

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur
Université de Guelma

Faculté des Mathématiques et de l'Informatique et des Sciences de la Matière
Département des Sciences de la Matière

Mémoire de fin d'études
Master



Spécialité : Physique de la Matière Condensée

Présentée par :

Souahlia Fadila

**Etude des propriétés structurales, élastiques et diélectriques
des alliages $K_{1-x}Na_xTaO_3$.**

Sous la Direction de :

Dr. Souadkia Mourad

Juillet 2021

Dédicace

Je dédie mes très chères parents, « mon père Kamel, et ma mère "Messaouda", qui m'ont entourés de tout leur amour, leur tendresse, et pour leur soutien moral et matériel durant toutes les étapes de ma vie.

A Mes frères (Mounir et Saber) et mes sœurs (Djazira, Ghania, Chahra) et ses nièces (Raid, Aridje, Mouad, Takie, Sirine, Racim, Amir et Farah) qui ont toujours été proches de moi pour m'aider.

A toute ma famille Souahlia.

Remerciements

Avant tout, El hamdou Li « Allah » qui m'a aidé à réaliser ce travail.

je remercie mon encadreur **Dr. Mourad Souadkia**, maître de conférences à l'Université 08 Mai 1945 Guelma, qui malgré ses nombreuses occupations, à dispenser sans compter son temps et ses conseils pour l'élaboration du mémoire.

Les mots ne suffisent pas pour te remercier.

A tous mes amis(es) avec lesquels(les) j'ai partagé des moments exceptionnels de joie et de bonheur. Sans oublier d'adresser mes remerciements les plus chaleureux à toutes les personnes qui m'ont aidé de près ou de loin par le fruit de leurs Connaissances et de leurs savoirs pendant toute la durée de mon parcours instructif.

Fadila Souahlia

ملخص

الهدف من هذا العمل هو دراسة الخواص البنيوية والمرونية و كذلك العازلة للمزيج $K_{1-x}Na_xTaO_3$ بدلالة التركيز لذرات الصوديوم Na في صيغته المستقرة على شكل مكعب بسيط . استعملنا طريقة شبه الكمونات في إطار نظرية تابع الكثافة DFT المدمجة في برنامج الحساب Abinit , و طريقة تقريب المقاربة البلورة الافتراضية VCA. و لقد استخدمنا أيضا التقريب التدرج المعمم GGA. قمنا بدراسة الخصائص البنيوية (مقادير ثابت الشبكة و معامل الانضغاط و مشتقته) و النتائج المتحصل عليها متقاربة جدا مع النتائج التجريبية و النظرية المتاحة. كذلك تطرقنا إلى حساب الخصائص المرونية لتعيين معاملات المرونة C11, C12, C44 من خلال النتائج التي تم الحصول عليها من معاملات المرونة يتم حساب معامل يونغ, نسبة بواسون و عامل التباين لإظهار حقيقة الاستقرار الميكانيكي كما أثبتنا أن المزيج $K_{1-x}Na_xTaO_3$ ذو طبيعة هشة. بالإضافة إلى الخصائص العازلة التي قمنا فيها بحساب ثابت العزل بدلالة التركيز ذرات الصوديوم Na. كما استنتجنا أن كل هذه الخواص المدروسة تتغير تربياعيا بدلالة تركيز ذرات الصوديوم.

الكلمات المفتاحية :

الخصائص البنيوية, معاملات المرونة, ثابت العزل, DFT, البيروفسكات ($NaTaO_3$, $KTaO_3$).

Résumé

L'objectif de ce travail est d'étudier les propriétés structurales, élastiques et diélectriques en fonction de la concentration de l'atome Na de l'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$. Nos calculs ont été effectués par la méthode de pseudopotentiel implémentée dans le code Abinit basé sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) avec l'approximation de gradient généralisée (GGA) et l'approximation du cristal virtuel (VCA).

Les propriétés structurales telles que le paramètre du réseau, le module de compressibilité et sa dérivée sont en bon accord avec les données théoriques et expérimentales.

L'étude élastique a pour but de déterminer les modules d'élasticité C_{11} , C_{12} et C_{44} . À partir des résultats obtenus des modules d'élasticité ; les modules mécaniques dérivés incluant le module de Young, le module de cisaillement, le coefficient de Poisson, et le facteur d'anisotropie, sont calculés pour démontrer la stabilité mécanique, et on a démontré que l'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ est fragile.

Pour les propriétés diélectriques, on a calculés la constante diélectrique en fonction de la concentration de l'atome Na. Tous ces propriétés varient quadratiquement en fonction de composition (x).

Mots Clés :

Les propriétés structurales, les constantes élastiques, la constante diélectrique, DFT, pérovskites ($NaTaO_3$, $KTaO_3$).

Abstract

This manuscript presents a theoretical study, of the structural, elastic and dielectric properties depending on the concentration of the atom Na of the $K_{1-x}Na_xTaO_3$ alloys. Our calculations were performed by using the pseudo-potentials method and the density functional theory (DFT) implemented in the Abinit code, with the generalized gradient approximation (GGA) and the virtual crystal approximation (VCA).

The calculated structural properties such as the equilibrium lattice parameter, the bulk modulus and its pressure derivative are in good agreement with the available data.

The elastic study is considered to determine the elastic module C_{11} , C_{12} , and C_{44} of the cubic crystal. Through the obtained results of the elastic module, the derivative mechanical module including Young's modulus, Poisson's ratio, and anisotropy factor are calculated in the fact to demonstrate the mechanical stability, and we determinate that $K_{1-x}Na_xTaO_3$ is brittle.

We have also calculated the dielectric properties and we study the dielectric constants in function of the concentration of the atom Na.

Keywords :

DFT, structural, elastic and dielectric properties, perovskites ($NaTaO_3$, $KTaO_3$).

Table des Matières

Introduction.....	1
Références.....	3
I. Présentation des matériaux étudiés	
I-1. Introduction.....	4
I-2. Présentation d'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$	4
I-3. Structure cristallographique.	5
I-4. Première zone de Brillouin de type cubique simple.....	6
I-5.Applications	7
Références.....	8
II. Théorie de la fonctionnelle de la densité et pseudopotentiel	
II .1 Introduction.....	9
II .2 Equation de Schrödinger.....	9
II .3 L'approximation de Born- Oppenheimer.....	10
II .4 L'approximation de Hartree.....	11
II .5 L'approximation de Hartree-Fock.....	12
II .6 La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)	12
II .6.1 Théorèmes de Hohenberg-Kohn.....	13
II .6.2 Les théorèmes de Kohn-Sham.....	13
II .6 .3 L'approximation de la densité locale (LDA)	14
II.6.4 L'approximation du Gradient Généralisé (GGA)	15
II .7 Méthode des pseudopotentiels.....	15
II.7.1 Introduction.....	15

II.7.2 Les pseudopotentiels à norme conservé.....	16
II.7.3 Corrections non linéaires de cœur.....	16
Références.....	18
III. Les propriétés élastiques et diélectriques	
III.1 Les propriétés élastiques.....	19
III.1 .1 Introduction	19
III.1 .2 La loi de Hooke.....	19
III.1 .3 Les coefficients élastiques.....	19
III.1 .4 Le comportement élastique	20
III. 2 Les propriétés diélectriques.....	22
III. 2.1 Le constant diélectrique statique et optique.....	22
Références.....	23
IV. Résultats et discussions	
IV-1. Introduction.....	25
IV-2. Détails de calculs.....	25
IV-2-1. Approximation du cristal virtuelle (VCA)	25
IV-3. Tests de convergence.....	25
IV - 4. Propriétés structurales.....	26
IV - 5. Propriétés élastiques.....	30
IV - 6. Propriétés Diélectriques.....	39
Références.....	41
Conclusion générale.....	42

Liste des tableaux

Tableaux	Titres	Pages
III -1	Constantes diélectriques statiques et optiques des quelques matériaux semi-conducteurs mesurées à 300k.	23
IV - 1	Paramètre du réseau a_0 (Å), module de compressibilité B (GPa) et sa dérivée B' du $K_{1-x}Na_xTaO_3$ dans la structure cubique simple.	27
IV - 2	Les constantes élastiques C_{11} , C_{12} , C_{44} et A_z calculées en utilisant la GGA.	31
IV-3	Le module de compressibilité (B), le module de Young (E), le coefficient de Poisson (σ), les modules de cisaillement de Reuss (G_R), de Voigt (G_v) et Hill (G) de l'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ pour les concentrations 0,0.25, 0.5.75 et 1.0	35
IV- 4	La vitesse longitudinale (V_l), la vitesse transversale (V_t), la vitesse moyenne (V_m), et la température de Debye (θ_D) de l'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ pour les concentrations 0,0.25, 0.5.75 et 1.0.	38
IV-5	La constante diélectrique à haute fréquence $\epsilon_{\infty}^{\alpha\beta}$ de $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la concentration de l'atome Na.	40

Liste des figures

Figures	Titres	Pages
I-1	Structure cristalline de pérovskite.	5
I-2	Première zone de Brillouin du composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$.	6
IV-1	La variation de paramètre de réseau a_0 en fonction de la composition (x) d'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$.	28
IV-2	La variation de module de compressibilité B en fonction de la composition (x) d'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$.	29
IV-3	La variation de la constante C_{11} en fonction de la composition (x).	32
IV-4	La variation de la constante C_{12} en fonction de la composition (x).	32
IV-5	La variation de la constante C_{44} en fonction de la composition (x).	33
IV-6	Variation du rapport B/G de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la concentration (x).	35
IV-7	La Variation du E de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la composition (x).	36
IV-8	La Variation du G de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la composition (x).	37
IV-9	La Variation du Coefficient de Poisson de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la composition(x).	37
IV-10	La variation de la température de Debye d'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la composition x.	39
IV-11	La variation de la constante diélectrique de haute fréquence ϵ_{∞} en fonction de la composition x.	40

Introduction

La science des matériaux est le cœur de beaucoup des grandes révolutions techniques dans tous les domaines de notre société moderne. À titre d'exemple : électronique (ordinateur, lecteur de CVD et DVD), aéronautique, énergie renouvelable, panneaux solaire, nanoscience, nanotechnologie, etc.

Pour décrire les propriétés de ces matériaux, il suffit de faire l'expérimental directement ou bien par les méthodes Abinitio, et pour faire ça, il doit connaître la composition atomique des composées formées et les simuler à partir de la résolution de l'équation de Schrödinger [1].

Parmi ces composés les pérovskites qui représentent une famille remarquables, ils sont présents dans de nombreuses applications technologiques dans le domaine des capteurs et de l'électronique. Cette structure fut découverte par Gustav Rose en 1938 dans les Montagnes d'Oural en Russie, il la nomma pérovskite en hommage au minéraliste russe, le comte Lev Aleksevich Von Perovski. Le nom de pérovskite a été donné par la suite à toute structure cristallographique de formule générale ABX_3 , A est un alcalino-terreux ou une terre rare, B un métal de transition et X soit l'oxygène, le fluor ou plus généralement un halogène [2].

Les matériaux pérovskites présentent une variété de propriétés physico-chimiques qui les rendent des composés très utiles dans différentes applications technologiques tel que l'électro-optique, les fréquences laser et les cellules de mémoire de haute capacité, sonars piézoélectriques, l'effet catalytique et on général fournir des bons perspectives de développements et de base expérimentale pour résoudre le problème de l'énergie de l'environnement [3]. Les propriétés remarquables des pérovskites et ses diverses applications technologiques font des pérovskites un domaine de recherche vivant, fertile et attirant des chercheurs chimistes et physiciens [4].

L'objectif de ce travail est d'aboutir à une meilleure compréhension des propriétés structurales, élastiques et diélectriques d'alliage pérovskite $K_{1-x}Na_xTaO_3$ formé à partir de composé pérovskite ternaire $NaTaO_3$ et $KTaO_3$ qui sont cristallisent dans la structure cubique simple.

L'étude est focalisée sur l'effet de la concentration (x) de l'atome de Na sur les différentes propriétés physique. Ce travail a été effectué par l'utilisation de la méthode de pseudopotentiel [5] et l'approximation du gradient conjugué (GGA) dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT).

De point de vue théorique, H. Bouafia et al. [6] ont étudié les propriétés structurales, élastiques, électroniques et thermodynamique de NaTaO_3 et KTaO_3 , ils ont conclu que ces composés ont des semi conducteurs de gap indirect et mécaniquement stables . En se basant sur la méthode des ondes planes augmentées linéarisées (FP-LAPW) , Na . Zhao et al. [7] ont étudiées les propriétés électroniques et optiques de l'alliage $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$. Leur étude a montré que le paramètre de réseau et l'énergie de Bandes interdites augmentent en fonction de la concentration de l'atome Na.

Le travail que nous présentons dans ce mémoire comprend quatre chapitres, débuté par une introduction générale. Dans le premier chapitre nous donnons quelques généralités sur les matériaux étudiés. Le deuxième chapitre est consacré la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) et la méthode du pseudopotentiel et les ondes planes. Le troisième chapitre englobe un rappel général sur les propriétés physiques étudiées dans ce travail, notamment, les propriétés élastiques et diélectriques des matériaux. Dans le dernier chapitre, nous présentons les résultats obtenus dans cette étude et leurs interprétations ainsi qu'une comparaison avec certains travaux théoriques et expérimentaux. Enfin, notre travail est achevé par une conclusion générale.

Références :

- [1] D. R. Hartree, The Calculation of Atomic Structures. John Wiley and Sons, (1957).
- [2] Y. Benmalem. Etude du Premier Principe des Propriétés Élastiques, Thermiques et Optoélectroniques des Anti pérovskites, thèse de doctorat, Université Abdelhamid Ibn Badis de Mostaganem (2019).
- [3] Zhang Xintong Akira Fujishima, A. Tryk Donald, Int .J.Hydrogen Energy 32 (2007) 2664-2672.
- [4] K. Haddadi, Etude des propriétés structurales, élastiques et électroniques des composés anti pérovskites de type XNCA₃, Thèse de Doctorat, Université Ferhat Abbas de Sétif (2013).
- [5] N. Troullier, J. L. Martins, Phys. Rev, B 43 (1991) 1993.
- [6] H Bouafia, S Hiadsi, B Abidri, A Akriche, L Ghalouci et B Sahli. Computational materials science 75, (2013) 1-8
- [7] Na Zhao, Yue-HuaWang, Qing-XiWang and Wen-JingHu. Journal of Solid State Chemistry 194 (2012) 37-42.

C H A P I T R E 1

Présentation des matériaux étudiés

I-1. Introduction

Le domaine de la réalisation des matériaux a été largement étendu grâce à l'utilisation des éléments de la table périodique, pour former des composés binaires ou des alliages. [1]

Les matériaux étudiés sont des pérovskites qui sont les composants de base de l'industrie car ils ont des propriétés électriques variées : isolants, semi-conducteurs, conducteurs, métalliques et supraconducteurs [2].

I-2. Présentation d'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$

Le Potassium

Est l'élément chimique de symbole **k** de numéro atomique 19 de groupe 1 et la 4^{ème} période de tableau périodique de Mendeleïev. Sa configuration électronique est :

[Ar] 4S¹, c'est un métal gris blanc, cireux et mou et sa surface fraîchement coupée a un éclat argenté. Il possède 24 isotopes connus ainsi de quatre isomères nucléaires, il s'oxyde rapidement au contact de l'air et réagit violemment avec l'eau. Il ressemble chimiquement au sodium [3].

Le Sodium

Est l'élément chimique de symbole **Na** de numéro atomique 11 de groupe 1 et la 3^{ème} période de tableau périodique de Mendeleïev. Sa configuration électronique est :

[Ne] 3S¹, le corps simple sodium est un métal mou, de couleur argentée et très réactif, qui fait partie des métaux alcalins. Le sodium est léger, flotte sur l'eau, il est un excellent conducteur électrique [3].

Le Tantale

Est l'élément chimique de symbole **Ta** de numéro atomique 73 de groupe 5 et la 6^{ème} période de tableau périodique de Mendeleïev. Sa configuration électronique est :

[Xe] 4f¹⁴ 5d³ 6S², le corps simple tantale est un métal de transition gris bleu, lourd, dur mais ductile, très résistant à la corrosion des acides et bon conducteur de la chaleur de l'électricité [3].

L'oxygène

Est l'élément chimique de symbole **O** de numéro atomique 8 de groupe 16 et la 2^{ème} période de tableau périodique de Mendeleïev. L'oxygène est un non-métal qui forme très facilement des composés, notamment des oxydes, avec pratiquement tous les autres éléments chimiques. Sa configuration électronique est : $[\text{He}] 2s^2 2p^4$, c'est un élément du group des halogènes, il est l'élément le plus abondant de l'univers après l'hydrogène et l'hélium, et le plus abondant des éléments de l'écorce terrestre ; l'oxygène constitue ainsi sur Terre [3].

I-3. Structure cristallographique

La structure pérovskite de symétrie élevée est une structure de symétrie cubique simple, Les composés ternaire KTaO_3 et NaTaO_3 sont présentés dans la Figure I-1, et ils appartenant au groupe des pérovskites de formule générale ABO_3 ou A et B représentent les métaux Alcalins et Alcalino-terreux. Les atomes A(K,Na) ce sont des cations possèdent un nombre de coordination de 12 et de position $(0,0,0)$, et B (Ta) de position $(0.5, 0.5, 0.5)$ et l'anion O de position $(0.0, 0.5, 0.5)$, $(0.5,0.5,0.0)$, $(0.5,0.0,0.5)$. Le group d'espace dans la notation d'Hermann-Mauguin est Pm-3m de numéro 221 [4].

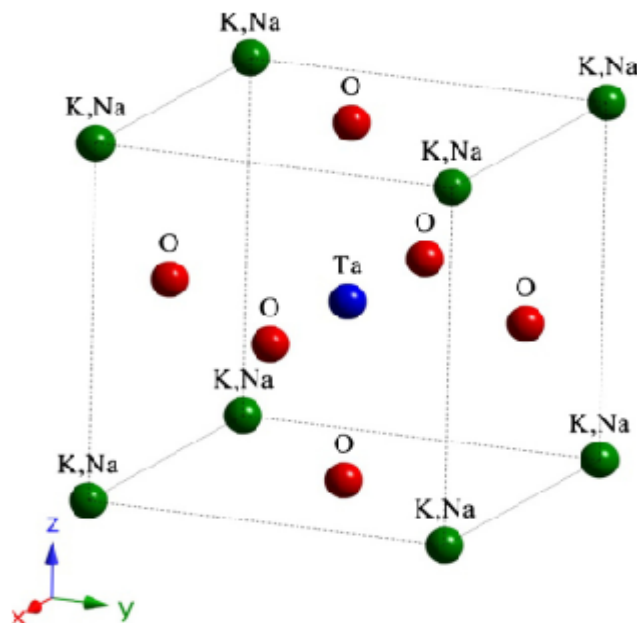


Figure I-1 : Structure cristalline de pérovskite [4].

I-4. Première zone de Brillouin de type cubique simple

L'étude des propriétés de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ se fera dans la première zone de Brillouin qui est le plus petit volume du réseau réciproque appartenant les états de vecteur d'onde \vec{k} .

La première zone de Brillouin ainsi que les points de haute symétrie pour une structure cubique simple sont illustrées dans la figure I-2. Les coordonnées des points de haute symétrie sont [5] :

$$\Gamma : (0 \ 0 \ 0)$$

$$R : \left(\frac{1}{2} \ \frac{1}{2} \ \frac{1}{2} \right)$$

$$X : \left(0 \ \frac{1}{2} \ 0 \right)$$

$$M : \left(\frac{1}{2} \ \frac{1}{2} \ 0 \right)$$

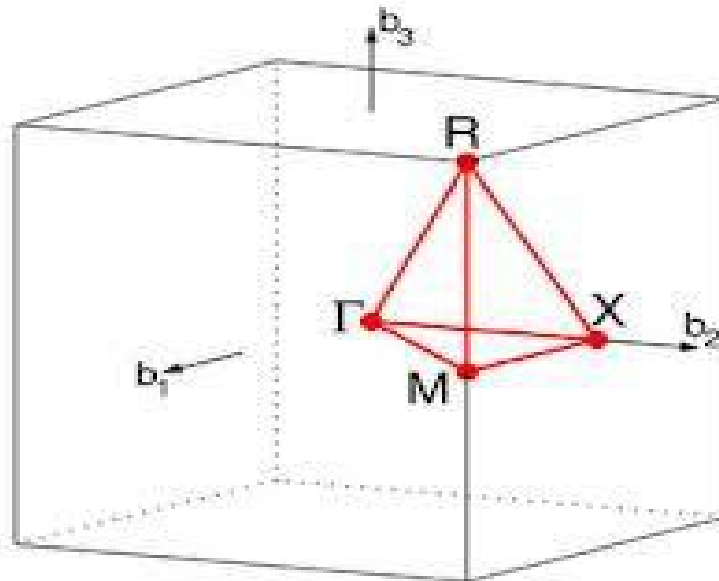


Figure I-2 : Première zone de Brillouin du composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$.

I-5. Applications

Les matériaux pérovskites présentent une variété de propriétés physico-chimiques : d'un isolant à grand gap à un ferroélectrique jusqu'au supraconducteur, comme ils présentent aussi une large gamme d'instabilité structurale et d'autres propriétés physiques intéressantes comme la conduction ionique, transition isolant métal et métal isolant, changement de structure sous pression et température, propriétés diélectrique et optique,... etc. Ces différentes propriétés, rendent les matériaux pérovskites très utiles dans différentes applications technologiques : dans l'électro-optique, les guides d'ondes, les fréquences laser et les cellules de mémoire de haute capacité, les cristaux laser (laser-host Crystal), les capteurs d'oxygène à haute température, les condensateurs de haute tension (High-voltage capacitor), les matériaux piézoélectriques dans les déclencheurs piézoélectriques,... etc. Les propriétés remarquables des pérovskites et ses diverses applications technologiques font des pérovskites un domaine de recherche vivant, fertile et attirant des chercheurs chimistes et physiciens. [6]

Références :

- [1] S. Oughidni, Etude de premier principe des propriétés thermodynamiques d'alliage ternaire $\text{Sn}_{1-x}\text{Ge}_x\text{C}$. Mémoire de master. Université 08 Mai 45 de Guelma (2020).
- [2] S. karfafe, Etude de premiers principes des pérovskites. Thèse de doctorat, Université 8 Mai 45 de Guelma (2021).
- [3] <https://fr.wikipedia.org/wiki/> .
- [4] H Bouafia, S Hiadsi, B Abidri, A Akriche, L Ghalouci et B Sahli. Computational materials science 75, (2013) 1-8.
- [5] L. Zalani, Etude des propriétés structurales et élastiques du composé antipérovskite GeNCa_3 . Mémoire de master. Université 8 Mai 45 de Guelma (2016).
- [6] K. Haddadi, Etude des propriétés structurales, élastiques et électroniques des composés anti pérovskites de type XNCa_3 , Thèse de Doctorat, université de Ferhat Abbas de Sétif (2013).

C H A P I T R E 2

**Théorie de la fonctionnelle de la
densité et pseudopotentiel**

II.1 Introduction

Pour comprendre les propriétés physiques des matériaux (l'état solide), il est devenu possible d'analyser expérimentalement les propriétés structurales des cristaux dans des conditions convenables. Parallèlement les théoriciens ont développé des méthodes théoriques qui donnent une bonne description des phases et leurs structures électroniques, ces méthodes sont connues comme des calculs Abinitio qui sont basées sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), cette dernière permet d'utiliser la densité électronique comme variable de base, de déterminer les propriétés physiques du solide.

II.2 Equation de Schrödinger

Les solides sont constitués des particules élémentaires : les ions et les électrons. La détermination de l'état fondamental d'un solide nécessite la résolution de l'équation de Schrödinger :

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

Où :

E : est l'énergie totale du système

Ψ : est la fonction d'onde qui dépend des coordonnées des noyaux et des électrons, et contient toute l'information du système

$$\Psi = \psi (r_1, r_2, \dots, R_1, R_2, \dots) \quad (\text{II.2})$$

H : L'Hamiltonien du système

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

Soit :

$$H = -\frac{1}{2} \sum_i \nabla_i^2 - \frac{1}{2} \sum_A \frac{\nabla_A^2}{M_A} - \sum_i \sum_A \frac{Z_A}{R_{A_i}} + \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}} + \sum_{A < B} \frac{Z_A Z_B}{R_{AB}} \quad (\text{II.4})$$

i et j sont les indices des électrons, A et B les indices des noyaux, M_A et Z_A sont respectivement la masse et la charge du noyau considéré, R_{Ai} , r_{ij} et R_{AB} sont les distances noyau/électron, électron/électron et noyau/noyau respectivement.

$$T_e = -\frac{1}{2} \sum_i \overline{\nabla_i^2} : \text{L'énergie cinétique des électrons.} \quad (\text{II .5})$$

$$T_n = -\frac{1}{2} \sum_A \frac{\overline{\nabla_A^2}}{M_A} : \text{L'énergie cinétique des noyaux.} \quad (\text{II .6})$$

$$V_{ne} = -\sum_i \sum_A \frac{Z_A}{R_{Ai}} : \text{L'énergie potentielle d'attraction noyaux-électrons.} \quad (\text{II .7})$$

$$V_{ee} = \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}} : \text{L'énergie potentielle de répulsion entre les électrons.} \quad (\text{II .8})$$

$$V_{nn} = \sum_{A < B} \frac{Z_A Z_B}{R_{AB}} : \text{L'énergie potentielle d'interaction entre les noyaux.} \quad (\text{II .9})$$

Ces formules utilisées sont exprimées en unités atomiques ($\hbar = e = m = 4\pi\epsilon = 1$). La résolution de l'équation de Schrödinger de ce système est impossible dans la pratique à cause du nombre très élevé des interactions mises en jeu, pour cela il est nécessaire de passer par des approximations de simplifications, qui étaient décrits dans ce chapitre.

II.3 L'approximation de Born - Oppenheimer

Du fait que les noyaux sont très lourds par rapport aux électrons, d'après Born et Oppenheimer [1], on peut négliger leurs mouvements par rapport à ceux des électrons et on ne prend en compte que ceux des électrons dans le réseau rigide périodique des potentiels nucléaires. On néglige ainsi l'énergie cinétique T_N des noyaux et l'énergie potentielle noyaux-noyaux V_{n-n} devient une constante qu'on peut choisir comme la nouvelle origine des énergies.

$$H_{\text{tot}} = H_e + V_{n-n} \quad (\text{II .10})$$

$$\text{Tel que : } H_e = T_e + V_{n^-e} + V_{e^-e} \quad (\text{II .11})$$

H_e est l'hamiltonien électronique, donc on obtient une équation très simple par rapport à l'originale. Et le problème est réduit à la recherche des valeurs et des fonctions propres pour les électrons, autrement dit résoudre l'équation :

$$H_e \Psi = E_e \Psi \quad (\text{II.12})$$

Les fonctions propres ainsi obtenues conduisent directement à celles du système

$$\Psi_{\text{sys}}(r, R) = \chi(R) \Phi(r, R) \quad (\text{II.13})$$

Où $\chi(R)$ est la fonction d'onde des noyaux et $\Phi(r, R)$ est la fonction d'onde des électrons avec les noyaux fixes dans la position R . La position des noyaux devient un paramètre et l'équation de Schrödinger est résolue pour un ensemble de positions fixes des noyaux. L'énergie du système sera :

$$E_{\text{sys}} = E_{\text{el}} + V_{\text{n-n}} \quad (\text{II.14})$$

La nouvelle équation (II.12) obtenue représente un problème à N corps dont la résolution rigoureuse ne peut pas être obtenue analytiquement sauf dans les cas très simples comme celui de l'atome d'hydrogène, pour le faire dans le cas le plus général, il faut introduire une autre approximation dite de Hartree-Fock.

II.4 L'approximation de Hartree

En l'absence du terme d'interaction électron-électron, l'hamiltonien se réécrit comme une somme de terme mono électronique. L'approche développée par Hartree [2,3] consiste à modéliser l'interaction de Colomby par un potentiel effective V_{Hartree} agissant sur chaque électron et traduisant l'effet moyen de l'ensemble des autres électrons, déni par :

$$V_{\text{Hartree}} = \sum_j \int dr' \psi_j(r) \psi_j^* \frac{1}{|r'-r|} \quad (\text{II.15})$$

et a écrire la fonction d'onde comme le produit des fonctions d'ondes à une particule, orthogonales entre elles :

$$\psi(r) = \prod_{i=1}^{N_{ee}} \psi_i(r) \quad (\text{II.16})$$

II.5 L'approximation de Hartree-Fock

En 1930, Fock [4] a montré que la fonction d'onde de Hartree (II .16) ne respecte pas le principe d'exclusion de Pauli parce qu'elle n'est pas antisymétrique par rapport à l'échange de deux particules quelconques. Le défaut est corrigé en ajoutant un terme supplémentaire non local d'échange. La fonction d'onde est alors remplacée par un déterminant de Slater [5] formé par les fonctions d'onde mono électroniques qui est antisymétrique par rapport à l'échange.

$$\psi (\{\vec{r}_i\}) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{pmatrix} \psi_1 (\vec{r}_1) & \psi_1 (\vec{r}_2) \cdots & \psi_1 (\vec{r}_N) \\ \psi_2 (\vec{r}_1) & \ddots & \psi_2 (\vec{r}_2) \\ \vdots & & \vdots \\ \psi_N (\vec{r}_1) & \cdots & \psi_N (\vec{r}_N) \end{pmatrix} \quad (\text{II .17})$$

Où $\frac{1}{\sqrt{N!}}$ est le facteur de normalisation.

On obtient ainsi les équations de Hartree-Fock :

$$[T_{ee} + V_{en} + V_{Hartree} + V_{Fock} (\{\psi(r)\})] \psi_i(r) = \epsilon_i \psi_i(r) \quad (\text{II .18})$$

Avec:

$$\begin{cases} V_{Hartree} = \sum_j \int dr' \psi_j(r) \psi_j^* \frac{1}{|r'-r|} \\ V_{Fock} = - [\sum_j \int dr' \psi_i(r') \psi_j(r')^* \frac{1}{|r'-r|}] \frac{\psi_j(r)}{\psi_j(r)} \delta(\sigma_i - \sigma_j) \end{cases} \quad (\text{II .19})$$

Le système d'équation (II .18) se résout d'une manière auto cohérente dans la mesure où le potentiel dépend des fonctions d'ondes [6].

II.6 La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT)

Dans la théorie de la fonctionnelle de la densité, les propriétés de l'état fondamental d'un système de particules interagissant entre-elles, sont exprimées en fonction de la densité électronique.

Historiquement, les premières idées de la théorie de la fonctionnelle de la densité furent introduites dans les travaux de Thomas [7] et Fermi [8] en 1927. Notons cependant que la DFT a été réellement établie avec l'apparition des théorèmes fondamentaux exacts d'Hohenberg et Kohn en 1964 [9] qui relie l'énergie de l'état fondamental et sa densité de façon unique.

II .6.1 Théorèmes de Hohenberg-Kohn

En 1964, Hohenberg et Kohn [9] ont formulé deux théorèmes qui sont les piliers de la DFT:

Premier théorème

Le premier théorème de Hohenberg-Kohn s'énonce comme suit: Le potentiel externe $V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ est une fonctionnelle unique, à une constante près, de la densité électronique fondamentale $\rho(\mathbf{r})$. Comme $\rho(\mathbf{r})$ définit à son tour l'hamiltonien \hat{H} . L'état fondamental à plusieurs particules est déterminé par $\rho(\mathbf{r})$. La fonctionnelle de l'énergie électronique de l'état fondamental a pour expression :

$$E = T[\rho_0] + E_{\text{ne}}[\rho_0] + E_{\text{ee}}[\rho_0] \quad (\text{II .20})$$

Deuxième théorème

l'énergie total du système atteint sa valeur minimale lorsque la densité $\rho(\vec{r})$:

$$E_0 = \min E[\rho(\vec{r})] \quad (\text{II .21})$$

L'approche de Kohn-Sham va reprendre ces idées et reformuler la théorie sous forme permettant d'envisager certaines approximations [10].

II .6.2 Les théorèmes de Kohn-Sham

Kohn et Sham ont introduit un développement supplémentaire qui consiste à remplacer le système réel interactif en un système fictif non interactif. Pour ce système fictif, les théorèmes de Hohenberg et Kohn s'applique également. La fonctionnelle de la densité $F[\rho(\mathbf{r})]$ pour le système interactif peut être exprimée par l'expression suivante [11] :

$$F[\rho(\vec{r})] = T_0[\rho(\vec{r})] + E_{\text{H}}[\rho(\vec{r})] + E_{\text{xc}}[\rho(\vec{r})] + V_{\text{ext}}[\rho(\vec{r})] \quad (\text{II.22})$$

où $T_0[\rho(\vec{r})]$ est l'énergie cinétique du gaz d'électron non interagissant et $E_H[\rho(\vec{r})]$ le terme de Hartree, $E_{xc}[\rho(\vec{r})]$ est une fonctionnelle additionnelle qui décrit l'interaction inter électronique (énergie d'échange-corrélation) et $V_{ext}[\rho(\vec{r})]$ inclut l'interaction coulombienne des électrons avec les noyaux et celle des noyaux entre eux. Le terme de Hartree et celui de l'énergie cinétique jouent un rôle important dans la description des états des électrons libres. L'équation de Schrödinger à résoudre dans le cadre de l'approche de Kohn-Sham est de la forme :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_i^2 + V_{eff}(\vec{r})\right]|\psi_i(\vec{r})\rangle = \varepsilon_i|\psi_i(\vec{r})\rangle \quad (\text{II .23})$$

$$(V_{eff}(\vec{r})) \text{ est potentiel effectif : } V_{eff}(\vec{r}) = V_{ext}(\vec{r}) + \int \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r}-\vec{r}'|} \quad (\text{II .24})$$

Le potentiel d'échange et corrélation est donné par la fonctionnelle dérivée [12] :

$$V_{xc}(\vec{r}) = \frac{\delta E_{xc}[\rho(\vec{r})]}{\delta \rho(\vec{r})} \quad (\text{II .25})$$

Et la densité est donnée par une somme sur l'ensemble des orbitales occupées:

$$\rho(\vec{r}) = \sum_{i=1}^N |\psi_i(\vec{r})|^2 \quad (\text{II .26})$$

L'équation (II .23) correspondent aux équations de Kohn-Sham et doivent être résolues de façon auto cohérente, i.e. en débutant à partir d'une certaine densité initiale, un potentiel est obtenu pour lequel l'équation (II .22) est résolue et une nouvelle densité électronique est alors déterminée. A partir de cette nouvelle densité, un nouveau potentiel effectif peut être calculé. Ce processus est répété de façon auto cohérente jusqu'à ce que la convergence soit atteinte.

II .6 .3 L'approximation de la densité locale (LDA)

L'approximation de la densité locale (en Anglais Local Density Approximation LDA) est l'approximation la plus simple pour exprimer l'énergie d'échange et de corrélation:

$$E_{XC}^{LDA}[\rho(\vec{r})] = \int \rho(\vec{r}) \varepsilon_{XC}^{LDA}[\rho(\vec{r})] d^3 \vec{r} \quad (\text{II .27})$$

Où : $\epsilon_{XC}^{LDA} [\rho(\vec{r})]$ est l'énergie d'échange corrélation pour un gaz d'électron homogène, qui a été paramétrées pour différentes valeurs de la densité électronique, comme par exemple ceux de perdew et Zunger [13]. Toutes ces fonctionnelles conduisent généralement à des résultats très similaires.

II.6.4 L'approximation du Gradient Généralisé (GGA)

La LDA se fondait sur le modèle du gaz d'électrons et supposait donc une densité électronique uniforme. Elle est considère tous les systèmes comme homogènes. Pour cette raison le gradient de la densité d'électron a été introduit qui conduisant à l'approximation du gradient généralise GGA ou l'énergie d'échange corrélation sous la forme :

$$E_{XC}^{GGA} [\rho(\vec{r})] = \int f(\rho(\vec{r})) |\nabla\rho(\vec{r})| d^3\vec{r} \quad (\text{II .28})$$

Comme pour la LDA, en GGA; f doit être paramétrée sous forme analytique afin de faciliter les calculs, il existe différentes paramétrisations de la fonction f en GGA.

II .7 Méthode des pseudopotentiels:

II.7.1 Introduction

La plupart des propriétés physiques et chimiques des solides dépend beaucoup plus des électrons de valence que des électrons de cœur. Ces électrons de cœur fortement liés au noyau. L'idée introduite en 1934 par Fermi est alors la simplification des calculs de structure électronique par élimination des états de cœur [12]. Les électrons de cœur sera remplacé par un potentiel effectif, ce potentiel est appelé un pseudopotentiel.

Il existe trois grands types de pseudopotentiels, qui ont chacun leurs avantages et leurs inconvénients :

- les pseudopotentiels à norme conservée introduits par Hamman et al. [14].
- les pseudopotentiels ultra doux introduits par Vanderbilt. [15]

- les pseudopotentiels "dualspace Gaussian" introduit par Goedcker et al. [16]

II.7.2 Les pseudopotentiels à norme conservée

L'efficacité des pseudopotentiels est développée sur les buts suivants :

- Obtenir une bonne convergence par décrire les pseudos fonctions d'onde de nombre fini d'ondes planes.
- Le pseudopotentiel généré pour une configuration atomique donnée doit être reproduire les autres configurations avec exactitude et ceci est appelée transférabilité.
- La densité de charge construit en utilisant le pseudo fonction doit reproduire la densité de charge de valence construit la fonction d'onde réelle avec une grande exactitude.

Les pseudos fonctions d'onde (potentiel) sont construites de manière d'être égales aux fonctions d'onde de valence (potentiel) à l'extérieur d'un certain rayon de cœur r_c , mais à l'intérieur de r_c les pseudos fonctions d'onde différent des vraies fonctions d'onde et la norme se traduit par :

$$\int_0^{r_c} r r^2 \varphi^{ps*}(\mathbf{r}) \varphi^{ps}(\mathbf{r}) = \int_0^{r_c} \varphi^*(\mathbf{r}) \varphi(\mathbf{r}) \quad (\text{II .29})$$

La mesure de transférabilité est conditionnée par l'égalité des dérivées logarithmiques évaluées à r_c des fonctions à tous électrons et les pseudos fonctions d'onde φ et φ^{ps} . $r < r_c$, les dérivées logarithmiques à r_c sont égales pour la configuration atomique d'origine :

$$\frac{1}{\varphi^{ps}(r_c, E)} \frac{d\varphi^{ps}(r_c, E)}{dr} = \frac{1}{\varphi(r_c, E)} \frac{d\varphi}{dr}(r_c, E) \quad (\text{II .30})$$

2.7.3 Corrections non linéaires de cœur

Dans le formalisme du pseudopotentiel, la densité de charge est séparée en deux composantes, une densité électronique de cœur implicitement contenue dans le pseudopotentiel et une densité électronique de valence. La contribution des électrons de cœur à l'énergie totale du système est alors supposée constante, c'est à dire que l'on ne travaille

qu'avec la densité de valence. Toutes les interactions entre les électrons de cœur et de valence sont contenues dans le pseudopotentiel. Dans le cas où électrons de cœur et électron de valence sont bien séparés spatialement, ce formalisme où le cœur est fixé une fois pour toute n'introduit pas d'erreurs importantes. Mais s'il y a un recouvrement spatial entre orbitales de cœur et orbitales de valence, le pseudopotentiel sera moins transférable et on aura des erreurs symétriques sur l'énergie totale.

Louie et al. [17] consiste uniquement à extraire un nouveau pseudopotentiel ionique défini comme suit :

$$V_{ion,l}^{ps} = V_{(src);l}^{ps}(r) + - V_{Hartree}^{ps}(r) + V_{xc}^{ps}(\rho_c(r)\rho_v(r)) \quad (\text{II.31})$$

Avec ρ_c est la densité de charge des états de cœur, et ρ_v celle des états de valence.

Comme nombre d'ondes planes est nécessaire pour les décrire correctement, l'utilisation de la vraie densité électronique de cœur, à cause de sa variation spatiale très rapide, est difficile à mettre en œuvre. Cependant, la densité de charge du cœur a un effet non négligeable uniquement dans les régions où il y a recouvrement avec les électrons de valence. L'effet est notamment quasi nul près du noyau où se situe la grande majorité des charges de cœur. On va donc travailler avec une densité partielle de cœur, identique à la vraie densité de charge de cœur au-delà d'un rayon r_0 et libre de choix à l'intérieur de la région limitée par r_0 . La densité partielle de cœur possède la même valeur en r_0 que la vraie densité partielle et elle est déterminée de sorte à produire la plus petite charge intégrée entre 0 et r_0 . Louie et al. [7] ont montré que la fonction de Bessel sphérique j_0 convenait parfaitement pour représenter la densité partielle de cœur qui s'écrit :

$$\rho_c^{partielle}(r) = \begin{cases} A \sin \frac{B(r)}{r} & \text{si } r \leq r_0 \\ \rho_c(r) & \text{si } r \geq r_0 \end{cases} \quad (\text{II.32})$$

A et B étant définis par la valeur de la densité et de son gradient en $r = r_0$

Références:

- [1] M. Born, J.R. Oppenheimer, Ann .Phys. 87 (1927) 457.
- [2] D. R. Hartree, Proc. Cambridge Phil. Soc., 24, 89-110 (1928).
- [3] D. R. Hartree : The Calculation of Atomic Structures. John Wiley and Sons, (1957).
- [4] V. Fock, Z. Phys. 61, 126 (1930).
- [5] J. C. Slater, Phys. Rev. 81,385 (1951).
- [6] M. Souadkia, Semi-conducteurs polaires: Etude des propriétés structurales, vibrationnelles et thermodynamiques Thèse de doctorat, Université8 mai 1945, Guelma (2013).
- [7] L.H. Thomas, Proc. Camb. Phil. Sos. 23, 542 (1927).
- [8] E.Z. Fermi, Phys. 48,73 (1928).
- [9] P. Hohenberg, W. Kohn: Phys. Rev. B 136. 864 (1969).
- [10] Zalani lwiza, Etude des propriétés structurales et élastiques du composé antipérovskite GeNCa3. Université de Guelma (2016).
- [11] G. Fayrouz, Etude ab initio des propriétés structurales, électroniques, élastiques et optiques des composés III - P. Thèse de Doctorat.
- [12] Nicole Richard, Actinides et terres rares sous pression : Approche pseudopotentiel
- [13] J. P. Perdew and A. Zunger, Phys. Rev. B 23, 5048 (1981)
- [14] D.Hamman, M. Schluter, and C. Chlang. Phys. Rev. Lett., 43, 1494 (1979).
- [15] D. Vanderbilt. Phys. Rev. B 41. 7892 (1990).
- [16] S. Goedecker, M. Teter, and J. Hutter. Phys. Rev. B 51. 1703 (1996)
- [17] S. G. Louie. Phys. Rev. B 26. 1738 (1982).

**C
H
A
P
I
T
R
E

3**

Les propriétés élastiques et diélectriques

III.1 Les propriétés élastiques

III.1.1 Introduction

Les constantes élastiques des solides fournissent un lien entre le comportement mécanique et dynamique des cristaux et des informations importantes concernant la nature des forces opérant dans les solides telles que: l'équation d'états, les spectres de phonons. En particulier ils fournissent des informations sur la stabilité et la rigidité de la structure. Ils sont également liés aux propriétés thermodynamique avec la chaleur spécifique, dilatation thermique et la température de Debye [1].

III.1.2 La loi de Hooke

L'élasticité étudie la relation entre les déformations subies par un objet et les contraintes qui lui appliquées. Ils sont reliées par la loi de Hooke :

$$\sigma = \varepsilon E \quad \text{III.1}$$

Où:

- σ est la contrainte (en unité de pression),
- E est le module de Young (en unité de pression)
- ε est l'allongement relatif

III.1.3 Les coefficients élastiques pour un système cubique monocristal

Dans la symétrie cubique Ces constantes se simplifient , en une matrice 6×6 des constantes élastiques C_{ij} , il ya trois constantes indépendantes à savoir C_{11} , C_{12} , C_{44} données par :

$$C_{ij} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix}$$

La constante élastique C_{11} reflète la résistance du cristal à la contrainte appliquée sur le plan (1 0 0) suivant la direction [1 0 0]. C_{44} représente la résistance à la contrainte de cisaillement appliqué sur le plan (1 0 0) suivant la direction [0 1 0]. C_{12} n'a pas de signification physique simple mais sa combinaison avec d'autres élastiques constants fournit des informations au sujet du comportement élastique des matériaux.

La combinaison de ces constantes élastiques nous donne plus d'informations sur les propriétés des matériaux, tels que les modules élastiques des poly cristaux (B, G, E, σ) et la vitesse de propagation des ondes acoustiques. [1].

III.1.4 Le comportement élastique des solides:

❖ Module de Compressions et Compressibilité

On définit le module de compression B par $U = \frac{1}{2} B \delta^2$

Le module de compression B représente la résistance de la fracture.

Pour un cristal cubique est donnée par :

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

La compressibilité K est définie par $K = \frac{1}{B}$ plus B augmente plus le matériau est peu compressible [2].

❖ Module de cisaillement G

Le module de cisaillement G représente la résistance à la déformation plastique, est lié à la flexion des liaisons, dépend de la nature de ces liaisons et diminue en fonction de l'ionicté [3].

$$G = \frac{G_V + G_R}{2} \quad \text{III.3}$$

Avec:

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

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

❖ Module de Young E

Le module de Young ou module d'élasticité longitudinal est un rapport entre la contrainte de traction appliquée à un matériau, et la déformation qui en résulte (un allongement relatif) est constante, tant que cette déformation reste petite et que la limite d'élasticité du matériau n'est pas atteinte [4].

le module de Young est reliée a B et G par la relation suivante :

$$E = \frac{9GB}{3B+G} \quad \text{III.4}$$

❖ coefficient de Poisson σ

Le coefficient de Poisson permet de caractériser la contraction de la matière perpendiculairement à la direction de l'effort appliqué, il est défini comme le rapport de la déformation latérale et la déformation axiale. Le coefficient de Poisson σ , est relié à B et G par les relations suivantes:

$$\sigma = \frac{3B-2G}{2(3B+G)} \quad \text{III.5}$$

❖ L'anisotropie élastique

Le facteur d'anisotropie élastique pour les cristaux cubiques s'écrit :

$$AZ = \frac{2C_{44}+C_{12}}{C_{11}} \quad \text{III.6}$$

On dit un matériau ayant une parfaite anisotropie élastique si A=1.

❖ La température de Debye

La température de Debye est un paramètre fondamental important lié à plusieurs propriétés physiques tel que la chaleur spécifique et la température de fusion et l'énergie de vibration à point zéro [5] et on écrit :

$$\theta_D = \frac{\hbar}{K} \left[\frac{3n}{4\pi} \left(\frac{N_A \rho}{M} \right)^{1/3} \right] V_m \quad \text{III.7}$$

où \hbar est la constante du Planck, k le constante du Boltzmann, N_A le nombre de l'Avogadro, n le nombre d'atomes par unité de la formule, M la masse moléculaire par unité de la formule, la densité $\rho = \frac{M}{V}$, la vitesse moyenne du son donnée par l'équation :

$$V_m = \frac{1}{3} \left[\frac{2}{v_t^3} \left(\frac{1}{v_l^3} \right) \right]^{-1/3} \quad \text{III.8}$$

Où v_l et v_t , est la vitesse longitudinale et transversale respectivement, et sont données par les expressions suivantes :

$$v_l = \sqrt{\frac{3B+4G}{3\rho}} \quad \text{III.9}$$

$$v_t = \sqrt{\frac{G}{\rho}} \quad \text{III.10}$$

III. 2 Les propriétés diélectriques

III. 2.1 Le constant diélectrique statique et optique

La constante diélectrique appelée aussi permittivité électrique, décrit la réponse d'un milieu donné à un champ électrique. Elle a des conséquences importantes sur les propriétés physiques du solide. Elle intervient dans de nombreux domaines, notamment, dans l'étude de la propagation des ondes électromagnétique, en particulier en optique, dans la détermination de l'indice de réfraction, la réflexion et l'absorption de la lumière.

Autrement dit, les excitations propres d'un matériau sont décrites par la fonction diélectrique $\varepsilon(\omega, k)$. Cette fonction dépend essentiellement de la fréquence et du vecteur d'onde \vec{k} [6,7]. Pour les petites valeurs de \vec{k} cette fonction sera seulement fonction de la fréquence, on parlera ainsi de la constante diélectrique statique qui correspond à l'équilibre thermodynamique et la constante diélectrique $\varepsilon(\infty)$ correspondant à sa limite pour les hautes fréquences ; appelée aussi constante diélectrique optique.

Tableau III-1: Constantes diélectriques statiques et optiques de quelques matériaux semi-conducteurs mesurées à 300k [6].

Matériau	Constante diélectrique statique $\varepsilon(0)$	Constante diélectrique $\varepsilon(\infty)$ Optique
GaP	10,7	8,5
GaAs	12,9	10,9
InP	12,4	9,6
InAs	14.9	12.3

Références

- [1] Abdi Mohamed, Etude des propriétés des pérovskites, Mémoire de Université 8 mai 1945, Guelma (2016).
- [2] BENHAMIDA Mohamed, Propriétés structurale, élastiques et électronique d'alliages de nitrure des métaux de transitions, thèse de doctorat, Université de Setif.
- [3] User's guide, Ortho-elastic_13.2 (Release 27.08.2013) Morteza Jamal.
- [4] J. LUC LE GOËR, Mesures mécaniques et dimensionnelles, Ingénieur ESL, école technique supérieure du laboratoire.
- [5] GATT FAYROUZ, Étude ab initio des propriétés structurales, électroniques, élastiques et optiques des composés III- P, Mémoire de Master, Université Med Khider Biskra.
- [6] C. Kittel, Physique de l'état solide , Ed. Dunod Université (1983).
- [7] S. M. SZE et KWOK . K. NG. Phys. of semi-conductor divide. Edition weley..

C H A P I T R E 4

Résultats et discussions

IV-1. Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons et discutons les résultats de nos calculs telles que les propriétés structurales, élastiques, et diélectriques de l'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la concentration (x) de l'atome Na. Les calculs ont été réalisés par le code Abinit [1] basés sur la théorie de la fonctionnelle de la densité DFT combinée avec la méthode de pseudopotentiel et les ondes planes et l'approximation du cristal virtuelle VCA. Le potentiel d'échange et de corrélation a été traité par l'approximation GGA.

IV-2. Détails de calculs

IV-2-1. Approximation du cristal virtuelle (VCA)

Pour le traitement de $K_{1-x}Na_xTaO_3$, nous avons utilisé l'Approximation du Cristal Virtuel (Virtual Crystal Approximation). La VCA est l'approche la plus préférée grâce à sa simplicité, elle postule que l'alliage est approximativement représenté par un réseau périodique virtuel avec un potentiel atomique virtuel moyen de ceux des atomes dans les composés de base. Le pseudopotentiel virtuel de l'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ est donnée en fonction du pseudopotentiel V^{ps} de K et de Na se combinent de manière suivante :

$$V_{K_{1-x}Na_x}^{ps}(x) = (1 - x) V_K^{ps} + (x) V_{Na}^{ps} \quad (\text{IV-1})$$

IV-3. Tests de convergence

Dans la méthode (PP-PW), il existe deux paramètres essentiels qui doivent être choisis afin de décrire parfaitement le système étudié. Le premier paramètre est l'énergie de coupure (cut-off). Le deuxième paramètre est le nombre de points spéciaux NKPT utilisé pour l'intégration dans la zone de Brillouin. Donc, il est impératif de tester la convergence de ces paramètres.

Nous avons commencé par fixer la grille de la zone de Brillouin avec laquelle nous avons procédé à un calcul d'énergie de coupure (cut_off), les valeurs de l'énergie (E_{cut}) sont variées de 15-50 Ha, et on choisit l'énergie E_{cut} à partir du quelle l'énergie

totale est stabilisée. De même manière, on choisit le nombre de points N_{kpt} . Pour assurer la convergence de 10^{-5} Hartree, le maillage de la zone de Brillouin a été employé avec **6x6x6** points de Monkhorst-Pack et une énergie de coupure de 40 Hartree. Les pseudopotentiels qu'on a utilisés sont implémentés dans le code **Abinit**, sont des pseudopotentiels à norme conservée de vanderbilt [2]

IV - 4. Propriétés structurales

Pour déterminé les propriétés structurales de l'équilibre statique tel que le paramètre du réseau a_0 , le module de compressibilité B et sa dérivée par rapport à la pression P . Nous avons effectué un calcul self-consistent de l'énergie totale E_{tot} pour différentes valeurs du volume de la maille élémentaire. Les valeurs de l'énergie ainsi obtenues ont été ensuite interpolées par l'équation d'états de Murnaghan [3] donnée par :

$$E_{tot}(V) = E_0(V) + \frac{BV}{B'} \left[\frac{(V_0/V)^{B'}}{B'-1} + 1 \right] \quad (IV.2)$$

Où E_0 , B , B' , V_0 sont respectivement : l'énergie totale, le module de compressibilité, la dérivée première du module de compressibilité, le volume à l'équilibre. Le paramètre du réseau à l'équilibre est obtenu à partir du minimum de la courbe $E_{tot}(v)$ tandis que le module de compressibilité B est déterminé à partir de la relation :

$$B = V \left(\frac{\partial^2 E}{\partial V^2} \right) \quad (IV.3)$$

et sa dérivé B' est donnée par :

$$B' = \frac{\partial B_0}{\partial P} \quad (IV.4)$$

À l'aide de l'équation de Murnaghan [3], les résultats d'optimisation structurale des composées étudiées sont récapitulés dans le tableau IV - 1 qui contient aussi des données expérimentales et d'autre résultats théoriques.

Nous remarquons que la valeur du paramètre du réseau a_0 et B et B' de notre calcul du composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ est en bon accord avec les valeurs expérimentales et théoriques, disponibles.

Tableau IV-1 : Paramètre du réseau a_0 (Å), module de compressibilité B (GPa) et sa dérivée B' du $K_{1-x}Na_xTaO_3$ dans la structure cubique simple.

$K_{1-x}Na_xTaO_3$			
	a_0	B	B'
K TaO₃			
<i>ce calcul</i>	3.9862	190.1363	4.4093
Expt	3.9885 [d]	218 [e]	-
autres calculs	3.950 [b] 4.0316 [f]	196.51 [f]	3.695 [b] 4.364 [c]
K0.75Na0.25 TaO₃			
<i>ce calcul</i>	3.9943	186.8357	4.3929
Expt	4.0221 [f]	-	-
autres calculs		188.21 [f]	-
K0.5Na0.5 TaO₃			
<i>ce calcul</i>	3.9929	185.5525	4.3547
Expt	-	-	-
autres calculs	4.0104 [f]	189.6 [f]	-
K0.25Na0.75 TaO₃			
<i>ce calcul</i>	3.9841	185.9415	4.3035
Expt	-	-	-
autres calculs	3.9988 [f]	192.02 [f]	-
Na TaO₃			
<i>ce calcul</i>	3.9682	187.5630	4.2500
Expt	3.931 [g]	-	-
autres calculs	3.943 [h] 3.9858 [f]	183.5106 [e] 191.77 [f]	4.496 [e] 4.5903 [e]

[c]: Ref.[9], [g]: Ref.[13], [b]: Ref.[8], [d] : Ref.[10]. [e] : Ref. [11].

[f] : Ref.[12]. [h]: Ref. [14].

La variation de paramètre de réseau de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la concentration (x) de l'atome Na est illustrée sur la Figure (IV-1).

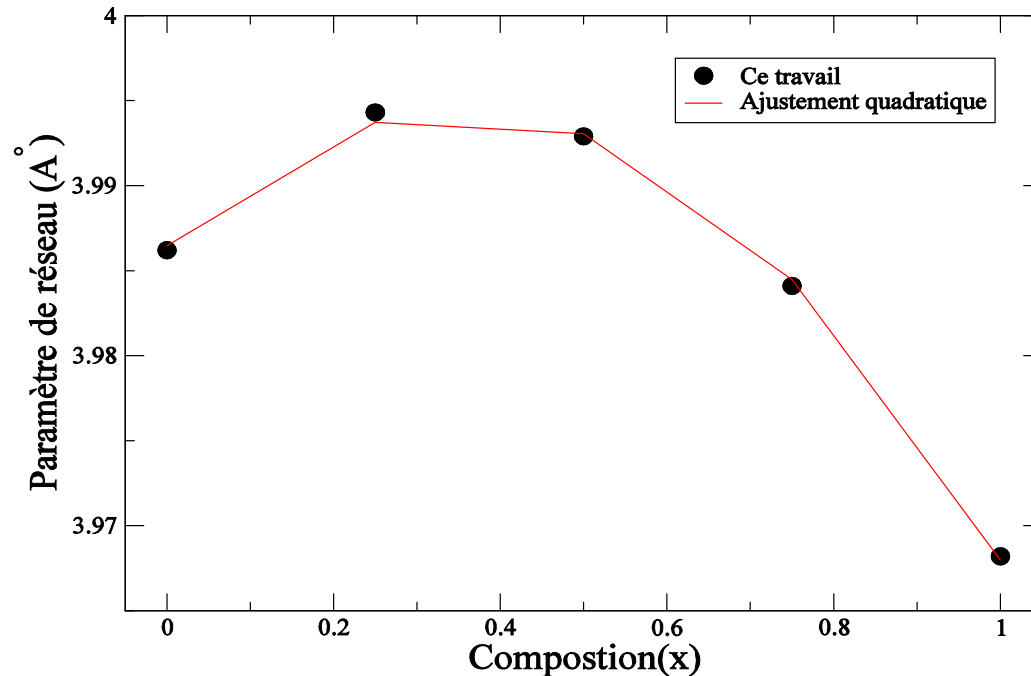


Figure IV-1 : La variation de paramètre de réseau a_0 en fonction de la composition (x) d'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$.

Nous remarquons que la variation de paramètre de réseau a_0 non linéaire et de forme quadratique et augmenté de 0 à 0.5 puis elle diminue de 0.5 à 1 avec l'augmentation de la concentration (x) de l'atome Na.

La déviation du paramètre du réseau par rapport la loi de **Végard**, le facteur de désordre du paramètre de réseau, est -0.063 \AA (la loi de Végard de paramètre de maille indique que pour les solutions solides de substitution le paramètre du réseau varie linéairement avec la composition atomique. Cette loi n'est qu'une loi approchée et l'on peut en observer soit des déviations positives, soit des déviations négatives [4]).

Cette variation du paramètre de réseau par rapport à la concentration (x) est suivie par la relation :

$$a_0 (\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3) = 3.986 - 0.063x^2 - 0.044x$$

La variation du module de compressibilité B de composé $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$ en fonction de la concentration (x) est illustrée sur la Figure (IV-2).

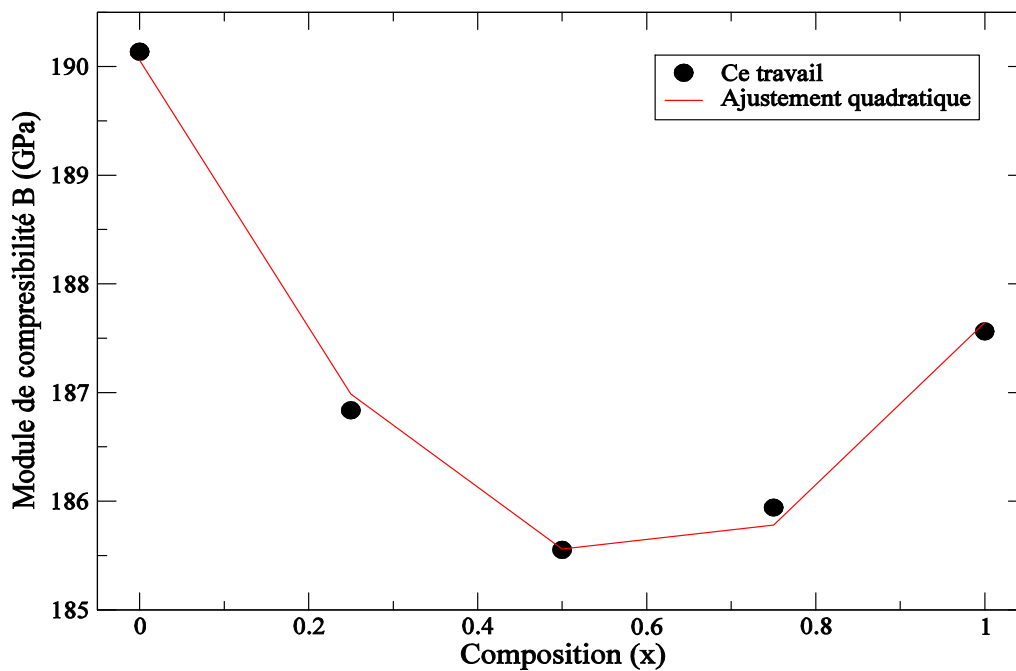


Figure IV-2 : La variation de module de compressibilité B en fonction de la composition (x) d'alliage $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$.

D'après cette figure, on remarque que la variation du module de compressibilité est non linéaire diminue de 0 à 0.5 et augmente de 0.5 à 1 avec l'augmentation de la concentration (x) de l'atome Na. Le module de compressibilité adopte un comportement contraire au paramètre de réseau.

La déviation du module de compressibilité par rapport à la loi de dépendance linéaire de la concentration (LCD) est 13.16 GPa et suit la relation suivante :

$$B (\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3) = 190.059 + 13.1616x^2 - 15.5779x$$

On peut conclure que, quand x varie de 0 à 0.5, ce composé devient moins compressible et de x varie de 0.5 à 1 devient plus compressible.

IV - 5. Propriétés élastiques

Constantes élastiques (phase monocristallin)

L'élasticité est un facteur très important dans l'étude de la stabilité, comme elle doit être prise en compte dans l'étude des forces mécaniques, il s'agit de déterminer les constantes élastiques C_{ij} qui relient la contrainte à la déformation et d'extraire les propriétés mécaniques et physiques de ces matériaux [5].

Pour un système cubique il existe seulement les trois constantes C_{11} , C_{12} , et C_{44} qui caractérisent totalement les propriétés mécaniques, le critère de stabilité mécanique pour un cristal cubique étant que ces trois constantes élastiques indépendantes doivent satisfaire les relations suivantes données par Born et Huang [6] :

$$(C_{11} - C_{12}) > 0, C_{12} > 0, C_{44} > 0 \text{ et } (C_{11} + C_{12}) > 0. \quad (\text{IV-5})$$

Les constantes élastiques de nos composés sont calculés en utilisant la méthode de pseudopotentiel et les ondes planes dans le code Abinit [1], avec l'approximation *GGA*. Nos valeurs calculées de ces constantes élastiques C_{11} , C_{12} , C_{44} sont données dans le tableau IV-2 avec les données expérimentales et les valeurs théoriques disponibles. La constante C_{11} représente la résistance à la contrainte appliquée sur les plans (100) suivant la direction [100]. La constante C_{44} représente la résistance à la contrainte de cisaillement appliqué sur le plan (100) suivant [010]. La constante C_{12} n'a pas de signification physique.

D'après ces résultats, on remarque que cette structure est stable mécaniquement vue les trois conditions de stabilité mécanique pour un système cubique. La valeur du C_{11} est grande par rapport à celle de C_{12} et C_{44} , de plus, $C_{11} > C_{44}$ signifie que ces composés sont plus résistants à la compression unidirectionnelle qu'à la déformation de cisaillement.

Les valeurs obtenues des constantes élastiques sont en bon accord avec celles d'autres calculs disponibles.

Les valeurs du coefficient d'anisotropie de Zener, A_z , calculées sont données dans le tableau IV-2, en utilisant la relation suivante:

$$A_z = \frac{2C_{44}}{C_{11} - C_{12}}$$

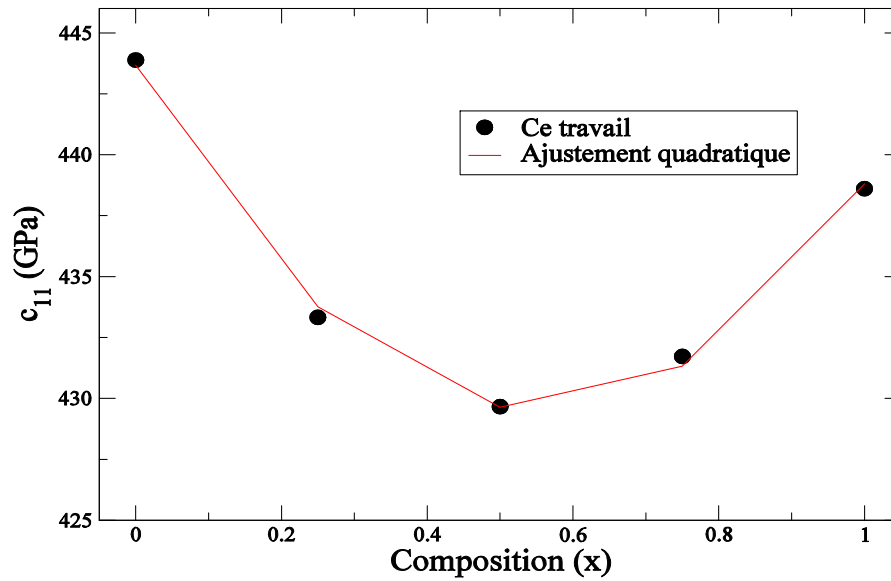
D'après ce tableau, on remarque que $A_z < 1$, on conclut que le cristal est plus rigide suivant les axes de directions $\langle 100 \rangle$.

Tableau IV-2 : Les constantes élastiques C_{11} , C_{12} , C_{44} et A_z calculées en utilisant la GGA.

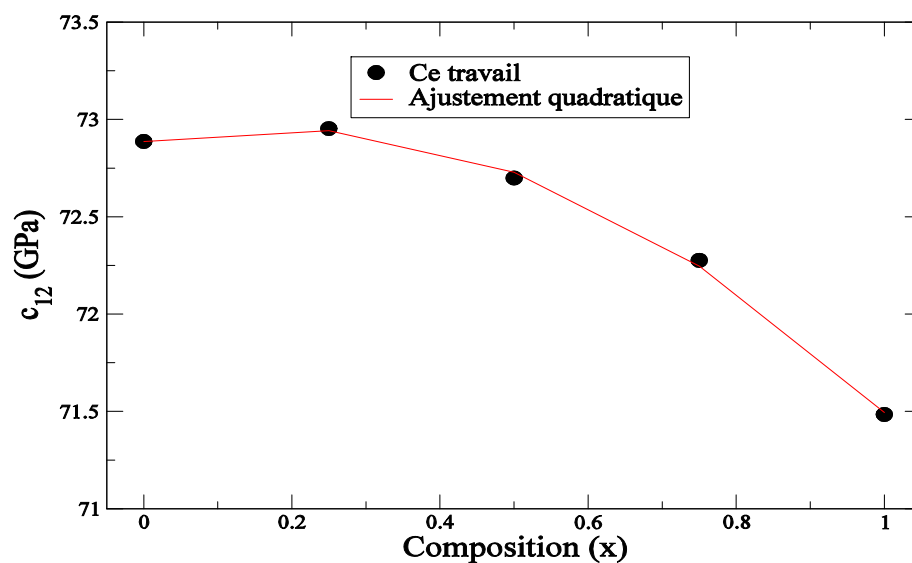
<i>composé</i>		C_{11} (GPa)	C_{12} (GPa)	C_{44} (GPa)	A_z
KTaO₃	Notre travail	443.889	72.887	96.678	0.5211
	EXPT	431 [a]	103 [a]	109 [a]	0.66 [a]
	autres	440.75 [b]	64.209 [c]	85.55 [b]	0.45 [b]
K0.75Na0.25TaO₃	Notre travail	433.324	72.953	96.329	0.5345
	EXPT	-	-	-	-
	autres	-	-	-	-
K0.5Na0.5TaO₃	Notre travail	429.663	72.698	93.312	0.5227
	EXPT	-	-	-	-
	autres	-	-	-	-
K0.25Na0.75TaO₃	Notre travail	431.723	72.276	88.159	0.4904
	EXPT	-	-	-	-
	autres	-	-	-	-
NaTaO₃	Notre travail	438.606	71.484	80.315	0.4375
	EXPT	-	-	-	-
	autres	446.805 [c]	61.27 [c]	-	0.9601 [c]

[a] : Ref. [7]. [b] : Ref. [8]. [c] : Ref.[9].

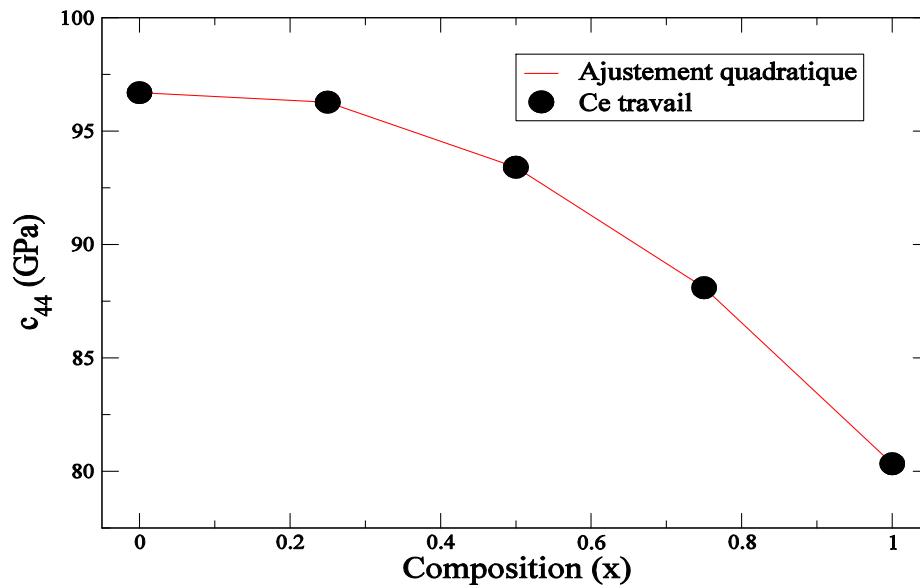
Les figures suivantes : (IV – 3), (IV – 4) et (IV – 5) représentent la variation des constantes C_{11} , C_{12} et C_{44} en fonction de la concentration x de l'atome de Na, respectivement.



Figures IV – 3 : La variation de la constante C_{11} en fonction de la composition (x).



Figures IV – 4 : La variation de la constante C_{12} en fonction de la composition (x).



Figures IV– 5 : La variation de la constante C_{44} en fonction de la composition (x).

D'après ces figures, on constate que la variation de C_{12} et C_{44} en fonction de la concentration (x) de l'atome de Na est démunie quasi linéairement, et suit les relations suivantes :

$$C_{12}(\text{K } 1-x \text{ Na } x \text{ TaO}_3) = -2.15257x^2 + 0.759893x + 72.8873$$

$$C_{44}(\text{K } 1-x \text{ Na } x \text{ TaO}_3) = -19.5717x^2 + 3.2135x + 96.6917$$

Et la variation de la constante C_{11} en fonction de la composition (x) est non linéaire, elle diminue de 0 à 0.5 puis augmente de 0.5 à 1, cette variation suit la relation suivante :

$$C_{11}(\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3) = 46.42x^2 - 51.2869x + 443.677$$

Constantes élastiques (phase polycristallin)

Dans un matériau polycristallin les grains monocristallins sont orientés de façon aléatoire. En grand échelle, ces matériaux peuvent être considérés comme isotropes. Le comportement élastique d'un système polycristallin isotrope se décrit entièrement par le module de compressibilité B et le module de cisaillement G qui sont définis dans Les approximations de Voigt _Reuss_Hill [5] par :

$$G = (G_V + G_r)/2 \quad (\text{IV-6})$$

$$B = (C_{11} + 2 C_{12})/3 \quad (\text{IV-7})$$

Avec:

$$G_V = \frac{(C_{11}-C_{12}) + (3 C_{44})}{5} \quad (\text{IV-8})$$

$$G_r = \frac{5(C_{11}-C_{12}) C_{44}}{4C_{44}+3(C_{11}-C_{12})} \quad (\text{IV-9})$$

Pour Calculer le module de Young E et le coefficient de Poisson σ , on utilise les relations données dans le chapitre III.

Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau IV-3. remarquons que les résultats de G , E , σ sont en accords à celles citées dans la littérature pour $x=0$. Toutes les valeurs calculées sont positives, on conclut que ces composés sont mécaniquement stables.

Aussi le module de compressibilité obéit à la condition $C12 < B < C11$ ce qui montre que notre alliage est élastiquement stable.

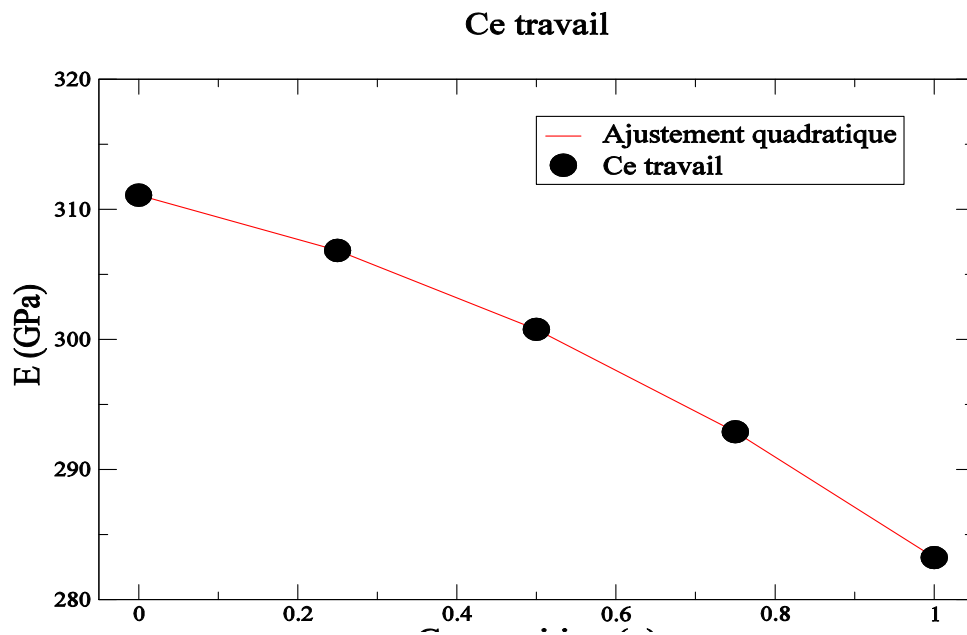
Tableau IV- 3 : Le module de compressibilité (B), le module de Young (E), le coefficient de Poisson (σ), les modules de cisaillement de Reuss (G_R), de Voigt (G_V), de Hill (G) et le rapport (B/G) de l'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ pour les concentrations 0, 0.25, 0.5, 0.75 et 1.0.

X	B	G_V	G_R	G	E	σ	B/G
0	196.5466	132.2020	119.5740	125.880 131 ^[a] 126.36 ^[b]	311.2189 325.96 ^[a] 310.48 ^[b]	0.2360 0.24 ^[a] 0.22 ^[b]	1,5612
0.25	193.0733	129.8660	118.3547	124.1103	306.6291	0.2353	1.5556
0.5	191.6800	127.3800	115.3234	121.3517	300.6156	0.2386	1.5795
0.75	192.0866	124.7800	110.7149	117.7474	293.3102	0.2455	1.6313
1	193.8533	121.6100	103.6250	112.6175	283.0422	0.2566	1.7213

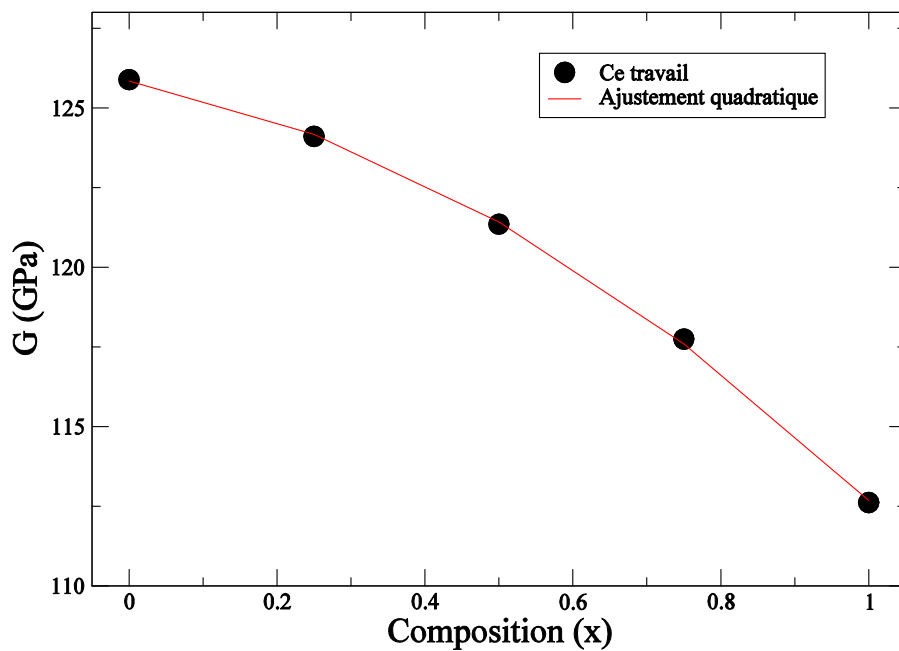
Figures (IV–6) et (IV–7) représentent la variation de E et G en fonction de la concentration (x) de l'atome de Na. On constate que cette variation est diminuée quasi linéairement et suit les relations suivantes :

$$E (K_{1-x}Na_xTaO_3) = 311.091 - 13.4137x - 14.4552x^2$$

$$G (K_{1-x}Na_xTaO_3) = 125.845 - 4.53287x - 8.62869x^2$$



Figures IV – 6 : La Variation du E de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la composition (x).



Figures IV-7 : La Variation du G de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la composition (x).

Une relation simple, a été proposée par Pugh [16], qui relie les propriétés plastiques des matériaux avec leurs modules élastiques. Le module de cisaillement G représente la résistance à la déformation plastique, tandis que B représente la résistance à la rupture [17]. Une grande valeur du rapport B/G est associée à une ductilité, tandis que, une faible valeur correspond à la nature fragile. La valeur critique qui sépare le matériau ductile et fragile est d'environ 1.75 ; si $B/G > 1.75$ le matériau se comporte d'une manière ductile, sinon le matériau se comporte d'une manière fragile.

D'après le Tableau IV-3, on remarque que les valeurs de rapport B/G sont inférieures à 1.75 ce qui signifie que ce composé est un matériau fragile. Le rapport de B/G en fonction de la concentration de ce composé est illustré sur la Figure (IV – 8). On conclut que, pour n'importe quel concentration de l'atome Na, le composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ est un matériau fragile.

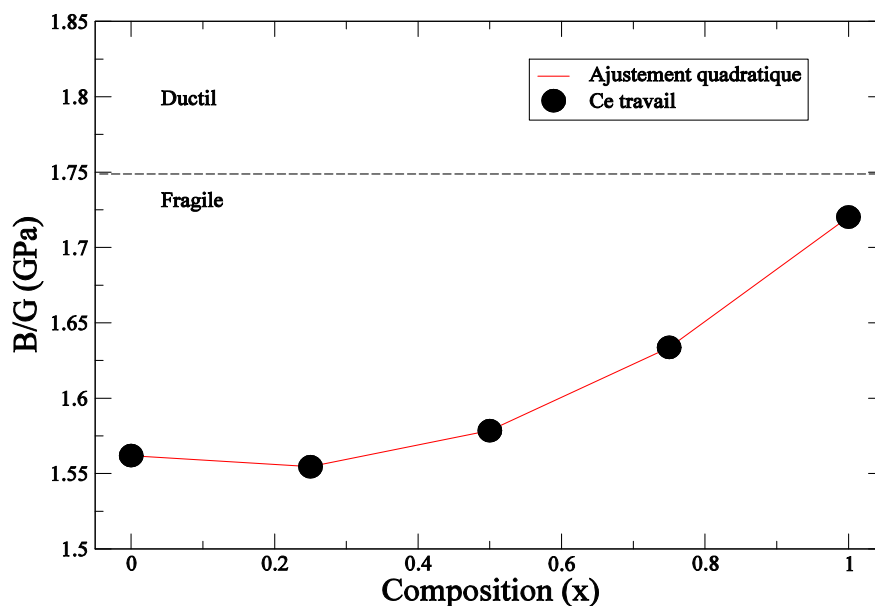


Figure IV – 8 : Variation du rapport B/G de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la concentration (x).

Le coefficient de poisson σ , mesure la stabilité du cristal contre le cisaillement. Pour des systèmes avec une interaction interatomique principalement centrale la valeur de σ est près de 0.25 [18]. Nos valeurs calculées sont données dans le tableau IV-3, toutes ces valeurs près de 0.25.

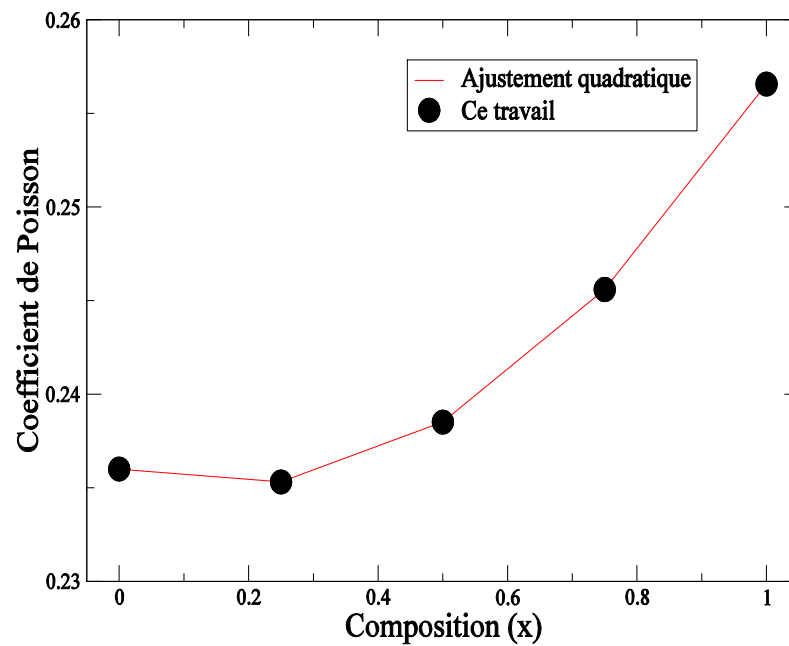


Figure IV– 9 : La Variation du Coefficient de Poisson de composé $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la composition(x).

La variation de coefficient de poisson en fonction de (x) illustrée dans la figure (IV-9), une augmentation quasi-linéaire des valeurs du Coefficient de Poisson avec la composition x, cette augmentation suit la relation suivante :

$$\sigma (K_{1-x}Na_xTaO_3) = 0.0310857x^2 - 0.0105257x + 0.236006$$

Température de Debye

Les vitesses d'ondes acoustiques transversales V_t et longitudinales V_l , la vitesses d'onde acoustique moyenne V_m , et la température de Debye θ_D sont calculées en utilisant les relations citées dans le chapitre III. Nos résultats sont présentés dans le tableau IV-4, la température de Debye diminue en fonction de la concentration (x) de l'atome de Na. Une grande valeur de θ_D implique une conductivité thermique et une température de fusion associées élevées.

Tableau IV- 4 : La vitesse d'onde acoustique longitudinale (V_l), la vitesse d'onde acoustique transversale (V_t), la vitesse acoustique moyenne (V_m), et la température de Debye (θ_D) de l'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ pour les concentrations 0,0.25, 0.5.75 et 1.0.

X	V _l	V _t	V _m	θD
0	3592.4467	2111.5187	2340.4187	475.22143
0.25	3590.5565	2112.4606	2341.2526	475.3836
0.5	3606.1498	2112.9192	2342.6470	474.4746
0.75	3598.1771	2089.7475	2318.8005	470.8248
1	3573.2909	2044.4939	2271.5539	463.5609

La variation de température de Debye en fonction de la concentration de l'atome Na est présentée dans la figure (IV-10), il est clair que cette variation est quadratique et diminue en fonction de (x). Elle suit la relation suivante :

$$\theta D(K1 - x Na x TaO3) = -20.1225x^2 + 8.97627x + 474.949$$

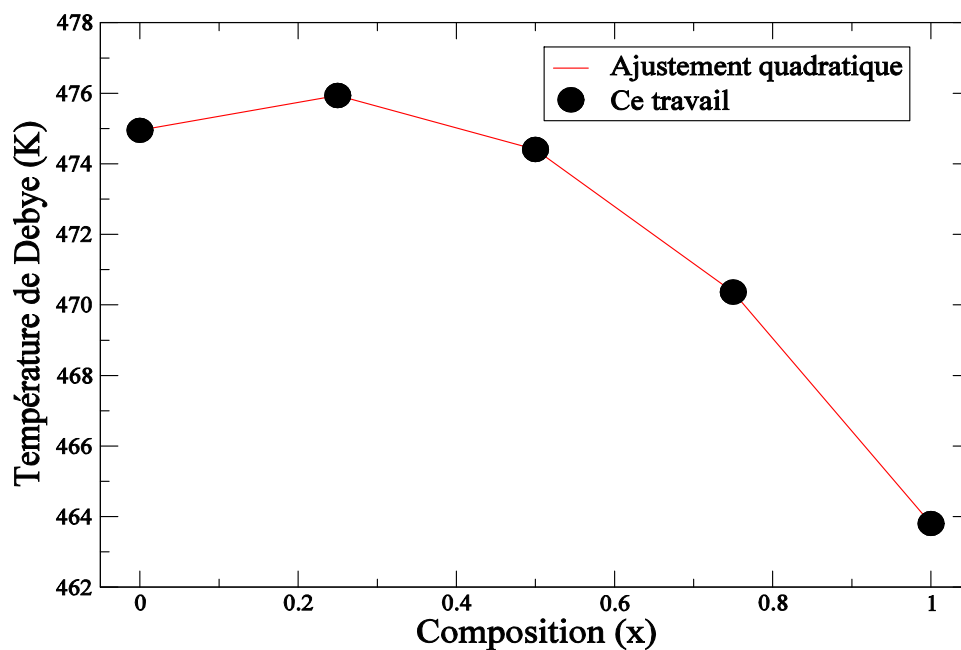


Figure IV-10 : La variation de la température de Debye d'alliage $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la composition x.

IV - 6. Propriétés Diélectriques

Le tenseur diélectrique $\epsilon_{\infty}^{\alpha\beta}$ représente la variation de la polarisation macroscopique induite dans le solide en présence d'un champ électrique macroscopique.

$$\epsilon_{\infty}^{\alpha\beta} = \delta_{\alpha\beta} + 4\pi \frac{\partial P^{\beta}}{\partial E^{\alpha}} \Big|_{U_I(q=0)} = 0 \quad \text{IV-10}$$

U_I : le déplacement induit.

Pour un système à symétrie cubique (notre cas) $\epsilon_{\infty}^{\alpha\beta}$ est un scalaire et isotrope, a une forme diagonale et possède seulement une composante indépendante, $\epsilon_{\infty}^{xx} = \epsilon_{\infty}^{yy} = \epsilon_{\infty}^{zz}$. [15].

Nos valeurs de la constante diélectrique à haute fréquence ϵ_{∞} de cet alliage sont représentées dans le tableau IV-5.

Tableau IV-5 : La constante diélectrique à haute fréquence $\epsilon_{\infty}^{\alpha\beta}$ de $K_{1-x}Na_xTaO_3$ en fonction de la concentration de l'atome Na.

Composition x	Constante diélectrique à haute fréquence $\epsilon_{\infty}^{\alpha\beta}$
0	4.9543
0.25	4.9394
0.5	4.9513
0.75	4.9673
1	4.9915

On remarque que, la constante diélectrique optique diminue de 0 à 0.5 puis elle augmente de 0.5 à 1. Cette variation est présentée dans la figure (IV-11), elle est de forme quadratique et suit la relation:

$$\epsilon_{\infty}^{\alpha\beta} (K_{1-x}Na_xTaO_3) = 4.95206 - 0.0531372x + 0.0940572x^2$$

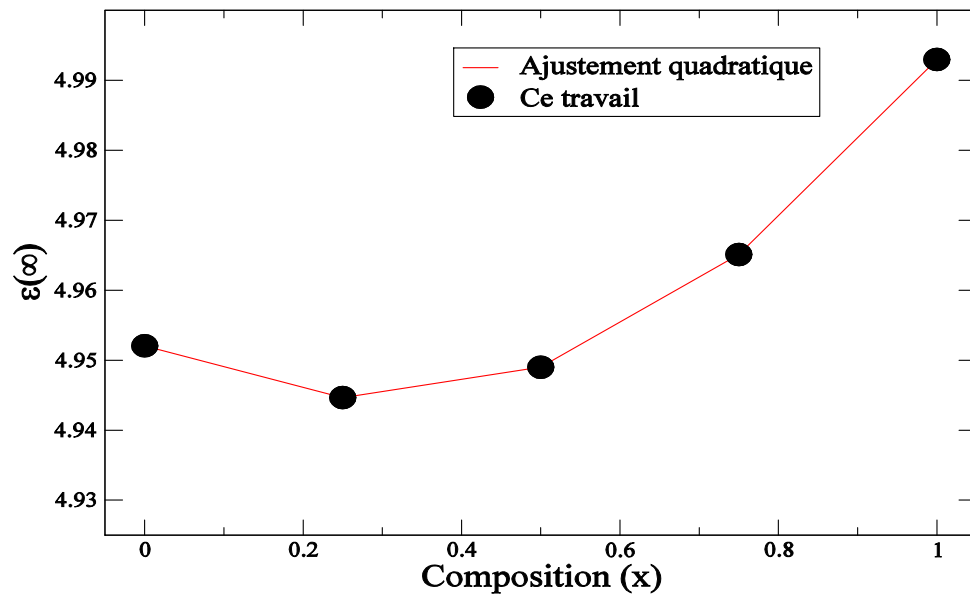


Figure IV-11 : La variation de la constante diélectrique de haute fréquence ϵ_{∞} en fonction de la composition x .

Références

- [1] The abinit code is a common project of the Univrsité Catholique de Louvain, Corning Incorporated, and other contributors, URL <http://www.abinit.org>.
- [2] D. J. Singh, Plane waves pseudopotentials and the LAPW method, Kluwer Academic Publishers 1994.
- [3] F. D. Murnaghan, N. Acad. Sci. U. S. A. 30, 5390 (1994).
- [4] Gérard Fournet. étude de la loi de Vegard. J. Phys. Radium, 1953, 14 (6), pp.374-380. 10.1051/jphysrad : 01953001406037400. jpa-00234755.
- [5] S. Karfafe, Etude des propriétés vibrationnelles des composés SbNCa_3 et BiNCa_3 . Mémoire de magister, Université 8 Mai 1945 Guelma (2012).
- [6] M. Born, K. Huang. Dynamical theory of crystal lattices. Clarendon, oxford (1956).
- [7] Y. shiozaki and E. Nakamura, T. Mitsui, ferroelectrics and related substances, Londolt_Bornstein: Numircal Datta and functional relationships in science and technologie ,vol 36 /oxide , springer _verlag, B erlin (2002).
- [8] Suleyman Cabuk. phys. status. solidi B 247 (1) (2010) 93-97.
- [9] H. Bouafia, S. Hiadsi, B. Abidri, A. Akriche, L. Ghalouci et B. Sahli. Computational materials science 75, (2013) 1-8.
- [10] S. Cabuk, H. Akkus and A.M. Mamedov, Phys. Rev. B 394 (2007) 81-85.

- [11] R. Comes and G. Shirane, Phys. Rev. B5 (1972) 1886.
- [12] Na. Zhao, Yue-Hua Wang, Qing-Xi Wang and Wen-Jing Hu. Journal of Solid State Chemistry 194 (2012) 37-42.
- [13] B. J. Kennedy, A. K. Prodjosantoso and C. J. Howard. Phys. Condens. Matter 11 (1999) 6319.
- [14] E. E. Eyi and S. Cabuk. Philos. Mag. 9 (2010) 2965-2976.
- [15] M. Souadkia, Semi-conducteurs polaires : Etude des propriétés structurales, vibrationnelles et thermodynamiques, Thèse de doctorat, Université 8 mai 1945, Guelma (2013).
- [16] S. F. Pugh, Philos. Mag. 45 (1954) 823
- [17] L. Zalani, Etude des propriétés structurales et élastiques du composé antipérovskite GeNCa_3 . Mémoire de master. Université de Guelma (2016).
- [18] K. Haddadi, Etude des propriétés structurales, élastiques et électroniques des composés antipérovskites de types XNCa_3 , Thèse de doctorat, Université de Ferhat Abbas de Sétif (2013).

L'étude des matériaux pérovskites constitue un thème de recherche très large. Dans ce travail, on a étudié les propriétés structurales, élastiques et diélectrique d'alliage $\text{Na}_x \text{K}_{1-x} \text{TaO}_3$ en fonction de la concentration (x) de l'atome de sodium (Na) pour ($x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$) en utilisant la méthode de pseudopotentiel dans le cadre de la théorie de la fonctionnelles de la densité (*DFT*) avec l'approximation de gradient généralisé (*GGA*) et la méthode de l'approximation du cristal virtuel (*VCA*).

Les propriétés structurales telles que le paramètre du réseau, le module de compressibilité B sont en bon accord avec les valeurs expérimentales et théoriques disponibles dans la littérature. L'étude des propriétés structurales de notre alliage et en particulier la variation du paramètre du réseau en fonction de la concentration (x) montre que le paramètre de réseau ne suit pas la loi de Végard, une déviation a été observée. Concernant le module de compressibilité, la variation en fonction de la concentration est quadratique. Une déviation a été observée par rapport à la loi de la dépendance linéaire de la concentration (*LCD*).

Pour étudier les propriétés élastiques de $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$, nous déterminons les constantes C_{ij} et on conclut que pour x varie de 0 à 1, l'alliage est élastiquement stable (vérifie les conditions de stabilité). Nous avons calculé le modules d'élasticité anisotropes, module de la compressibilité, module de Young, module de cisaillement et le coefficient de Poisson et la température de Debye. Tous ces grandeurs varient quadratiquement en fonction de la concentration (x). En calculant le rapport B/G et basant sur l'approche de Pugh, on a montré que $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$ est classé comme matériau fragile quelque soit la concentration de l'atome Na.

Nous avons déterminé la constante diélectrique optique et on trouve que elle augmente quasi linéairement en fonction de la concentration de l'atome Na.

Nos travaux présentent une contribution à l'étude ab-initio d'alliage pérovskite $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$. Cependant, elle reste encore d'autre propriétés qui méritent d'être explorer, telles que les propriétés dynamiques, thermodynamiques et l'effet de pression et de température.