{dr} centré sur la position \vec{r} s'exprime comme [10] :

$$n(\vec{r})\vec{dr} \quad (\text{II.12})$$

Où $n(\vec{r})$ est la densité de probabilité électronique qui est définie par [11]:

$$n(\vec{r}) = N \int |\Psi(\vec{r}, s, \vec{r}_2, s_2, \dots, \vec{r}_N, s_N) | ds ds_2 \vec{dr}_2 \dots ds_N \vec{dr}_N \quad (\text{II.13})$$

La densité de probabilité possède notamment deux propriétés importantes :

$$n(\vec{r} \rightarrow \infty) \int n(\vec{r}) \vec{dr} = N \quad (\text{II.14})$$

❖ Densité de paire

La densité de pair est la probabilité de trouver simultanément 2 électrons du système dans les éléments du volume \vec{dr} et \vec{dr}' est notée $p_2(\vec{r}, \vec{r}') dr dr'$

$$p_2(\vec{r}, \vec{r}') dr dr' = N(N-1) \int |\Psi(\vec{r}, s, \vec{r}', s', \vec{r}_3, s_3, \dots, \vec{r}_N, s_N) | ds ds' ds_3 \vec{dr}_3 \dots ds_N \vec{dr}_N$$

IV.3 Modèle de Thomas-Fermi

Le modèle de Thomas-Fermi, dont lequel on considère l'énergie d'un système d'électrons en interaction dans un potentiel dépendante de la distribution de densité de ces électrons $\rho(\vec{r})$. Cette idée forme la base de la méthode de Thomas-Fermi (1927), qui utilisent l'expression locale de l'énergie cinétique et l'énergie d'échange et de corrélation du gaz d'électrons homogène considéré comme un ensemble de fermions indépendants à la température $T=0^{\circ}\text{K}$ pour construire les mêmes quantités pour le système inhomogène sous cette façon:

$$E = \int \epsilon_i[\rho(\vec{r})] d\vec{r} \quad (\text{II.15})$$

$$\text{La densité du gaz homogène: } \rho = \frac{1}{3\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2} \right)^{3/2} E_f^{3/2} \quad (\text{II.16})$$

Avec: E_f est l'énergie de Fermi.

$$\text{L'énergie cinétique du gaz homogène: } T = \frac{3}{5} \rho E_f \quad (\text{II.17})$$

❖ Théorèmes de Hohenberg et Kohn

Le développement de la théorie de la fonctionnelle de densité a commencé dans les années 1964 et 1965 avec les publications de Hohenberg et Kohn [12]. Les deux théorèmes sont 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 $V_{ext}(\vec{r})$ donné. 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, ρ_0 , comme suit :

$$E = \langle \varphi | H | \varphi \rangle = F[\rho] + \int V_{ext}(\vec{r}) \rho(\vec{r}) d\vec{r}. \quad (\text{II.18})$$

$$F[\rho] = \langle \varphi | U + T | \varphi \rangle. \quad (\text{II.19})$$

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

$$F[\rho] = \int \int \frac{\rho(\vec{r})\rho(\vec{r}')}{|\vec{r}-\vec{r}'|} d\vec{r}d\vec{r}' + G[\rho] \quad (\text{II.20})$$

$G[\rho]$: 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 quel que 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 de particules de l'état fondamental vérifie la relation suivante:

$$E[\rho_0] = \text{Min}E(\rho) \quad (\text{II.21})$$

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.

❖ Les équations de Kohn –Sham

Kohn et Sham[13] ont écrit la densité électronique comme une somme de densité a une particule, et ils ont utilisé un principe variationnelle pour déterminer l'état fondamental du système. Ils ont montré que la vraie densité est donnée par la solution auto-cohérente de l'ensemble des équations a une particule de type Schrödinger, encore appelée équation Kohn-Sham et sont données par :

$$[-\nabla + V_{eN}(\vec{r}) + V_H(\vec{r}) + V_{Xc}(\vec{r})]\Psi_i(\vec{r}) = E_i\Psi_i(\vec{r}) \quad (\text{II.22})$$

Où $\Psi_i(\vec{r})$ est la fonction d'onde a une particule l'énergie mono particule.

$V_{eN}(\vec{r})$ le potentiel coulombien dû aux noyaux,

$V_H(\vec{r})$ est le potentiel de Hartree et $V_{eN}(\vec{r})$ est le potentiel d'échange-corrélation. Ces potentiels sont donnés par :

$$\left\{ \begin{array}{l} V_H(\vec{r}) = \int \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r' \\ V_{Xc}(\vec{r}) = \frac{\delta E_{Xc}[\rho]}{\delta \rho(\vec{r})} \\ V_{eN}(\vec{r}) = \sum_{(\vec{R}, \vec{t})} \frac{Z_{\tau}}{|\vec{r} - \vec{R} - \vec{t}|} \end{array} \right.$$

Où la charge est donnée en sommant la densité de probabilité sur les orbitales occupées (on unité atomique).

$$\rho(\vec{r}) = \sum_{occ} \Psi_i^*(\vec{r})\Psi_i(\vec{r}) \quad (\text{II.23})$$

Jusqu'ici la DFT est une méthode exacte, mais pour que la DFT et les équations de Kohn-Sham deviennent utilisables dans la pratique, on a besoin de proposer une formule pour $E_{Xc}[\rho(\vec{r})]$ et pour cela, on est obligé de passer par des approximations.

❖ L'approximation de la densité local (LDA)

L'approximation la plus simple de l'énergie d'échange-corrélation est celle de la densité locale (LDA). L'idée de LDA est de substituer la densité électronique d'un système réel par celle d'un gaz d'électrons homogène. En autre terme, on suppose que dans une petite région spatiale, la distribution de charges d'un gaz non-homogène à une densité similaire à une distribution de charges d'un gaz homogène.

$$E_{xc}[\rho(\vec{r})] = \int \rho(r) \varepsilon_{xc}^{LDA}[\rho(\vec{r})] d^3 \vec{r}. \quad (\text{II.24})$$

$\varepsilon_{xc}^{LDA}[\rho(\vec{r})]$ représente l'énergie d'échange-corrélation par électron dans un gaz d'électrons dont la distribution est supposée uniforme. Généralement, la dépendance de potentiel d'échange et de corrélation est de la forme :

$$V_x = C_x \rho(\vec{r})^{\frac{1}{3}} \quad (\text{II.25})$$

Trouver la fonction $[\rho(r)]$ n'est pas trivial. Ce travail fait l'objet de nombreuses études qui déterminent les valeurs de ce que l'on appelle la fonctionnelle d'échange et corrélation. Les premières évaluations précises ont été faites en 1980 par D. Ceperley et B.J. Alder [14], et par Hedin-lindqvist (1972) [15]. D'autres travaux de Perdew, J. [16], et J.P. Perdew et A. Zunger [17], modifient ou corrigent légèrement ces valeurs. Mais les résultats obtenus en utilisant l'une ou l'autre fonctionnelle sont sensiblement équivalents.

❖ L'approximation du gradient généralisé (GGA)

Pour améliorer certains nombres de problèmes de la LDA pour certaines applications, il faut introduire des termes en gradient dans l'expression de l'énergie d'échange et de corrélation, c.à.d tenant compte de l'inhomogénéité de la densité électronique. Cette amélioration est connue sous le nom de l'approximation du gradient généralisé (GGA, Generalized Gradient Approximation) [18]. Ainsi la fonctionnelle $E_{xc}[\rho(\vec{r})]$ rend compte du caractère non uniforme du gaz d'électrons.

Dans ce cas, la contribution de $E_{xc}[\rho(\vec{r})]$ 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. Elle s'écrit donc de la forme :

$$E_{xc}^{GGA}[\rho(\vec{r})] = \int \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc}[\rho(\vec{r})] \cdot |\nabla \rho(\vec{r})| d^3 \vec{r}. \quad (\text{II.26})$$

Ou $\varepsilon_{xc}[\rho(\vec{r})]$. $|\nabla\rho(\vec{r})|$ représente l'énergie d'échange-corrélation par électron dans un système d'électrons en interaction mutuelle de densité non uniforme.

L'utilisation des fonctionnelles de type GGA permet d'accroître de façon significative la précision des calculs en comparaison avec la description fournie par la LDA en particulier pour l'énergie de liaison des molécules. Ce qui est à l'origine de l'utilisation massive de la DFT par les chimistes dans les années 90.

❖ Résolution des équations de Kohn-Sham

- **Calcul de structure électronique**

La méthode principale pour résoudre les équations de la DFT est basée sur la propriété de la symétrie par translation propre aux systèmes périodiques. Sa conséquence naturelle est l'utilisation des ondes planes comme base de développement pour la fonction d'onde. Après avoir résolu le problème de l'interaction électro-nucléo grâce à l'approche pseudo – potentiel, on va expliciter l'expression de l'énergie totale dans cette base [19].

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

Il y a plusieurs méthodes de calculs de structures électroniques pour la résolution des équations de la DFT. Ces méthodes se différencient par la forme utilisée du potentiel et par les fonctions d'onde prises comme base. La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW) est l'une des méthodes les plus précises.

Dans cette méthode aucune hypothèse de forme particulière n'est faite au niveau du potentiel. La méthode des ondes planes augmentées linéarisées (LAPW : linearized augmented plane wave), développée par *Andersen*, est fondamentalement une modification de la méthode des ondes planes augmentées (APW) développée par *Slater*.

V.1 Principe de l'énergie de linéarisation

Les fonctions de base à l'intérieur de la sphère sont des combinaisons linéaires des fonctions radiales $U_l(r)Y_{lm}(r)$ et leurs dérivés $\dot{u}_l(r) Y_{lm}(r)$ par rapport à l'énergie. Les fonctions sont définies comme dans la méthode (APW) et la fonction doit satisfaire la condition suivante :

$$\left\{ -\frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{r^2} + V(r) - E_l \right\} r\dot{u}_l(r) = rU_l(r). \quad (\text{II.27})$$

La fonction d'onde s'écrit comme suite :

$$\phi(r) = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \sum_G C_G e^{i(G+K)r} & r > r_0 (I) \\ \sum_{lm} [A_{lm} U_l(r) + B_{lm} \dot{U}_l(r)] Y_{lm} & r < r_0 (MT). \end{cases} \quad (\text{II.28})$$

Où:

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

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

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

$$U_l(E, r) = U_l(E_l, r) + (E - E_l) \dot{U}_l(E_l, r) + 0((E - E_l)^2) \quad (\text{II.29})$$

Où : $0((E - E_l)^2)$ représente l'erreur quadratique énergétique.

Avec cette procédure la précision est moins bonne que celle de la méthode APW. Les erreurs introduites dans le calcul de la fonction d'onde et de l'énergie, sont de l'ordre $(E - E_l)^2$, $(E - E_l)^4$ respectivement. Les fonctions LAPW forment une bonne base qui permet, avec un seul E_l , d'obtenir toutes les bandes de valence dans une grande région d'énergie. Lorsque cela n'est pas possible, on peut généralement diviser en deux parties la fenêtre énergétique, ce qui est une grande simplification par rapport à la méthode APW. En général, si U_l est égale à zéro à la surface de la sphère, sa dérivée \dot{U}_l sera différente de zéro. Par conséquent, le problème de la continuité à la surface de la sphère MT ne se posera pas dans la méthode LAPW [20].

Pour obtenir de bons résultats, il faut que le choix du paramètre d'énergie E_l soit au centre de la bande du spectre d'énergie, car comme on a déjà vu, les erreurs trouvées dans la fonction d'onde, ainsi que dans les énergie de bandes sont de l'ordre de $(E - E_l)^2$ et $(E - E_l)^4$ respectivement. Dans le cas où le paramètre d'énergie E_l est égal à la valeur E , la méthode LAPW est réduite à la méthode APW.

On peut optimiser le choix de ce paramètre E_l , on calculant l'énergie totale du système pour plusieurs valeurs de E_l , et en sélectionnant le paramètre qui donne l'énergie la plus basse. La condition d'orthogonalité des fonctions radiales aux états du cœur a le même paramètre d'énergie E_l , donc la méthode des ondes planes augmentées LAPW dépend du choix de E_l . Le chevauchement entre les états du cœur et les bases LAPW conduit à l'apparition de faux états

du cœur, c'est ce qu'on appelle les bandes fantômes. Cependant si le paramètre d'énergie est égal à l'énergie de l'état du cœur, ce problème est résolu.

V.2 Construction des fonctions radiales

Les fonctions de base de la méthode FP-LAPW sont des ondes planes dans la zone interstitielle. Elles sont développées sous la forme de fonctions radiales numériques à l'intérieur des sphères MT « Muffin-Tin » à condition que les fonctions de base et leurs dérivées soient continues à la surface de la sphère MT. Ainsi la construction des fonctions de base de la méthode FP-LAPW revient à déterminer :

- Les fonctions radiales $U_l(r)$ et leurs dérivées par rapport à l'énergie $C_l(r)$.
- Les coefficients A_{lm} et B_{lm} qui satisfont aux conditions aux limites.

Les conditions aux limites fournissent un moyen simple pour la détermination du cut-off du moment angulaire L_{\max} et pour la représentation du cut-off G_{\max} des ondes planes dans la sphère de MT pour un rayon R_s . Une stratégie raisonnable consiste à choisir ces cut-off, tels que $R_s G_{\max} = L_{\max}$, ce qui est réalisé en pratique puisque la convergence des calculs de FPLAPW est assurée pour $R_s G_{\max}$ compris entre 7 et 9.

On note aussi qu'il y a deux types de fonctions radiales : les fonctions radiales non relativistes et les fonctions radiales relativistes.

V.3 Amélioration de méthode FP-LAPW

Le but de la méthode LAPW est d'obtenir des énergies de bande précises au voisinage des énergies de linéarisation E_l [21]. Dans la plupart des matériaux, il suffit de choisir ces énergies au voisinage du centre des bandes. Ceci n'est pas toujours possible et il existe des matériaux auxquels le choix d'une seule valeur de E_l n'est pas suffisant pour calculer toutes les bandes d'énergie, c'est le cas pour les matériaux ayant des orbitales $4f$ [22, 23] et les métaux de transition [24, 25], c'est le problème fondamental de l'état de semi-cœur qui est intermédiaire entre l'état de valence et celui de cœur. Pour pouvoir remédier cette situation on a recours soit à l'usage des fenêtres d'énergies multiples, soit à l'utilisation d'un développement en orbitales locales.

V.4 Les fenêtres d'énergie de linéarisation

La technique la plus utilisée pour traiter le problème du semi-cœur est celle qui consiste à diviser le spectre énergétique en fenêtre dont chacune correspond à une énergie E_l cette procédure de traitement est illustrée dans la figure (II.1).

Dans ce traitement par le moyen de fenêtres, une séparation est faite entre l'état de valence et celui de semi-cœur où un ensemble de E_l est choisi pour chaque fenêtre pour traiter les états correspondants. Ceci revient à effectuer deux calculs par la méthode LAPW, indépendants, mais toujours avec le même potentiel.

La méthode FP-LAPW est basée sur le fait que les fonctions U_l et \dot{U}_l sont orthogonales à n'importe quel état propre du cœur et, en particulier, à ceux situés à la surface de la sphère. Cependant, les états de semi-cœur satisfont souvent à cette condition, sauf s'il y a la présence de bandes « fantômes » entre l'état de semi-cœur et celui de valence.

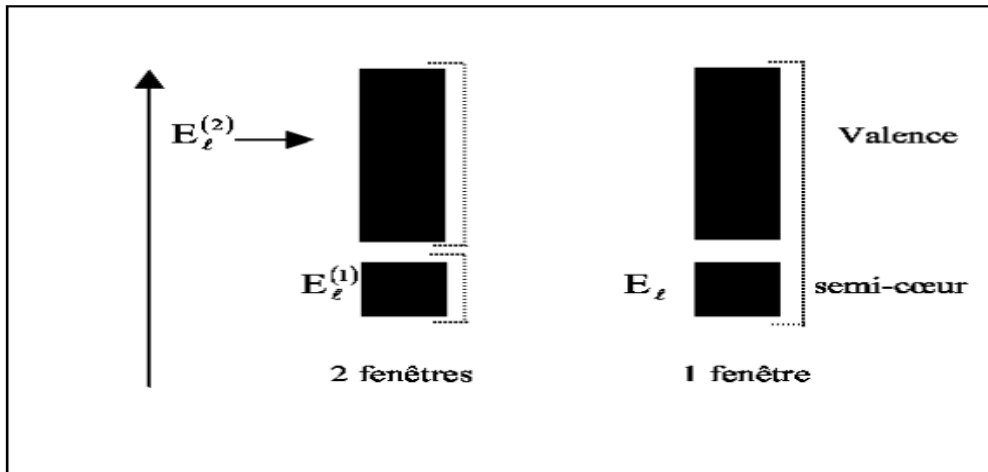


Figure 4: les fenêtres d'énergie multiple

V.6 Développement en orbital local

Dans cette technique, on traite tous les états énergétiques avec une seule fenêtre d'énergie. Takeda, Perta, Smrka, Shaughnessy et Singh proposent une combinaison linéaire de deux fonctions radiales. Les dérivés de ces fonctions par rapport à l'énergie sont égaux, mais les énergies de linéarisation correspondantes sont différentes. La fonction propre a la forme suivante :

$$\phi_{lm} = [A_{lm}U_l(r, E_{1,l}) + B_{lm}\dot{U}_l(r, E_{1,l}) + C_{lm}U_l(r, E_{2,l})]Y_{lm}(r). \quad (\text{II.30})$$

Où C_{lm} : sont ses coefficients possédant la même nature de coefficients A_{lm} et B_{lm} .

V.7 Traitement des effets de spin-orbital

Le terme de spin-orbite (négligé dans l'approximation relativiste) est important pour le calcul de la structure de bandes et des propriétés électroniques des matériaux qui contiennent des éléments lourds ou les substances magnétiques. Les éléments de la matrice de spin-orbite à l'intérieur d'une sphère peuvent être calculés, à priori, comme suit :

$$\begin{aligned}
\langle \varphi_G^\sigma | H^{so} | \varphi_{G'}^{\sigma'} \rangle &= \sum_{lm'l'm'} [A_{lm}^*(G) A_{l'm'}(G) \langle U_{lm}^\sigma | H^{so} | U_{l'm'}^{\sigma'} \rangle] \\
&+ + B_{lm}^*(G) A_{l'm'}(G) \langle \dot{U}_{lm}^\sigma | H^{so} | U_{l'm'}^{\sigma'} \rangle + A_{lm}^*(G) B_{l'm'}(G') \langle U_{lm}^\sigma | H^{so} | \dot{U}_{l'm'}^{\sigma'} \rangle \\
&+ B_{lm}^*(G) B_{l'm'}(G') \langle \dot{U}_{lm}^\sigma | H^{so} | \dot{U}_{l'm'}^{\sigma'} \rangle
\end{aligned}$$

Avec :

$$\langle U_{lm}^\sigma | H^{so} | U_{l'm'}^{\sigma'} \rangle 4\pi\sigma u'(x_\sigma^+ Y_{lm}^* \sigma \cdot LY_{l'm'}, x_{\sigma'}) \int dr P_l P_{l'} \left(\frac{1}{2mc}\right)^2 \frac{1}{r} \frac{dv}{dr} \quad (\text{II.31})$$

Où P_l est la partie la plus importante de la fonction radiale U_l et V la partie sphérique du potentiel [26].

VI. Le code Wien2k

Le code Wien2k est une implémentation de la méthode FP-LAPW. Ce programme a été conçu par Blaha et ses collaborateurs [27]. Ses applications sont nombreuses, telles que le gradient du champ électrique [28, 29], les systèmes supraconducteurs à haute température [30], les minéraux [31], les surfaces des métaux de transition [32], les oxydes non ferromagnétiques [33]. Le code Wien2k est constitué de plusieurs programmes indépendants.

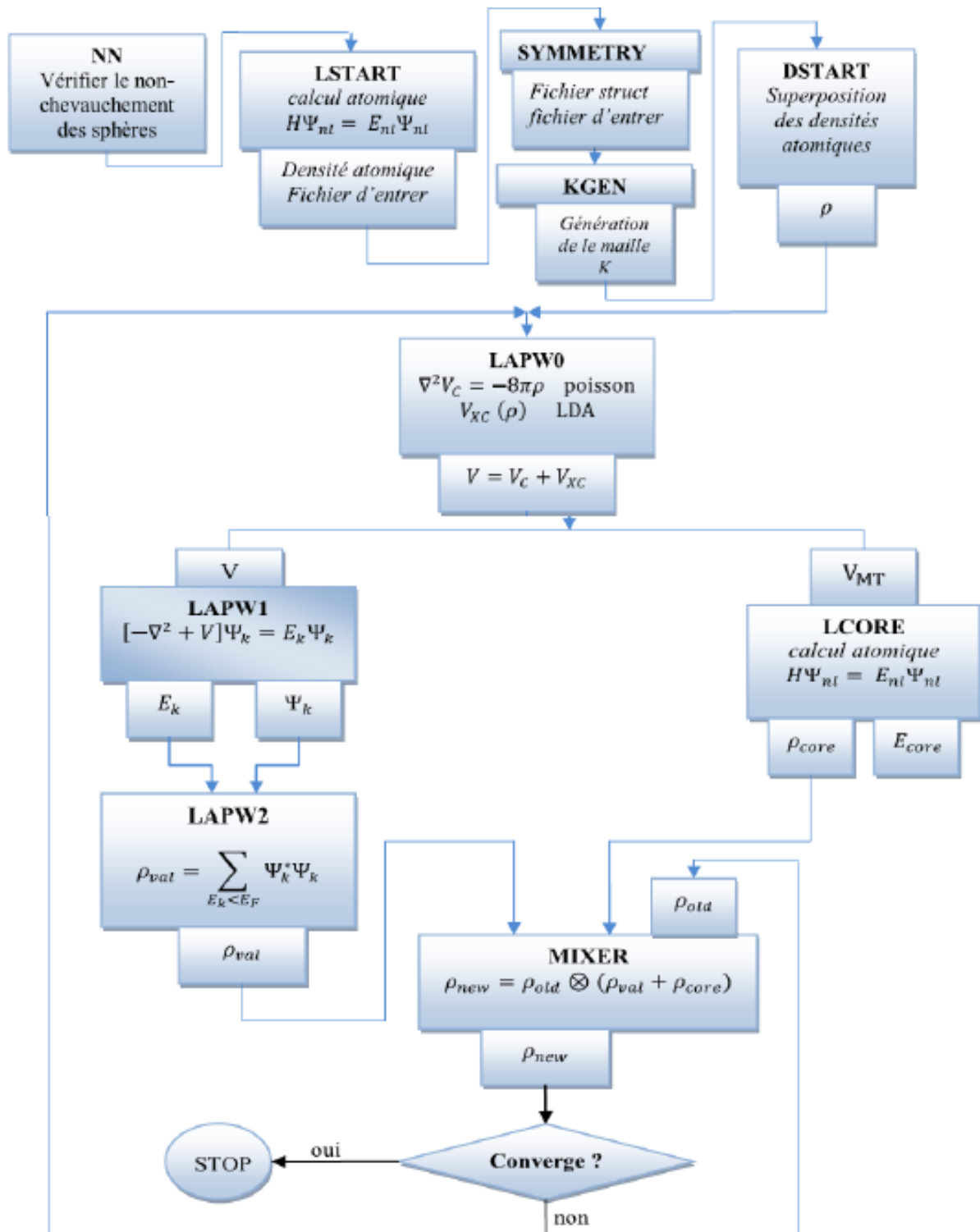


Figure 5: Le code wien2k

Références Bibliographiques

- [1] S. Benyetou, thèse doctorat, Calcul de premier principe de quelques propriétés physiques de quelques alliages semi-conducteurs, Université Mohamed Khieder Biskra, 2016
- [2] Z. Touhami, Chapitre 1 Théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) (pdf), <http://dSPACE.univ-msila.dz>, 2016.
- [3] Ravo Tokiniaina Ranaivoson, Raelina Andriambololona, Hery Andrianiaina, Rakotoson Hanitriarivo, La Théorie de la Fonctionnelle de la Densité et ses applications en Nano- technologie, Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (INSTN-Madagascar)BP 3907, Antananarivo 101, Madagascar.
- [4]<https://fr.m.wikipedia.org/wiki/th/A90rie-de-la-fonctionnelle-de-la-densité/c3/A9>
- [5] A. M. Dirac, « Quantum mechanics of Many –Electron systems ».26/4/1929
- [6] R. M. Martin, Electronic Structure, “Basic Theory and Practical methods”, Cambridge University Press, (2004).
- [7] Born, M., Oppenheimer, J.R.: On the Quantum theory of molecules. Ann. Phys. 389, 457–484, (1927).
- [8] V. Fock, Z.phys.61,126(1930) ; 62,795(1930)
- [9] D. Vogel, p. krueger, and J. pollmann, phys. Rev. B55, 12 836(1997)
- [10]Robert G. parr et weitaoyang, op. Cit., 47.
- [11] Norman H. March, op. Cit, p 24.
- [12] P. Hohenberg and W. Kohn, Phys. Rev. 136, B864 (1964).
- [13] W. Kohn and L.J. Sham phys. Rev 140 (4A)1133(1965).
- [14] D.M. Ceperley, B.J. Alder. Physical Review Letters, 45(7), (1980), 566.
- [15] L. Hedin, B. I. Lundqvist. J. Phys. C4, (1980), 2064.
- [16] Perdew, J. Chevary, J.A. Vosko, S.H, Jacjkson, KA., Perderson, M.R., singh, D.J, F.Olhais, C. Phys. Rev. B46, (1992), 6671.
- [17] J.P. Perdew et A. Zunger. Physical Review B, 23(1981),5048.
- [18] E. Wigner , Phys. Rev. 46, 1001 (1934).
- [19] <https://tel.archives.fr> PDF Wikipédia
- [20] O.K. Andersen, phys. Rev B 12, 3060 (1975).
- [21] O.K. Andersen, Phys. Rev. B 12 (1975) 3060.
- [22] D. J. Singh, Phys. Rev. B 44, (1991), 7451.

- [23] S. Goedecker, K. Maschke, Phys. Rev. B 42, (1990), 8858.
- [24] D. J. Singh and H. Krakauer, Phys. Rev. B 43 (1991) 1441.2093.
- [25] P. J. Stiles, Sol. Stat. Com. 11, (1972) 1063.
- [26] D. J. Singh, K Schwarz and P. Blaha, Phys. Rev. B 46, (1992), 5849.
- [27] Z.TOUHAMI, Chapitre (2), la méthode des ondes planes augmentées linéarisée,(FP-LAPW pdf) <http://dspace.univ-msila.dz>.
- [28] P. Blaha, K. Schwarz, G.K.H. Madsen, D. Kvasnicka and J. Luitz, WIEN2k, "AnAugmented Plane Wave Plus Local Orbitals Program for calculating Crystal Properties",Vienna University of Technology, Vienna, Austria (2008).
- [29] W. A. Harrison, Phys. Rev. B 10, (1974) 767.
- [30] W. A. Harrison and S.Ciraci, Phys. Rev. B 10, (1974) 1516.
- [31] S. P .Kowaslczyk, L. Ley, F. R. Mc Feely and D. A. Shirley, J. Chem 61, (1974) 2850.
- [32] D. R. Penn, Phys. Rev. 128, (1962)
- [33] P. J. Stiles, Sol. Stat. Com. 11, (1972) 1063.

Chapitre III

I. Introduction

Nous présentons dans ce chapitre une application de la méthode des ondes planes augmentées linéarisées (*FP-LAPW*) inclus dans le code Wien2k afin d'analyser et d'interpréter, les résultats obtenus après le calcul des propriétés structurales, électroniques et optique d'un composé binaire *SrTe* semi-conducteur. Ce type de semi-conducteurs caractérisés par une bande interdite large, ils prennent la structure de phase rock-salt (NaCl). Cette structure est composée de deux sous réseaux cubiques à faces centrées dont la maille comporte 4 motifs SrTe concernant le Tellure de Strontium [1].

II. Méthode de calcul

Les propriétés physiques du SrTe ont été optimisés en utilisant le code Wien2k_2011 [2, 3] qui est une implémentation de la méthode des ondes planes augmentées et linéarisées (*FP-LAPW*) [4], cette dernière est basée sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) [5,6].

Le potentiel d'échange et corrélation des différentes propriétés structurales, électroniques et optiques a été traité dans le cadre de l'approximation du gradient généralisée (GGA) de Wu et Cohen (WC) [7].

Dans la méthode *FP-LAPW*, la fonction d'onde, la densité de charge et le potentiel sont développés différemment dans les deux régions de la cellule unitaire. À l'intérieur des sphères non superposées de rayon R_{MT} autour de chaque atome, le développement des harmoniques sphériques est utilisé, tandis que dans l'espace restant de la cellule unitaire (région interstitielle), un ensemble de base d'ondes planes est choisi. Nous utilisons un paramètre R_{MT} $K_{max} = 8$ qui déterminent la taille de la matrice, où R_{MT} désigne le plus petit rayon de sphère atomique et K_{max} est la norme du plus grand vecteur K dans le développement en ondes planes des fonctions propres. La valeur maximale du vecteur d'onde utilisé pour le développement en ondes planes de la densité de charges a été limitée à $G_{max}=14(\text{Ryd})^{1/2}$.

La valeur maximale du moment angulaire l_{max} pour le développement de la fonction d'onde à l'intérieur des sphères harmoniques a été confinée à $l_{max}=10$. Le rayon muffin-tin a été choisi pour être 2,2 et 2,4 *a.u* pour Sr et Te, respectivement. Un maillage de 47 points spéciaux pour les composés binaires a été pris dans la zone irréductible de la zone de Brillouin pour le calcul de l'énergie totale. La coupure de l'onde plane et le nombre de points k ont été modifiés pour assurer la convergence totale de l'énergie [8].

III. Propriétés structurales

La première étape dans ce travail est l'optimisation structurale c'est-à-dire la détermination des paramètres d'équilibre de notre composé binaires SrTe à savoir le paramètre du réseau (a), le module de compressibilité (B) et de sa dérivée (B').

Pour cela, nous avons effectué un calcul auto-cohérent (self consistent) de l'énergie totale pour plusieurs valeurs du paramètre de réseau prises au voisinage du paramètre expérimental. Les paramètres d'équilibre sont obtenus en ajustant la courbe de l'énergie totale obtenue à l'aide de l'équation d'état de Murnaghan donnée par[9] :

$$E(V) = \frac{B_0 V}{B'_0} \left[\frac{(V_0/V)^{B'_0}}{B'_0 - 1} - 1 \right] + cste \quad (\text{III.1})$$

Où E_0 , V_0 , B_0 et B'_0 sont les valeurs à l'équilibre de l'énergie totale, du volume, du module de compressibilité et sa dérivée par rapport à la pression.

$$B = V \frac{\partial^2 E}{\partial V^2} \quad (\text{III.2})$$

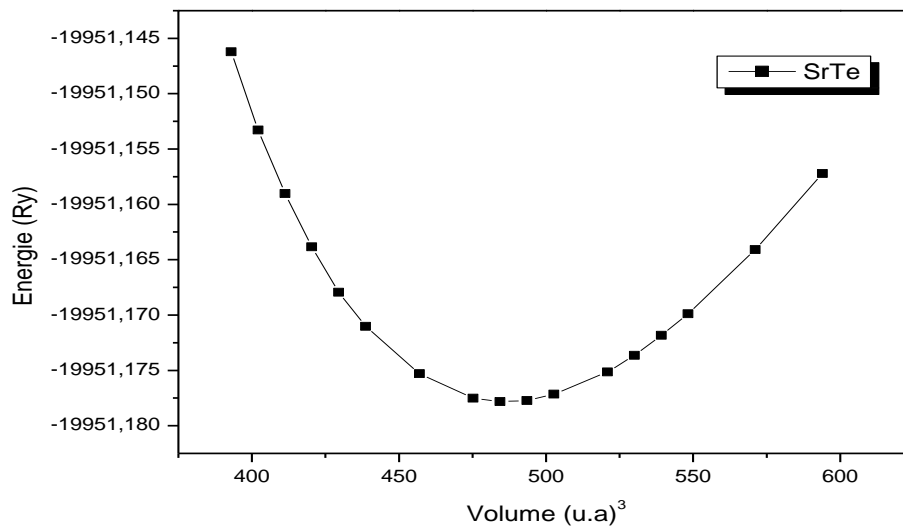


Figure 6 : Variation de l'énergie totale en fonction du volume en (\AA^3) du composé binaire SrTe avec l'approximation: WC-GGA.

La figure 6 illustre la variation de l'énergie en fonction du volume, $E(V)$, du composé binaire SrTe obtenue dans le cadre de l'approximation WC-GGA. Le paramètre du réseau d'équilibre a_0 est donné par le minimum de la courbe de l'énergie totale E_{tot} en fonction du volume.

Tableau 3 : Paramètre du réseau a en (Å), le module de compressibilité B en (GPa) pour le composé SrTe comparés à d'autres résultats expérimentaux et théoriques

	Paramètre de réseau a (Å)	Module de compressibilité B (GPa)
Ce travail	6.61	35.4
Expt.	6.66 ^a	39.5 ^d
Autres calculs	6.76 ^b , 6.48 ^c	36 ^c , 44 ^e

^a Ref[10], ^bRef[11], ^cRef[12], ^d Ref[13], ^e Ref[14],

VI. Propriétés électroniques

VI.1 Structure de bande

La structure de bande représente les énergies possibles d'un électron en fonction du vecteur d'onde. Ces bandes sont représenté dans l'espace réciproque pour simplifier les calculs, cet espace identifie la première zone de Brillouin qui définie de manière unique comme la maille primitive Cette première zone possède la forme d'un octaèdre tronqué par les six faces d'un cube dans la structure Rock Salt (figure 3). Cet espace de réseau réciproque est caractérisé par des points et des lignes de haute symétrie [15].

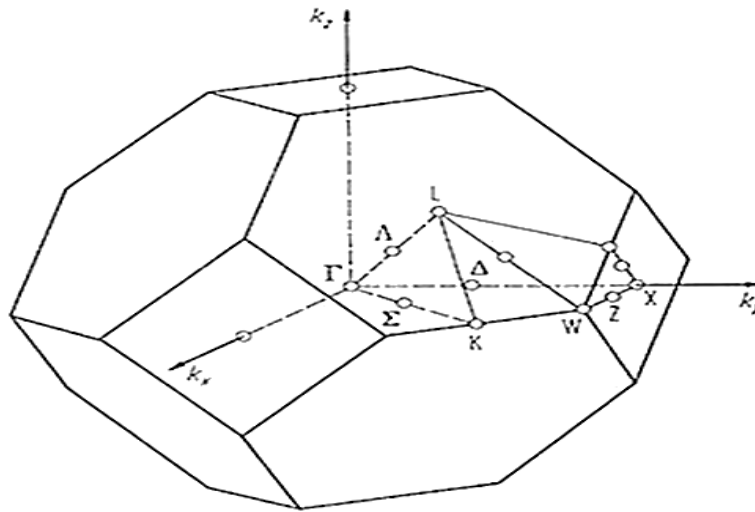


Figure 7. Première zone de Brillouin de la maille CFC avec les points et les lignes de haute symétrie.

Dans les systèmes périodiques, l'énergie d'une bande varie en fonction de k . La **figure7** montre la zone de Brillouin liée à la structure cubique simple, avec les points k de haute symétrie, utilisées dans les calculs de structure bande exécutés dans la présente étude. Ces points sont notés par Γ , K , X , L , W et Z dont les significations sont les suivantes:

Point Γ : Le centre de la première zone de Brillouin, $\mathbf{K}_\Gamma = (0, 0, 0)$.

Point K: Le milieu d'une arête joignant deux faces hexagonales.

Point X: Le centre l'octaèdre appartenant à l'un d'une face K_x, K_y, K_z avec l'une des faces carrées carrée de des axes.

Point L: Le centre d'une face hexagonale.

Point W: Se trouve sur l'un des sommets des faces carrées.

Point Z: Se situe sur la ligne qui joint le centre d'une face carrée des coins de l'octaèdre.

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés au calcul des structures de bandes du SrTe afin de déterminer les gaps énergétiques de ce matériau et ainsi la détermination du domaine de son application. Les structures de bandes ont été calculées avec le paramètre cristallin optimisé avec l'approximation, WC-GGA, dans le but d'améliorer les valeurs des gaps énergétiques et les rapprocher à celles de l'expérimental.

La figure suivante représente les structures de bandes du composé binaire le SrTe calculée le long des différentes directions de haute symétrie dans la première zone de Brillouin. A partir de cette figure on constate que le sommet de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction se situent au point Γ et X. Respectivement, donc ce composé possède un gap indirect dans la direction $\Gamma \rightarrow X$.

Tableau 4 : Gap énergétiques du SrTe calculés par la GGA et comparés à d'autres valeurs théoriques.

Eg (eV)	1.576
Expt	/
Other calculations	1.71 ^a , 1.807 ^b

^aRef.[16], ^bRef.[17]

D'après le **tableau 4**, on remarque que le gap énergétique obtenu en utilisant l'approximation WC-GGA est proche des résultats des calculs théoriques disponibles. Malheureusement pas de résultats expérimentaux disponibles à nos connaissances.

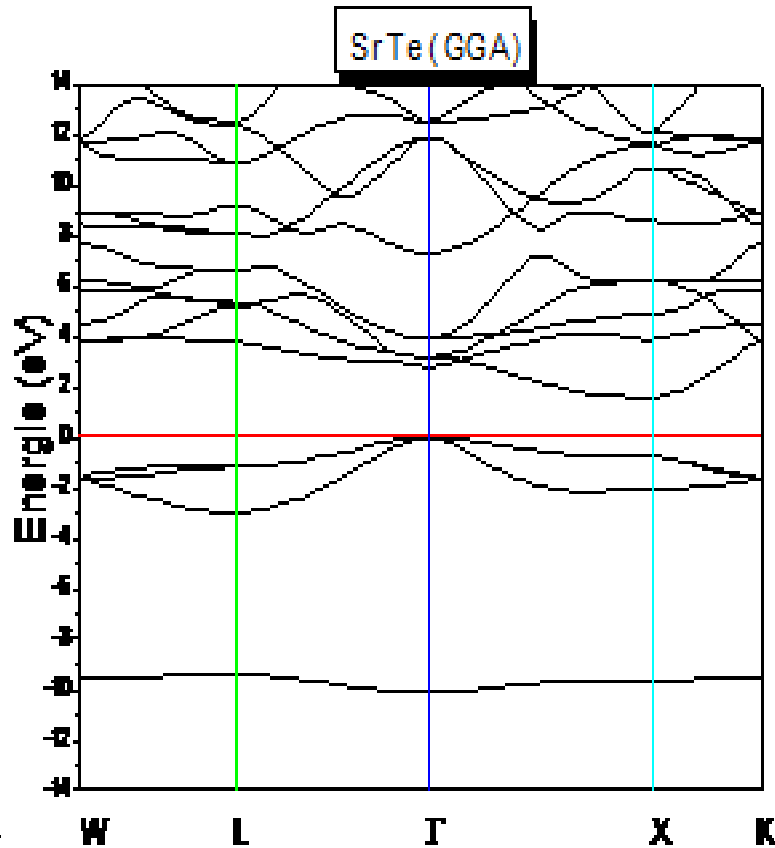


Figure 8 : Structure de bandes du composé SrTe en utilisant l'approximation (GGA).

A partir de la **figure 8**, on peut clairement déduire que le gap d'énergie concernant le composé binaire SrTe est un gap indirect Γ -X, le maximum de la bande de valence est au point Γ et le minimum de la bande de conduction est au point X.

V. Propriétés optiques

Le terme propriété optique décrit le comportement d'un matériau lorsqu'un rayonnement électromagnétique (lumière) est incident sur la surface du matériau [18]. Ces propriétés optiques sont affectées par les propriétés électriques [19], des transitions électroniques entre les niveaux de la bande de valence et de la bande de conduction. Les transitions peuvent être directes ou indirectes.

Notre étude a été réalisée sur divers paramètres optiques tels que la fonction diélectrique, la réflectivité et l'indice de réfraction. La fonction diélectrique $\epsilon(\omega)$ l'une des caractéristiques optiques la plus importante des matériaux. Dans le cas d'un champ dynamique, la fonction diélectrique $\epsilon(\omega)$ est une fonction complexe [20], qui représente la réponse d'un système à un champ électromagnétique externe. La connaissance de la constante

diélectrique permet de calculer les différentes fonctions optiques telles que l'indice de réfraction, la réflectivité etc... La connaissance de l'indice de réfraction et des paramètres diélectriques optiques est essentielle pour les dispositifs tels que les cristaux photoniques, les guides d'ondes, les cellules solaires et les détecteurs[21].

V.1 Rappel théorique

La connaissance des propriétés optiques d'un matériau semi-conducteur est cruciale pour la fabrication des composants optoélectroniques. Pas mal d'importantes relations qui peuvent être tirées en connaissant la fonction diélectrique complexe $\varepsilon(\omega)$.

La fonction diélectrique complexe s'écrit :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega) \quad (\text{III.3})$$

Cette fonction complexe décrit les propriétés optiques du milieu pour toutes les énergies du photon $E = h\omega$, c'est-à-dire la réponse du milieu au champ électromagnétique $\vec{E}(r)$.

La fonction diélectrique complexe $\varepsilon(\omega)$ dépend de la fréquence ω . C'est une grandeur tensorielle qui devient un scalaire si le solide est de symétrie cubique.

La partie réelle $\varepsilon_1(\omega)$ et la partie imaginaire $\varepsilon_2(\omega)$ de la fonction diélectrique sont reliées par les relations de Kramers-Kronig.[22]:

$$\varepsilon_1(\omega) = 1 + \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{\omega' \varepsilon_2(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega'. \quad (\text{III.4})$$

$$\varepsilon_2(\omega) = -\frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{\varepsilon_1(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega'. \quad (\text{III.5})$$

L'indice complexe de réfraction $n^*(\omega)$ est donné par la relation

$$n^*(\omega) = n(\omega) + ik(\omega) = (\varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega))^{\frac{1}{2}} \quad (\text{III.6})$$

Où :

$n(\omega)$: est l'indice réel de réfraction

$k(\omega)$: est le coefficient d'extinction (indice d'atténuation).

Les constantes optiques $n(\omega)$ et $k(\omega)$ sont positives et peuvent être évaluées théoriquement ou expérimentalement.

$$\varepsilon_1 = n^2 - k^2 ; \varepsilon_2 = 2nk. \quad (\text{III.7})$$

Les relations de Kamers-Kronig peuvent aussi relier $n(\omega)$ et $k(\omega)$ selon les équations :

$$n(\omega) = 1 + \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\omega' k(\omega')}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \quad (\text{III.8})$$

$$k(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \int_0^\infty \frac{n(\omega') - 1}{(\omega')^2 - \omega^2} d\omega' \quad (\text{III.9})$$

L'indice de réfraction peut être évalué selon la relation suivante :

$$n(\omega) = \left[\frac{\varepsilon_1(\omega)}{2} + \frac{\sqrt{\varepsilon_1^2(\omega) + \varepsilon_2^2(\omega)}}{2} \right]^{1/2} \quad (\text{III.10})$$

A basse fréquence ($\omega = 0$), l'indice de réfraction $n(\omega)$ devient alors :

$$n(\omega) = \varepsilon_1^{1/2}(0) \quad (\text{III.11})$$

La réflectivité $R(\omega)$ associée a une incidence normale s'écrit :

$$R(\omega) = \frac{(n(\omega) - 1)^2 + k(\omega)^2}{(n(\omega) + 1)^2 + k(\omega)^2} \quad (\text{III.12})$$

V.2.L'indice de réfraction

L'indice de réfraction d'une matière, est une grandeur sans dimension qui caractérise le pouvoir qu'a cette matière, à ralentir et à dévier la propagation de la lumière à travers un matériau, et elle provient du phénomène de réfraction[23]. Il dépend de la longueur d'onde de mesure et il est considéré une des caractéristiques importante de l'environnement.

La connaissance de ce paramètre est très importante pour un matériau destiné à être utilisé dans des dispositifs optiques tels que les cristaux photoniques.

La **figure 9** montre le spectre d'indice de réfraction (η) du composé étudié. La valeur de $\eta(\omega)$ à la limite de fréquence nulle du photon incident est appelée indice de réfraction statique $\eta(0)$. La valeur statique du SrTe est (**2,51**). D'autre part, un grand pic observé dans l'intervalle d'énergie entre (0,42 eV et 8,47 eV) qui est traduit par la transition des électrons de la bande de valence à la bande de conduction, au delà de ces énergies l'indice de réfraction devient faible.

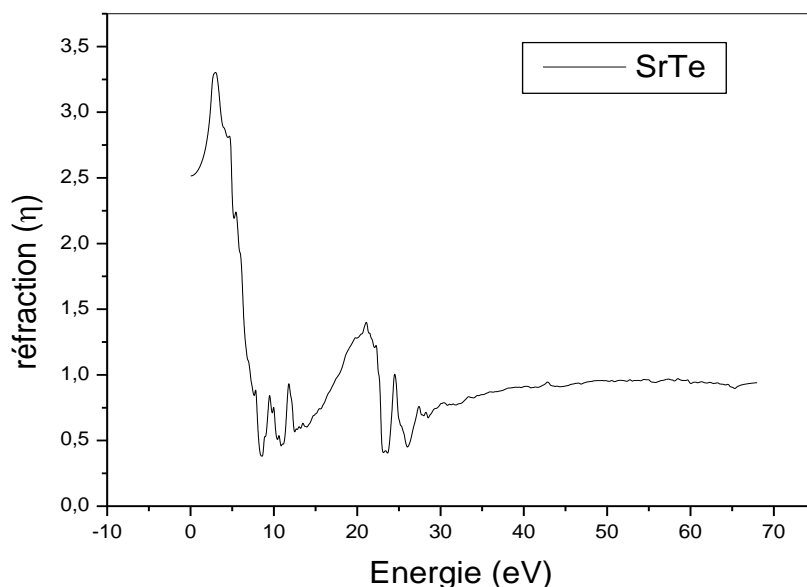


Figure 9 : Variation de l'indice de réfraction du SrTe

On remarque que l'indice de réfraction n du SrTe a une valeur très importante qui est **2,51**. Ceci est relié au fait que l'indice de réfraction n est inversement proportionnel au gap d'énergie. La valeur de l'indice de réfraction calculée par l'approximation GGA et en utilisant la méthode FP-LAPW est supérieur à d'autres calculs théoriques. Notons à la fin que dans la littérature, on ne trouve pas des valeurs expérimentales de l'indice de réfraction pour SrTe.

Tableau 5: Variation de l'indice de réfraction du SrTe

n	2.51
Expt.	/
Autres calculs	2.41 ^{a,b} 2.44 ^c

^aRef.[24], ^bRef.[25], ^cRef[26]

V.3 La fonction diélectrique

La fonction diélectrique complexe est une fonction qui exprime la constante diélectrique d'une substance en fonction de la fréquence et montre comment les propriétés optiques d'un matériau dépendent de la longueur d'onde incidente de la lumière. Utilisés dans la littérature étant la permittivité diélectrique et la constante diélectrique, décrivent la réponse du matériau suite à l'application d'un champ électrique[27].

En général, la "fonction diélectrique" est déterminée comme une quantité complexe en fonction de la fréquence et du vecteur de nombre d'onde. À partir de la fonction diélectrique, les propriétés optiques d'une substance (telles que l'indice de réfraction et la réflectivité en fonction de la fréquence) sont dérivées d'une onde lumineuse oscillante [28]. La quantité $\epsilon_1(\omega)$ représente la polarisation d'un matériau lorsqu'un champ électrique est appliqué en raison de la création de dipôles électriques dans le matériau.

❖ Evolution de la partie réelles de la fonction diélectrique

La quantité $\epsilon_1(\omega)$ représente la polarisation d'un matériau lorsqu'un champ électrique est appliqué en raison de la création de dipôles électriques dans le matériau [28].

On peut observer sur **figures 10**, la partie réelle $\epsilon_1(\omega)$ en fonction de l'énergie a diminué vers la valeur zéro, ce qui indique que l'ensemble de la lumière est réfléchi sur l'échantillon dans cette région.

Cette partie ayant un pic principal est suivi par une structure oscillante autour de zéro puis le spectre devient négatif, dans l'intervalle d'énergie (5,87 eV – 9,32 eV) et (22 eV– 23,6 eV) caractéristique de la propagation d'une onde électromagnétique sur la surface du composé. Par contre l'intervalle entre (0 eV à 4,4 eV) signifie que la propagation de l'onde électromagnétique s'effectue à l'intérieur de la structure avec une forte atténuation qui explique une forte absorption. Ces matériaux ont une fonction diélectrique similaire dans la gamme d'énergie indiquée à la **figures 10**, À une fréquence nulle $\epsilon_1(\omega)$, la partie réelle de la fonction diélectrique est appelée constante diélectrique statique. $\epsilon_1(\omega)$.

Notre analyse de la courbe $\epsilon_1(\omega)$ montre que la variation de ϵ_1 atteint un pic aigu pour des faibles valeurs de l'énergie incidente, puis se rapproche d'une valeur négative dans une région d'énergie moyenne, pour suivi d'une faible valeur positive dans la région de hautes énergies. Pour la composé binaires parents nous constatons un pic principal plus intense autour de 2,72 eV. La partie réelle de la fonction diélectrique s'annule aux énergies 2.51eV pour SrTe. La valeur calculée $\epsilon_1(0)$ pour SrTe est 6,32 .

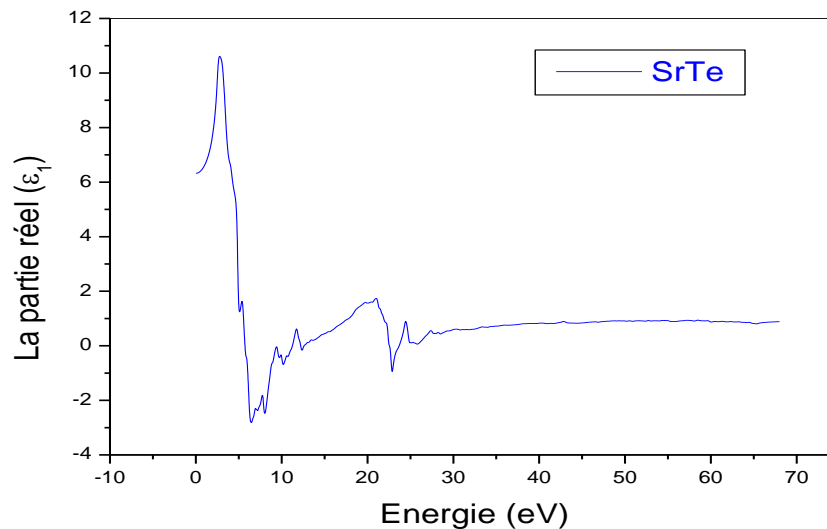


Figure 10: Variation de la partie réelle de la fonction diélectrique en fonction d'énergie pour SrTe

Les valeurs de $\epsilon_1(0)$ sont énumérées dans **Le tableau 6**. Dans ce tableau, nous avons également présenté des valeurs de $\epsilon_1(0)$ mesurées expérimentalement et calculées théoriquement.

Tableau 6 : Valeurs de la partie réelle de la fonction diélectrique $\epsilon_1(0)$ de SrTe

$\epsilon_1(0)$	6,32
Expt	4.91 ^a
Autre calcules	5.99 ^b

^a Réf. [29], ^b Réf.[30]

❖ Evolution de la partie imaginaire de la fonction diélectrique

La partie imaginaire ϵ_2 de la fonction diélectrique représente l'absorption dans un matériau [31]. Quand un matériau est transparent, $\epsilon_2(\omega)$ est nul, mais devient non nul lorsque l'absorption commence.

De plus, La partie imaginaire exprimant les pertes de polarisation à une fréquence est proportionnelle à la somme de toutes les transitions entre les états occupés et les états inoccupés avec un écart d'énergie de $\hbar\omega$. Ça peut être observé dans **La figure 11** où la partie principale des spectres optiques est obtenue par la transition électronique de la bande de valence à la bande de conduction. L'énergie de seuil est indiquée par le premier point critique

de la fonction diélectrique, qui peut être considérée dans la partie imaginaire de la fonction diélectrique.

A partir de la **figure 11**, nous observons aussi l'existence d'un pic primaire maximum qui reflète l'absorption maximal de ces matériaux dans la région des basses énergies de **2.42 eV** à **8.47 eV**.

- La forte absorption dans la partie infrarouge et la limite supérieur de la région visible de ces matériaux.
- Il a été observé l'apparition d'un petit pic secondaire à côté du pic primaire dans la région d'énergies de **18 eV** à **23.9 eV**.

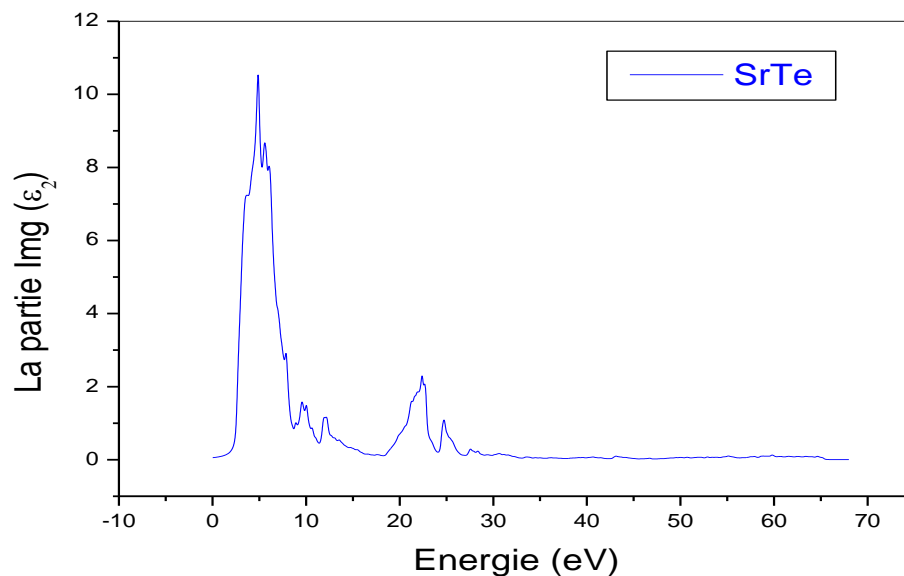


Figure 11: Variation de la partie imaginaire de la fonction diélectrique en fonction d'énergie pour SrTe

Le tableau 7 montre les points critiques de l'échantillon. Il a été rapporté que le composé étudié montre des excellentes propriétés qui peuvent être utilisées pour plusieurs applications telles que les champs électroniques, optiques, thermoélectriques et catalyseurs.

Tableau 7 : Valeur maximale de la partie imaginaire de la fonction diélectrique ϵ_2 (max) du SrTe

ϵ_2 (max)	10,48
Expt.	/
Autre calculs	9 ^a

^aRéf. [32]

V.5 Réflectivité

La réflectivité est une propriété optique d'un matériau, qui représente la proportion d'énergie électromagnétique réfléchi à la surface d'un matériau ayant une épaisseur telle que le facteur de réflexion qui ne change pas en augmentant son épaisseur, et aussi est définie comme la réduction de la puissance réfléchi causée par l'introduction d'un matériau absorbant [33].

Certains matériaux présentent une meilleure réflectivité par rapport à d'autres matériaux. La surface blanche montre une meilleure réflexion de la lumière. L'absorption est également une propriété optique très importante d'un matériau [34].

La Figure 12 : montre la réflectivité de la SrTe en fonction de l'énergie. Comme conclu de les courbes réelles et imaginaires du matériau étudié, tous les pics principaux dans la courbe sont causées par des transitions d'énergie inter-bandes. On peut noter que la réflectivité disparaît pour des énergies plus élevées.

On peut observer aussi à partir de la **Figure 12**, que la réflectivité soit nulle dans la région de 16,25 à 19 eV et elle prend la valeur maximale de **59%** dans la région des basses énergies.

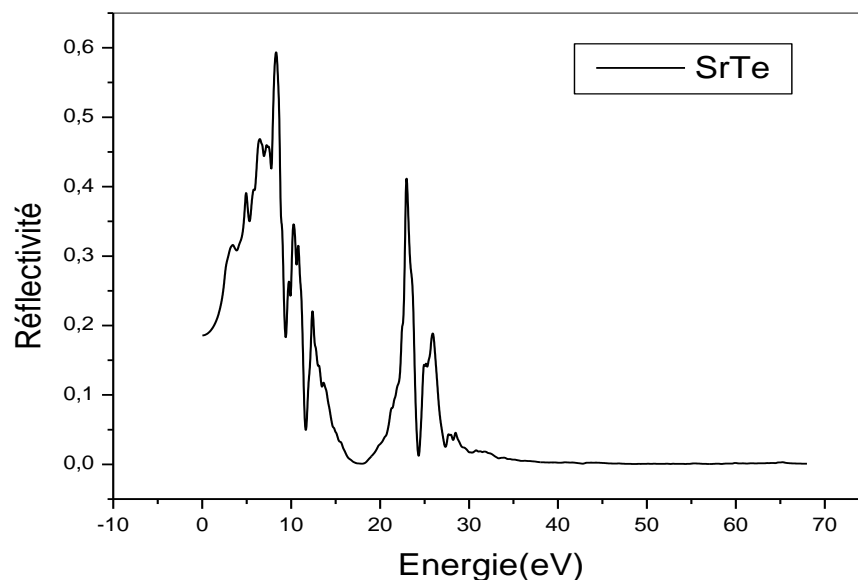


Figure 12 : variation de la réflectivité en fonction de l'énergie

On voit que la réflectivité pour (SrTe) à partir de $R(0)$ augmente et diminue doucement dans la région descendante (8 à 16,70 eV).

Le spectre de réflectivité Pour SrTe montre un pic aigu de la réflectivité se produit dans la région de basse énergie à 6,83 eV, (correspond à une réflectivité maximale de **59%**). La chute région pour SrTe se situe dans la gamme de 8,92 à 12,20 eV, tandis que la réflectivité à haute énergie contient des pics aigus dans la gamme d'énergie de 20 à 25,55 eV.

Références bibliographiques

- [1] Bhattacharjee, R., and Chattopadhyaya, S., *Mat. Chem. Phys.*, 199, 295-312, (2017).
- [2] P. Blaha, D. J. Singh, P. I. Sorantin, and K. Schwarz, "Electric-field-gradient calculations for systems with large extended-core-state contributions." *Physical Review B*, 46, 1321 (1992).
- [3] P. Blaha, K. Schwarz, G. K. Madsen, D. Kvasnicka, and J. Luitz, WIEN2K, An augmented plane wave + local orbitals program for calculating crystal properties, Karlheinz Schwarz, Techn. Universität Wien, Wien, Austria, 295 (2001).
- [4] O K. Andersen, *Phys. Rev. B* 42 (1975) 3063.
- [5] P. Hohenberg and W. Kohn, "Density functional theory (DFT)." *Phys. Rev.*, 136, B864 (1964).
- [6] W. Kohn and L. J. Sham, "Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects", *Physical Review*, 140, A1133 (1965).
- [7] Z. Wu and R E. Cohen, *Phys. Rev. B* 73 (2006) 235116.
- [8] F. Chouit, C. Sifi, M. Slimani, H. Meradji, S. Ghemid, R. Khenata, D. P. Rai & S. Bin Omran (2018): Theoretical analysis of the electronic, optical and thermal properties of lead strontium telluride alloys $Pb_{1-x}Sr_xTe$ ($x=0.0-1.0$), *Philosophical Magazine*, DOI: 10.1080/14786435.2017.1403055
- [9] F. D. Murnaghan, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 30 (1944) 5390.
- [10] H. G. Zimmer, H. Winzen and K. Syassen, *Phys. Rev. B* 32 (1985) 4066.
- [11] O. Madelung, M. Schulz, H. Weiss (Eds.), *Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology Landolt-Bornstein, New Series*, Springer, Berlin (1983).
- [12] R. Khenata, H. Baltache, M. Rerat, M. Driz, M. Sahnoun, B. Bouhafs, B. Abbar, *Physica B* 339 (2003) 208.
- [13] I.B. Shameen Banu, M. Rajagopalan, B. Palanivel, G. Kalpana, P. Shenbagaraman, J. *Low Temp. Phys.* 112(1998) 211.
- [14] M. Lach-hab, A. Dimitrios Papaconstantopoulos, M.J. Mehl, *J. Phys. Chem. Solids* 63 (2002) 833.
- [15] P. Kireev, *la physique des semi-conducteurs*, 2^{ème} édition Mir Moscou (1975).
- [16] S. Labidi, H. Meradji, M. Labidi, S. Ghemid, S. Drablia and F. El Haj Hassan, *Phys. Procedia* 2 (2009) 1205.
- [17] Y. Kaneko, K. Morimoto, T. Koda, *J. Phys. Soc. Jpn.* 52 (1985) 4385.
- [18] Optical properties of materials-Bartley.com, Explore Mechanical Engineering concepts, consulté le 11/5/22, site web, www:/bartleby.com
- [19] B.G. Lewis, D.C. Paine, *Mater. Res. Soc. Bull.*, 25 (2000) 22.

- [20] H. Luo, R. G. Greene and A. L. Ruoff . Phys. Rev. B 49 (1994) 15341.
- [21] F. Chouit ,thèse de doctorat,Etude ab-initio des différentes propriétés structurales, électroniques, optiques, thermodynamiques et thermiques des composés binaires et ternaires à base de Plomb,Université Badji Mokhtar, Annaba, (2018).
- [22] F. Marinelli, H. Dupin and A. Lichanot. J. Phys. Chem. Solids 61 (2000) 1707.
- [23] pierre.cb, Indice de réfraction, source : wikipédia, site web Techno-Science
- [24] Reddy R R *et al* 1993 Infrared Phys. **34** 103
- [25] Moss T S *et al* 1973 Semiconductor opto-electronics (London:Butterworths)
- [26] J. ZEROUAL, S. LABIDI, H. MERADJI, M. LABIDI and F. EL HAJ HASSAN, Abinitio calculations of fundamental properties of SrTe $_{1-x}$ O $_x$ alloys, 24 November 2015.
- [27] Z. Gaburro, ... L. Pavesi, in Encyclopedia of Condensed Matter Physics, 2005
- [28] Md. Afjalur Rahman, Md. Zahidur Rahaman, and Md. Atikur Rahman. Int. J. Mod. Phys. B30 (2016) 1650199.
- [29] M. E. Lines, Phys. Rev. B41 (1990) 3372.
- [30] F. Kootstra, P. L. de Boeij, J. G. Snijders, Phys. Rev. B62 (2000) 7071.
- [31] Borhan Arghavani Nia *et al* 2021 ECS J. Solid State Sci. Technol. **10** 113003
- [32] S. Chattopadhyaya, R. Bhattacharjee, J. Alloys Compd. 694 (2017) 1348.
- [33] D.Mecheli...F.Santom, Spectroscopic Methods For Nanomaterials Characterization, Micro and Nano Technologie, 2017.
- [34] A. NACEF , thèse de doctorat, Etude ab-initio des propriétés physico-chimiques d'oxydes transparents conducteurs de types de lafossite ABO $_2$, Université Mostaganem, (2020)

Conclusion Générale

Dans ce mémoire, nous avons appliqué la méthode des ondes planes augmentées et linéarisées à potentiel total *FP-LAPW* dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité *DFT* implémentée dans le code *Wien2k*, pour étudier les propriétés structurales, électroniques et optiques de composée binaire *SrTe*, qui se cristallisent dans une structure *NaCl*. Pour s'assurer de l'efficacité des résultats nous avons employé l'approximation du gradient généralisé *WC-GGA*.

Dans l'étude des propriétés structurales du composé binaire *SrTe* c'est-à-dire la détermination du paramètre de maille et du module de compressibilité, nous avons montré que nos résultats concordent raisonnablement avec les données expérimentales et avec d'autres résultats théoriques disponibles dans la littérature. La *WC-GGA* s'est révélé une approche efficace dans la détermination des paramètres d'équilibre. Donc, nous pouvons conclure que l'approximation *WC-GGA* a apporté des améliorations remarquables sur les propriétés structurales.

Concernant les propriétés électroniques, on a trouvé que ce composé binaire possèdent un gap indirect suivant la direction $\Gamma \rightarrow \mathbf{X}$, et les valeurs calculées de ce gap est en bon accord avec les résultats des autres travaux théoriques.

L'étude des propriétés optiques de ce composé est réalisée, à travers l'étude de la constante diélectrique et l'indice de réfraction en utilisant la transformation mathématique basé sur les relations de **Kramer-Kronig**. Nos résultats de l'indice de réfraction, la partie réelle et la partie imaginaire de la fonction diélectrique sont en bon accord avec les résultats expérimentaux disponibles ainsi que les résultats théoriques. Et aussi la réflectivité montre que le composé *SrTe* est un bon candidat pour des applications dans les champs de catalyseurs électroniques, optiques, thermoélectriques, et les recherche de nouvelles technologies propriétaires.

Finalement, Cette étude est prédictive en raison de l'absence de données expérimentales et peut être servir comme une base de données pour de futur travaux de recherche.