

THESE

En vue de l'obtention du : **DOCTORAT**

Structure de Recherche : Laboratoire de physique des Hautes Energies Modélisation et Simulation (LPH-MS)

Discipline : **Physique**

Spécialité : **Physique des nouveaux matériaux**

Présentée et soutenue le : 17/03/2018 par :

Sidi OULD SIDI OULD SIDI AHMED

Étude théorique des propriétés magnétiques de la famille des structures pérovskites :

YCrO_3 , $\text{Lu}_2\text{CoMnO}_6$ et $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$

JURY

El Hassan SAIDI	PES	Faculté des Sciences, Université Mohammed V, Rabat	Président
Rachid AHLAAMARA	PH	Centre Régional des Métiers de l'Éducation et, de la Formation de Fès-Meknès, Meknès	Rapporteur
Lahoucine BAHMAD	PES	Faculté des Sciences, Université Mohammed V, Rabat	Rapporteur
Lalla Btissam DRISSI	PH	Faculté des Sciences, Université Mohammed V, Rabat	Rapporteur
Hamid KAIDI	PH	Centre Régional des Métiers de l'Éducation et, de la Formation de Fès-Meknès, Meknès	Examineur
Sanae ZRIOUEL	PA	Faculté Poly disciplinaire, Université Sultan Moulay Slimane, Beni Mellal	Invitée

Année Universitaire : 2017-2018

Résumé

Dans cette thèse nous étudions le comportement énergétiques et magnétiques de famille des pérovskites (simple, double et quadruple), dans le cas d'une température nulle, $T=0$ et pour $T \neq 0$. Nous commençons par introduire les méthodes de simulation et de calcul les plus sophistiquées telles que l'étude théorique par la simulation Monte Carlo et le calcul d'Ab-initio. Les diagrammes de phases en fonction des couplages d'échanges et des champs cristallins sont donnés. Nous examinons également les propriétés hystérétiques et l'effet des paramètres du système sur le champ coercitif, nous rapportons aussi les valeurs des exposants critiques liées aux effets des tailles de ces systèmes. Nous calculons les couplages d'échange et l'anisotropie magnétique en utilisant la méthode d'Ab-initio. Enfin, nous terminons par une conclusion et des perspectives.

Mots-clefs: Famille des pérovskites; Simulation Monte Carlo; champ moyen ; champ effectif; exposants critiques.

Author: **Sidi OULD SIDI OULD SIDI AHMED**

Supervisor: **Prof. El Hassan SAIDI**

Co-supervisor: **Prof. Lahoucine BAHMAD**

Title: **Theoretical study of the magnetic properties of The structural family of perovskites: YCrO_3 , $\text{Lu}_2\text{CoMnO}_6$ and $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$**

Abstract

In this thesis we have studied the magnetic behaviors of the family of perovskites, (single, double and quadruple), for a zero temperature $T = 0$ and for $T \neq 0$. First we start by introducing the most sophisticated simulation and calculation methods such as the theoretical study by Monte Carlo simulation and Ab-initio calculation. We give also the phase diagrams as a function of the exchange couplings and crystal fields and examine the hysteretic properties and the effect of the system parameters on the coercive field; we also determine the values of the critical exponents related to the effects of the sizes of these systems. Using the Ab-initio method, we calculate the exchange coupling and the magnetic anisotropy. Finally, we finished this thesis by a conclusion and outlooks.

Keywords: Family of perovskites; Monte Carlo simulation; Mean field approximation; Effective field theory; Critical exponents.

Productions scientifiques

1. **S. Sidi Ahmed**, et al. "Magnetic and electronic properties of double perovskite $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$: Ab-initio calculations and Monte Carlo simulation." *Chemical Physics Letters* 685 (2017): 191-197.
Doi :10.1016/j.cplett.2017.07.057.
2. **S. Sidi Ahmed**, et al. "Magnetic and electronic properties of perovskite YCrO_3 : Ab-initio calculations and Monte Carlo", Accepted in the journal of *Current Applied Physics*.
3. **S. Sidi Ahmed**, et al. "Mixed spin-1/2 and 3/2 with external magnetic field Monte Carlo simulation" (Soumis).
4. Nid-bahami, A., **S. Sidi Ahmed**, et al. "Electronic and magnetic properties of double perovskite Sr_2CoUO_6 : Heisenberg model." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 490 (2018): 1259-1266.
5. **S. Ahmed**, et al. "Phase diagrams and magnetic properties of $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ quadruple perovskite: Monte Carlo study" *Physics Letters A* (2017).
Doi : <http://dx.doi.org/10.1016/j.physleta.2017.09.025>.
6. **S. Sidi Ahmed**, et al. "Phase diagrams and magnetic properties of $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ quadruple perovskite: effective field theory 2017", (Soumis).
7. A.G. El Hachimi, O. Dakir, **S. Sidi Ahmed**, H. Zaari, M. El Yadari, A. Benyoussef, A. El Kenz, *Phys. A* 458 (2016).
Doi:10.1016/j.physa.2016.02.070.
8. **S. Sidi Ahmed**, et al. "Mixed spin-1 and spin-1/2 Blume-Emery-Griffiths model on the Bethe lattice: Monte Carlo simulation." *Superlattices and Microstructures* 109 (2017): 841-851.
Doi:10.1016/j.spmi.2017.05.07.
9. **S. Sidi Ahmed**, et al. "Kinetic Phase Transition in the Semi-infinite Spin-1 Ising Model Under a Periodically Oscillating Magnetic Field." *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* (2017):1-10.

Doi: <https://doi.org/10.1007/s10948-017-4228-9>.

10. **S. Sidi Ahmed**, Communication titled "Mixed spin-1 and spin-1/2 Blume-Emery-Griffiths Model on the Bethe lattice", Journées Nationales des Doctorants et des Jeunes Chercheurs, le 18 et 19 juillet 2017 à l'Ecole Normale Supérieure de L'Enseignement Technique de Rabat, Rabat, Maroc .

11. **S. Sidi Ahmed**, et al. "Mixed spin-1 and spin-3/2 Blume-Emery-Griffiths model with external field on a honeycomb lattice." Superlattices and Microstructures (2017).

Doi: <https://doi.org/10.1016/j.spmi.2017.11.034>.

Remerciement

Les travaux présentés dans cette thèse ont été réalisés au sein du Laboratoire de Physique des Hautes Energies, Modélisation et Simulation (LPHE-MS) du département de physique de la Faculté des Sciences de Rabat, sous la direction de Monsieur El Hassan SAIDI, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des Sciences de Rabat et la codirection de Lahoucine BAHMAD, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des Sciences de Rabat. Toute ma gratitude et mes sincères remerciements à mon directeur de thèse Monsieur El Hassan SAIDI, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des sciences de Rabat, de m'avoir accueilli dans son laboratoire, de m'avoir fait confiance en acceptant d'encadrer ce travail doctoral et de m'avoir guidé tout au long de mes études. Merci aussi de l'honneur qu'il m'a fait en acceptant d'être président du jury.

Je tiens à remercier chaleureusement mon codirecteur de thèse Monsieur Lahoucine BAHMAD, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des sciences de Rabat, pour m'avoir guidé, encouragé, conseillé et pour le formidable encadrement qu'il m'a accordé tout au long de ce travail. Sa disponibilité et son sens de transmission des connaissances scientifiques m'ont permis de mener à bien ce travail. Je le remercie, non seulement pour ses compétences scientifiques, mais aussi pour ses qualités humaines, et ses conseils judicieux

Je suis particulièrement reconnaissant à Monsieur Rachid AHL LAAMARA, Professeur Habilité au Centre Régional des Métiers de l'Education et de la Formation de Fès-Meknès, pour avoir mis à ma disposition ses compétences scientifiques et m'avoir fait profiter de ses expériences durant mes études en cycle de Master. Merci également pour avoir accepté de rapporter mon travail de thèse.

Je remercie infiniment Madame Lalla Btissam DRISSI, Professeur Habilitée à la Faculté des Sciences de Rabat, d'être disponible pour ma pré-soutenance, de m'avoir prodigué maints conseils et d'avoir accepté la fonction du rapporteur. Je vous remercie également Madame pour avoir mis à ma disposition vos connaissances scientifiques durant mes études en cycle de Master. Vos remarques et vos conseils se sont révélés très enrichissants.

J'adresse aussi mes remerciements à Monsieur Hamid KAIDI, Professeur Habilité au Centre Régional des Métiers de l'Education et de la Formation de Fès-Meknès, Meknès, d'avoir accepté d'examiner ce travail.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à Madame Sanae ZRIOUEL, Professeur Assistante à l' Université Sultan Moulay Slimane, Beni Mellal , d'avoir acceptée de participer au jury de cette thèse.

Bien que la thèse soit fondamentalement un travail individuel, elle n'aurait pu être menée à bien sans une équipe de collègues qui contribuent au bon fonctionnement du laboratoire, avec lesquels il est possible d'échanger conseils et suggestions. Je remercie pour cela tous mes anciens et actuels collègues des laboratoires LPHE-MS.

Enfin j'ai une pensée particulière pour mes parents et toute la famille qui m'ont toujours encouragé et soutenu, et qui m'ont appris la valeur du travail et du savoir, ce dont je leur en suis chaleureusement reconnaissant.

Liste des abréviations

2D	Deux dimensions
3D	Trois dimensions
DP	Double Pérovskite
DFT	Théorie fonctionnelle de la densité
DOS	Densités d'états
SMC	Simulation Monte Carlo
ACM	Approximation du Champ Moyne
PPV	Premiers Proches Voisins
DFT	Density Functional Theory
LDA	Local Density Approximation
GGA	Generalized Gradient Approximations
FP-LAPW	Full-Potential, Linearized Augmented Plane Wave
GMR	Magnéto-Résistance Géante
LAPW	Linearized Augmented Plane Wave
FPV	Famill des Pérovskites
PV	Pérovskite
FCC	Cubique centrée
Fi	Ferrimagnétique
FM	Ferromagnétiques
AFM	Antiferromagnétiques

MTJ	Jonction de tunnel magnétique
NN	Plus proche-voisins
NNN	Prochains voisins les plus proches
T_C	Température de Curie
FiM	Ferrimagnétique
MBJ	Becke et Johnson modifiée
TM	Métal de Transition
PDOS	Densité d'état partielle
FPLAPW	Ondes planes augmentées linéarisées à potentiel total
QP	Quadruple pérovskite
TCF	Théorie du Champ effectif

Table des matières

Introduction générale	1
Chapitre 1 : Pérovskites et phénomènes critiques	8
1.1 Spintronique	9
1.1.1 Magnétorésistance anisotrope (MRA)	10
1.1.2 Magnétorésistance géante (GMR)	10
1.1.3 Jonction tunnel magnétique	11
1.2 Structure cristalline	11
1.2.1 Défauts de structure pérovskite.....	13
1.2.2 Facteur de tolérance	13
1.2.3 Propriétés physiques	14
1.3 Phénomènes critiques	15
1.3.1 Diagrammes de phase	16
1.3.2 Paramètres d'ordre	17
1.3.3 Classification des transitions de phase	17
1.4 Cycle hystérésis	18
1.4.1 Paramètres caractéristiques des cycles d'hystérésis.....	18
1.4.2 Matériaux magnétiques doux et durs	20
1.4.3 Applications des cycles d'hystérésis.....	20
1.5 Températures de transitions	21
1.5.1 Température de Curie	21
1.5.2 Température de Néel.....	21
1.5.3 Température de compensation	21
1.6 Théorie du champ moyen	21
1.6.1 Équations du champ moyen	21
1.6.2 Paramètres d'ordre du système	23
1.6.3 Exposants critiques β, α, δ	24
Chapitre 2 : Modèles théoriques et méthodes numériques	26
2.1 Modèles de spin	27

2.1.1	Modèles d'Ising	27
2.1.2	Modèle de Heisenberg	28
2.1.3	Modèle de Blume-Emery-Griffiths.....	28
2.2	Théorie de la fonctionnelle de la densité	29
2.2.1	Théorie de Hohenberg et Cohen	32
2.2.2	Approximation de la densité locale (LDA).....	33
2.2.3	Approximation du gradient généralisé (GGA)	33
2.3	Théorie du Champ effectif	33
2.3.1	Étude de $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ (5/2,3/2,1/2)	34
2.3.2	Équation de l'état du système.....	35
2.3.3	Température de transition	39
2.4	Méthode de Monte Carlo	39
2.4.1	Echantillon important.....	41
2.4.2	Balance détaillée	42
2.4.3	Taux d'acceptation	43
	Chapitre 3 : Contributions scientifiques	46
3.1	Études des transitions de phase, des propriétés magnétiques et électronique delapérovsuite YCrO_3	46
3.1.1	Étude par méthode de l'Ab initio.....	47
3.1.2	Simulation par Monte Carlo	50
3.1.3	Conclusion	54
3.2	Propriétés magnétiques et électroniques de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$	60
3.2.1	Calculs d'Ab initio.....	63
3.2.2	Simulation par Monte Carlo.....	65
3.2.3	Coclusion.....	73
3	Diagrammes de phase et propriétés magnétiques de $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$	
	Quadruple Pérovskite	76
3.3.1	Model simulé	77
3.3.2	Méthode de simulation.....	78
3.3.3	Coclusion	88
	Conclusion général	92
	Références	96

Introduction générale

Le magnétisme était connu des civilisations anciennes depuis des milliers d'années [1-3]. Au cours des derniers siècles, les propriétés magnétiques de la matière en phase condensée ont été bien documentées [4]. La température, l'anisotropie et d'autres paramètres ont un effet sur les propriétés magnétiques des systèmes [5]. Le magnétisme est le phénomène par lequel les matériaux exercent une force ou une influence répulsive ou attractive sur d'autres matériaux [6]. Les matériaux magnétiques sont devenus omniprésents dans notre environnement vu leur grand usage dans la technologie moderne. Ils composent de nombreux dispositifs électromécaniques et électroniques, notamment les générateurs d'énergie électrique et les transformateurs, les moteurs électriques, la radio, la télévision, les téléphones, les ordinateurs et les composants des systèmes de reproduction sonore et vidéo, etc [7]. Le moteur électrique, qui utilise le champ magnétique est considéré comme l'une des applications les plus anciennes [2-3].

Certains aciers, et la Lod stone minéral naturel sont des exemples bien connus de matériaux qui présentent des propriétés magnétiques [8]. Le magnétisme se produit au niveau sous-atomique à partir de la polarisation localisée des nuages d'électrons de certains atomes provenant d'électrons non appariés. Cela permet à la charge sur l'atome d'avoir un moment angulaire. Une question centrale dans la physique de la matière condensée concerne l'origine du magnétisme.

Les matériaux magnétiques se subdivisent en quatre types différents:

Matériaux ferromagnétiques : ces matériaux se caractérisent par une aimantation forte qui a le même sens que celui du champ inducteur, elle croît avec le champ inducteur jusqu'à atteindre une limite. Parmi ces matériaux on peut citer par exemple : Fer, Nickel, Acier et Cobalt.

Matériaux paramagnétiques: ces matériaux présentent une aimantation faiblement proportionnelle à celle du champ inducteur, possédant le même sens, exemple : Aluminium, Platine et Manganèse.

Matériaux diamagnétiques: ces derniers ont une alimentation proportionnelle à celle du champ inducteur mais des sens contraire, par exemple: le Cuivre, Zinc, Or et l'Argent

Matériaux antiferromagnétiques : dans les matériaux antiferromagnétiques, l'interaction d'échange entre les atomes voisins conduit à un alignement antiparallèle des moments magnétiques atomiques. L'aimantation totale du matériau est alors nulle. Tout comme les ferromagnétiques, ces matériaux deviennent paramagnétiques au-dessus d'une température de transition appelée température de Néel. Parmi les éléments chimiques, le seul qui possède des propriétés antiferromagnétiques à température ambiante est le chrome [9,10]. Le magnétisme existe sous deux formes différentes, le magnétisme intrinsèque qui concerne les propriétés magnétiques relatives à la structure électronique et d'autres principes fondamentaux dans les métaux ou les non-métaux, le magnétisme extrinsèque qui est relatif aux propriétés des domaines magnétiques et des phénomènes connexes [11].

Les matériaux pérovskites est l'un des composés les plus importants qui contient au moins un élément magnétique. Les matériaux pérovskites en général sont une classe d'oxydes magnétiques qui ont pris de l'importance ces dernières années en tant que matériaux spintroniques. Leur nom provient du minéral CaTiO_3 qui a une structure cristalline similaire. Ce minéral a été décrit pour la première fois en 1830 par le géologue Gustav Rose qui l'a baptisé du nom du minéralogiste russe Lev Aleksevich Von Pérovskite. L'arrangement de réseau de pérovskite est démontré ci-dessous [12]. Comme avec beaucoup de structures en cristallographie, il peut être représenté de plusieurs manières. La façon la plus simple de penser à un perovskite est un gros cation atomique ou moléculaire (chargé positivement) de type A au centre d'un cube. Les coins du cube sont alors occupés par des atomes B (également des cations chargés positivement) et les faces du cube sont occupées par un plus petit atome X de charge négative (anion). Il existe autre famille de perovskite ayant comme formule générale $\text{A}_2\text{BB}'\text{O}_6$ (double pérovskite) [13]. Les systèmes de double pérovskite, représentés par $\text{A}_2\text{B B}'\text{O}_6$, ont captivé les intérêts de recherche actuels en raison de la flexibilité de leur structure, permettant de nouvelles applications de dispositifs provenant de leur faible réactivité, de leurs bonnes propriétés diélectriques, magnétiques et optiques [14, 15]. Vers la fin des années 90, ces matériaux ont présenté des propriétés intéressantes, telles que le demi-métallicité, le haut ferrimagnétisme de température et une riche

variété d'interactions magnétiques, qui ne peuvent être réalisés dans des matériaux simples. Les familles de pérovskite implique également d'autres types de Pérovskites nommés quadruple pérovskite ont comme formule générale $AA'_3B_4O_{12}$ qui résulte de la substitution chimique, dans une composition de pérovskite, dans les trois quarts des sites A avec des ions magnétiques A' . L'évolution des technologies de l'information est utile dans l'évolution parallèle des ressources de stockage et de traitement numérique. Ces deux ressources font appel à des matières spécifiques avec des caractéristiques originales. Ces caractéristiques peuvent être atteintes grâce à des découvertes dans le domaine de la spintronique. La révolution de l'informatique est aujourd'hui une partie de la suite de la découverte de la magnétorésistance géante (GMR). Citant par exemple, les disques durs, qui ont une capacité de stockage de plusieurs dizaines de méga-octets dans les années dernières. L'utilisation de la GMR permet d'augmenter la capacité des disques durs actuels à des valeurs de quelques centaines de giga-octets même téraoctets. Ce n'est pas le seul exemple, parce que l'impact de l'introduction de mémoire magnétique (Random Access Memory - magnétique M-RAM) est encore plus grande [16]. L'importance de la spintronique aujourd'hui a été illustrée par le prix Nobel de physique 2007, décerné à Albert Fert et Peter Grünberg pour leur découverte de la GMR à la fin des années 80. Une forte interaction entre les propriétés électriques et magnétiques est exigée, et donc de nouveaux matériaux doivent être considérés et même conçus.

Dans le cadre théorique, et pour mieux comprendre les propriétés magnétique des system physiques suggèrent plusieurs méthodes telle que : la théorie du champ effectif, l'approximation de champ moyen, la matrice de transfert, la méthode de groupe de normalisation, les calculs Ab-initio et simulations de Monte Carlo.

Le but général de cette thèse est de développer une compréhension théorique l'échelle atomique dans le fond de la physique statistique des propriétés magnétiques de la famille pérovskites (simple, double et quadruple pérovskite) $YCrO_3$, Lu_2CoMnO_3 et $CaCu_2FeOsO_{12}$. Pour plus comprendre le comportement magnétique de cette classe de matériaux on s'est proposé de répondre aux questions suivantes : Quelle est le comportement magnétique de ces matériaux par rapport aux différents couplages d'interaction et par rapport aux champs cristallins dominant dans sa

structure ? Quels comportements magnétiques observe-t-on ? et quels états de spins sont les plus stables de cette classe de matériaux à une température nulle ($T=0$) ?

Pour répondre à ces questions dans la partie de nos contributions scientifique, nous rapportons les résultats existants dans la littérature, nous interprétons à notre façon les résultats qui sont sujet de débats actuel, et nous donnons une contribution détaillée à savoir théorique des phénomènes étudiés. Pour ce fait, nous avons utilisé des méthodes statistiques, telles que l'approximation de champ moyen (ACM) et la théorie du champ effectif (TCF), simulations Monte Carlo (SMC) et méthode Ab initio.

L'organisation de cette thèse est la suivante: la première partie présentera une introduction générale sur les matériaux magnétiques et pérovskites.

Dans la deuxième partie : Un aperçu historique se concentrera sur l'arrière-plan nécessaire des méthodes de calculs qui ont fourni les résultats présentés dans cette thèse.

La 1^{ère} contribution est consacré à présenter les résultats de nos différentes travaux de recherche sur la pérovskite simple YCrO_3 , en utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) et les simulations Monte Carlo (SMC) dans le cadre du modèle de Heisenberg, nous avons étudié les propriétés magnétiques de la perovskite YCrO_3 . Les couplages d'échange du modèle de Heisenberg et l'anisotropie magnétique sont calculée. En utilisant des simulations de Monte Carlo, le comportement d'aimantation, les effets des paramètres du système et les exposants critiques du composé YCrO_3 ont été implémentés.

Dans la **2^{ème} contribution** nous avons étudié les propriétés électroniques et magnétiques de double pérovskite $\text{Lu}_2\text{CoMnO}_6$, nous avons utilisé la méthode de Monte Carlo et le calcul d'Ab initio les principes résultats obtenue : les effet des couplage d'change, la tailles du système et de l'anisotropies magnétique sur les diagrammes des phases magnétique, les transition des phase du premier et du seconde ordre, les points critique isoles déterminés à des températures faibles.

Dans la **3^{ème} contribution** nous avons examiné, théoriquement, les propriétés magnétiques du quadruple perovskite. Pour ce faire, on utilise la méthode de simulation Monte Carlo basé sur le modèle d'Ising, nous trouvé que les paramètres du système affectent les diagrammes des phases magnétique, la ligne de transition du premier ordre et du seconde ordre dans les diagrammes trouvée, délimitent les phases ordonnées de la phase paramagnétique, le effet des paramètres du système sure la

boucle hystérésis. Enfin, nous fermons cette thèse par une conclusion et des perspectives.

Chapitre 1
Pérovskites et phénomènes critiques

Chapitre 1

Pérovskites et phénomènes critiques

Les oxydes de pérovskites de formule ABO_3 sont des matériaux fonctionnels très importants aux propriétés physiques polyvalentes allant de la magnéto-résistance géante "GMR" [17, 18], dont le caractère : demi-métallicité [19], transition métal-isolant [20, 21], la multiferroïcité [22], le comportement ferrimagnétique à haute température (450K) [23], non liquide de Fermi [24], présentent un état fondamental de liquide de spin [25], la magnéto-diélectricité [26, 27], les propriétés magnéto-optique [28], la superconductivité [29-31], le comportement semi-conducteur etc [32]. Les oxydes de formule générale $A_2BB'O_3$ (A: le cation alcalino-terreux ; B-B': cations de métaux transition et O un atome d'oxygène) appartient à la classe des oxydes connue par la double pérovskite [33]. Cette classe implique également d'autres types de magnétismes avec des compositions comme les quadruples pérovskites de formule $AA'_3B_4O_{12}$, qui due à la substitution chimique au sein de composition de pérovskite, d'où les trois quarts des sites A sera liés avec des ions magnétiques A' [34-40].

Cette classe est généralement connue sous le nom de "pérovskite ordonnée sur le site A" oxydes ", où les deux sites A' et B contiennent des ions de métaux de transition liés et distribué de façon quadrique autour d'ions oxygène de forme octaédrique [41].

Lorsque les éléments magnétiques occupent les sites A' et B, de nouvelles interactions d'échange apparaissent dans le système comme les A'-A' et les interactions A'-B, en plus de l'interaction classique B-B qui peuvent être observées dans de nombreux pérovskites ternaires. Par exemple, Cu^{2+} les ions dans les sites A' sont couplés ferromagnétiquement (interaction ferromagnétique A'-A) dans $CaCu_3Sn_4O_{12}$ et $CaCu_3Ge_4O_{12}$, alors que antiferromagnétiquement (interaction antiferromagnétique A'-A') sont couplés dans $CaCu_3Ti_4O_{12}$ [42-44]. D'autre part, Cu^{2+} ions dans les sites

A' sont couplés antiferromagnétiquement par des ions Mn^{4+} dans les sites B, qui conduisent à la phase ferrimagnétique avant la transition du Curie approximativement la température ambiante [45]. En outre, un couplage antiferromagnétique a été signalé entre les ions Cu^{2+} dans les sites A' et les ions magnétiques $Mn^{3,75+}$ dans les composées $LaCu_3Mn_4O_{12}$ et $BiCu_3Mn_4O_{12}$ [46]. Afin d'améliorer les propriétés d'un perovskite $AA'_3B_4O_{12}$, la moitié des sites B peut être substituée par l'autre élément B', conduisant à une autre formule pérovskite $AA'_3B_2B'_2O_{12}$. Par exemple, la composition $CaCu_3Cr_2Sb_2O_{12}$ a été rapportée comme un isolant ferromagnétique, qui ont cristallisé avec le groupe d'espace Pn-3, montrant un couplage antiferromagnétique entre les ions Cu et Cr [47], ce qui est différent du comportement métallique paramagnétique de son composé de famille $CaCu_3Cr_4O_{12}$ [48]. Il est intéressant de mentionner que parmi les compositions synthétisées $CaCu_3B_2B'_2O_{12}$, seulement $CaCu_3Cr_2Sb_2O_{12}$ et $CaCu_3Ga_2M_2O_{12}$ (M=Sb et Ta) respectent l'ordre de répartition simultanée des cations sur les sites A' et B [49-53].

1.1 Spintronique

La spintronique est une technique qui exploite à la fois la propriété quantique du spin et charge des électrons pour le but de stocker des informations. Récemment, des études ont rapporté l'importance de cette application dans la vie courante par exemple les mémoires magnétiques de nos disques durs. Cette technologie a permis la mise sur le marché des ordinateurs portables, des clés MP3 et des téléphones mobiles etc [54]. Dans l'industrie électronique moderne, la spintronique est la clé de l'innovation pour révolutionner le marché des appareils électroniques. Cette technologie ouvre entre autre de propriété intéressante à savoir : la densité de stockage élevée, économisé la consommation d'énergie, un non volatilité du stockage des données et la grande vitesse de traitement des données [55].

Les progrès dans les techniques de fabrication de nanomatériaux magnétiques tels que Fe, Ni, Co, Cr a été étudiés depuis la fin de l'année 1980 suivi par d'autre investigation sur les couches minces (nanomètres) de matériaux magnétiques et non magnétiques. Les études élaborés sur les multicouches magnétiques a conduit à des nombreuses découvertes et un immense potentiel d'applications [56].

Le mode de fonctionnement des dispositifs spintroniques est basé sur la succession de processus suivant: d'abord les données d'entrée "l'information" sont stockées, puis écrites en spins comme spin-up d'orientation de spin particulier ($S \uparrow$) ou spin-down ($S \downarrow$), après les spins, étant les propres spins des transporteurs mobiles, porter l'information au long d'un conducteur, et enfin la sortie de l'information est la phase final pour terminer le processus [57].

Le traitement de l'information à partir de spin des électrons ont conduit de réalisées des nouvelles applications intéressante tel que les capteurs avancés et les mémoires magnétiques [58]. Récemment, de pensé sur la séparation de charge et le spin de l'électron a été dominé, en ignorant le mouvement des électrons jusqu'à la découverte de spins [59]. Des avancés technologique sur le technique spinotrique ont conduit de produire de nouveaux dispositifs intégrables aux circuits à haute densité de la microélectronique (RAM). Cette dernière est le produit et/ou procédé innové par cette technique. Cependant, le spintronique a prospéré et évolue vers les nano dispositifs hybrides de semi-conducteurs et ferromagnétiques qui est applicable à l'optoélectronique, l'électronique, l'enregistrement et l'information quantique [60].

Au cours du période 1920-1930 connue une révolution technologique sur l'invention du magnétophone et disque dur. Cette révolution est basée essentiellement sur la conception de l'enregistrement magnétique les plus majeures.

1.1.1 Magnétorésistance anisotrope (MRA)

En 1856 la magnétorésistance ordinaire a été révèle par William Thomson, son expérience a montré un effet primordiale du fer sur la résistance, lorsque le courant et la force magnétique ont le même sens la résistance augment, en revanche, la résistance diminue lorsque la courant est perpendiculaire à la force magnétique. Il a répété la même expérience avec du nickel, le résultat de l'expérience avait une ampleur de l'effet plus grande. Cet effet est appelé magnétorésistance anisotrope (MRA).

1.1.2 Magnétorésistance géante (GMR)

Cette phénomène a été révèle pour la première fois dans des multicouches magnétique comme le fer et non magnétique comme le cuivre, ils sont superposées de façon alternées, avec des épaisseurs de faible dimension. Ces multicouches présentent

une propriété qu'on appelle la magnétorésistance géante. A la présence d'un champ magnétique leur résistance électrique diminue très fortement et courant se met alors à traverser les multicouches.

1.1.3 La jonction tunnel magnétique (MTJ) : La magnétorésistance tunnel (TMR) est un effet magnéto résistif qui a lieu pour des jonctions tunnel magnétique (MTJ), qui est un composant consistant en deux ferromagnétiques séparés par un isolant mince. Pour le cas où la couche isolante est assez mince, les électrons peuvent passer d'un ferromagnétique à l'autre, en physique classique ce processus est impossible, ce phénomène est purement quantique, et obtenu en technologie de film mince.

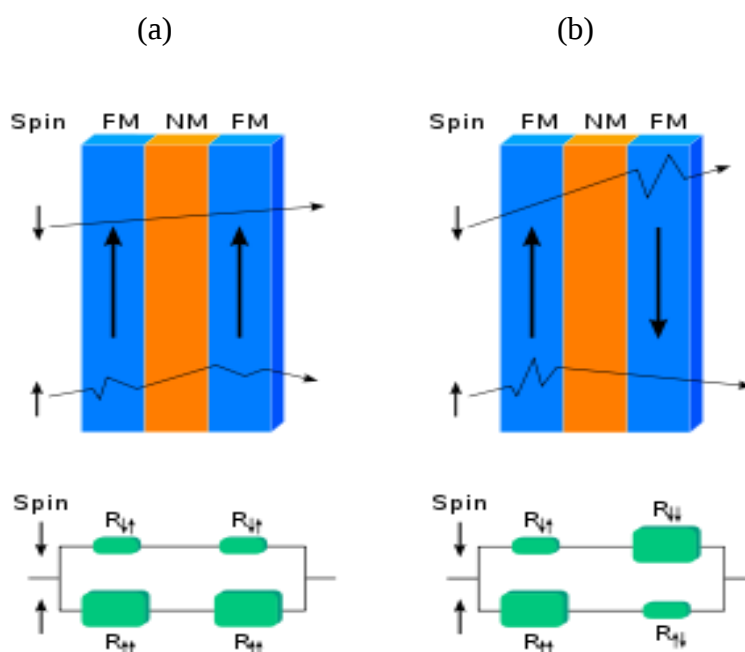


Figure 1.1 : Principe de fonctionnement de la magnétorésistance géante.

(a) Magnétisation parallèle et (b) Magnétorésistance antiparallèle.

1.2 Structure cristalline

Selon les travaux des H.F. Naylor et O.A. Cook la structure de CaTiO_3 à température ambiante a été déterminée [61], ce calcul a été confirmé par plusieurs auteurs. Le CaTiO_3 se cristallise à un groupe d'espace (Pbnm) et des paramètres cristallins: $a_0=5.441 \text{ \AA}$, $b_0=7.644 \text{ \AA}$, $c_0=5.381 \text{ \AA}$, ces paramètres sont reliés au paramètre de la pérovskite cubique idéale a_c par les relations :

$a_0 = c_0 = a_c\sqrt{2}$ et $b=2 a_c$ [62]. La stabilité de ce composé est liée des tailles des ions Ca^{2+} , Ti^{4+} et O^{2-} , qui peuvent changer par l'application d'une température T ou la pression P (comme dans la figure ci-dessous).

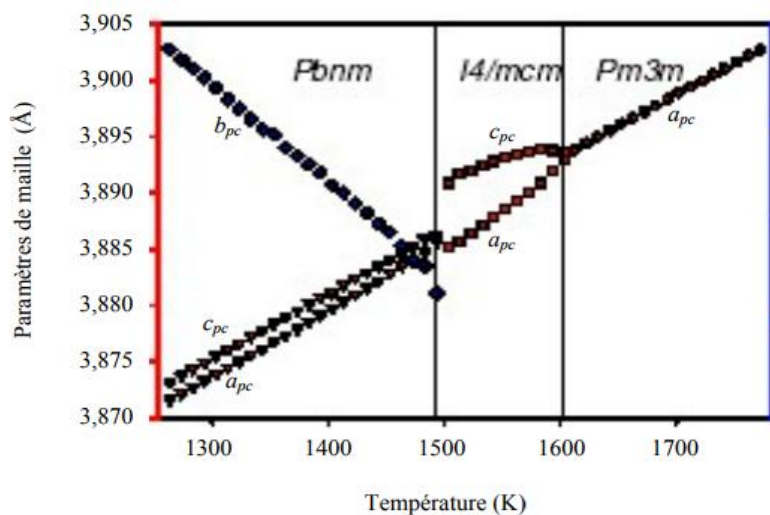


Figure 1.2: Transitions de phases et paramètres cristallins de CaTiO_3 [63].

Comme illustrée sur la figure ci-dessus, nous avons retrouvé l'effet de la température sur l'espace de groupe et les paramètres de maille du système, de plus, les transformations géométriques suivantes lors de l'augmentation de la température (pour les composés BaTiO_3 et KNbO_3):

Rhomboédrique $\leftrightarrow$ Orthorhombique $\leftrightarrow$ Tétragonal $\leftrightarrow$ Cubique

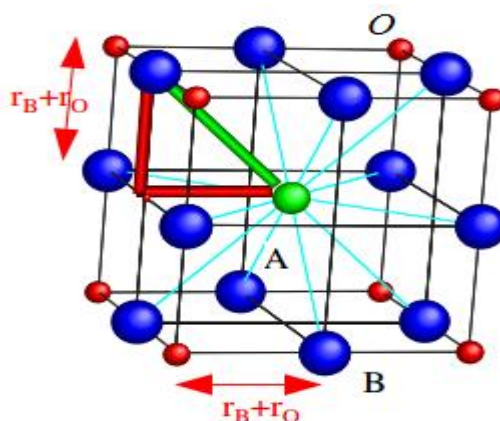


Figure 1.3: Maille de perovskite simple ABO_3 . A dans les coins sont les cations de métaux alcalino-terreux, B au centre est un cation de métal de transition et O au centre des faces sont les anions d'oxygène.

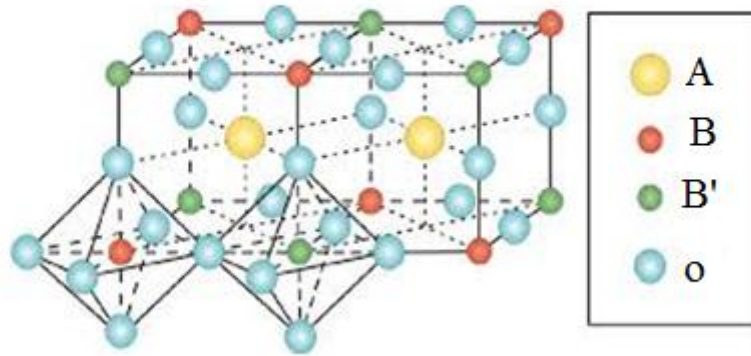


Figure 1.4: La structure idéale d'une double pérovskite $A_2BB'O_3$. A-cations dans le centre de chaque réseaux, B et B 'sont les cations de métaux de transition, O sont les anions d'oxygène.

1.2.1 Défauts de structure pérovskite

Les défauts en matériaux pérovskites peuvent résulter de l'insuffisance des cations dans Les sites de A où de B aussi bien que de l'insuffisance ou l'excès de l'oxygène dans ces derniers.

1.2.2 Facteur de tolérance

Le réseau pérovskite est un ensemble très compact qui ne permet pas la formation des compositions interstitielles, en revanche de nombreuses substitutions sont possibles sur les sites A ou B. Chaque composition peut présenter une structure pérovskite distordue en fonction de la taille des cations occupant les sites A et B.

Pour le triangle rectangle isocèle (marqué sur la figure 1.3 avec des lignes épaisses) la longueur du côté est $r_A + r_O$ et celle de l'hypoténuse $r_B + r_O$. Où r_A , r_B et r_O sont respectivement les rayons ioniques des éléments des sites A, B et de l'oxygène.

On peut alors écrire:

$$2(r_A + r_O)^2 = (r_B + r_O)^2 \text{ Soit } \sqrt{2}(r_B + r_O) = (r_A + r_O) \text{ Le rapport vaut } \frac{(r_A + r_O)}{2\sqrt{r_B + r_O}}$$

pour la structure cubique. Goldschmidt a défini le facteur de tolérance dans

l'équation (1.1) qui permet de définir la stabilité de la structure pérovskite [64]. Le facteur de Goldschmit est défini comme suite:

$$t = \frac{(r_A + r_O)}{\sqrt{2}(r_B + r_O)} \quad (1.1)$$

Pour la double pérovskite on remplace r_B par sa valeur moyen $\langle r_B \rangle$ qui est la valeur moyenne des rayons cationiques B et B' [65]. Ceci donne la relation suivante:

$$\sqrt{2}(r_A + r_O) = 2\left(\frac{(r_B + r_{B'})}{2} + r_O\right) \quad (1.2)$$

Le facteur de tolérance de Goldschmidt (t), qui est le rapport des deux expressions, la longueur du réseau dans l'équation. (1.1) et le rayon de la double Perovskite dans l'équation (1.2), ce qui donne des informations sur le degré de distorsion et qui peut être décrit comme:

$$t = \left(\frac{(r_A + r_O)}{\sqrt{2}\left(\frac{(r_B + r_{B'})}{2} + r_O\right)} \right) \quad (1.3)$$

La température de transition T_C des DP ferromagnétiques est étroitement liée au facteur de tolérance [66], Le composé de pérovskite cubique idéal a un facteur de tolérance ($t \approx 1$). T_C est maximal pour $0,99 < t < 1,05$. La structure cristalline cubique se produit pour $0,75 < t < 0,96$ et Pour $0,96 < t < 0,99$ on a une distorsion rhomboédrique.

1.2.3 Propriétés physiques

Les pérovskites ont une structure cubique avec la formule générale ABO_3 . Dans cette structure, un ion A-site, sur les coins du réseau, est généralement un élément alcalino-terreux ou des terres rares. Les ions du site B, au centre du réseau, pourraient être des éléments de métal de transition 3d, 4d et 5d. Un grand nombre d'éléments métalliques sont stables dans la structure de la pérovskite, si le facteur de tolérance t est compris entre 0,75 et 1,0.

Les propriétés et applications d'un certain nombre d'oxydes de métaux mixtes pérovskites phase importants sont résumées dans le tableau 1.1 [67].

Matériaux	Propriétés	Applications
BAO_3	Diélectrique	Capacité, capteur
$(\text{BaSr})/\text{TiO}_3$	Pyroélectrique, piézoélectrique	Le capteur PYRO
PbTiO_3	Pyroélectrique, piézoélectrique, électro-optique	Le capteur PYRO, Transducteur électro-acoustique
$\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$	Diélectrique, pyroélectrique, piézoélectrique, électro-optique	Une mémoire non volatile, Le capteur PYRO, dispositifs à ondes acoustiques de surface, dispositif à guide d'ondes optiques
$(\text{Pb, La})(\text{Zr, Ti})\text{O}_3$	Pyroélectrique, électro-optique	Le capteur PYRO, dispositif à guide d'ondes optiques, affichage de la mémoire optique.
LiNbO_3	Piézoélectrique	Le capteur PYRO, dispositif à ondes acoustiques de surface
(LiNb /Ti)	Electro-optique	dispositif de guide d'onde optique, la génération de seconde harmonique, modulateur acousto-optique.
$\text{K}(\text{Ta,Nb})\text{O}_3$	Pyroélectrique, électro-optique.	Le capteur PYRO, dispositif de guide d'onde optique, Doubleur de fréquence
$\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$	Diélectrique	Mémoire, condensateur

Tableau 1 .1 : Les propriétés et applications d'un certain nombre d'oxydes de métaux mixtes pérovskites.

1.3 Phénomènes critiques

La physique des points critiques est l'étude des phénomènes aux points de changement de phase (points critiques). Ces phénomènes critiques comprennent les relations entre les différentes quantités physique lors d'une transition de phase du 1^{er} ordre tel que la discontinuité de l'état d'un système physique, et du 2^{ème} ordre tel que

la divergence en loi de puissance de certaines quantités (telles que la susceptibilité magnétique dans la transition de phase ferromagnétique) décrits par des exposants critiques, l'universalité, le comportement fractale, et la rupture d'ergodicité.

L'étude d'un tel phénomène présente des difficultés car le comportement critique est généralement différent de l'approximation du champ moyen qui est valide à une distance de la transition de phase, étant donné que ce dernier néglige l'effet des couplages des spins (dans les transitions du 2^{ème} ordre), qui deviennent de plus en plus importants quand le système se rapproche du point critique où la longueur du couplage diverge.

1.3.1 Diagrammes de phase

Diagrammes de phase sont des graphiques montrant la relation entre les paramètres des systèmes physiques tels que la température la pression à une taille fixe. Les diagrammes de phase les plus simples sont des diagrammes pression-température d'une seule substance simple, telle que l'eau. Les axes correspondent à la pression et à la température. Le diagramme de phase montre, dans l'espace pression-température, les lignes d'équilibre ou les frontières de phase entre les trois phases solide, liquide et gazeuse. Les variations des paramètres des systèmes physiques jouent un rôle important pour bien comprendre les comportements physiques des systèmes, telle que les paramètres intrinsèques (constantes de couplage d'échange et champ de cristal) et extrinsèque (champ magnétique externe) [68].

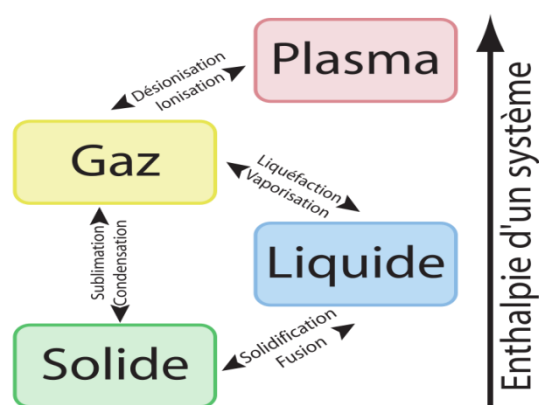


Figure 1 .5 : Ce diagramme montre la nomenclature pour les différentes transitions de phase (transition du premier ordre)

1.3.2 Paramètres d'ordre

Le paramètre d'ordre est une grandeur physique qui mesure des changements qualitatifs de transition de phase qui caractérise l'état d'un système physique [69]. Dans la phase désordonnée (symétrique à haute température) au-dessus de la température-critique le paramètre d'ordre est nul, et non-nul dans la phase ordonnée (moins symétrique à basse température). Dans le cas de brisure de symétrie nous avons besoin plusieurs Paramètres d'ordre pour décrire l'énergie libre d'un système. Le paramètre d'ordre peut être un tenseur ou nombre complexe, ou même un vecteur, dont la grandeur est nulle à la transition de phase.

Quelques exemples des paramètres d'ordre utilisés selon la nature de transition :

para-antiferromagnétique	→	aimantation
Para-ferroélectrique	→	polarisation
gaz-liquide masse	→	volumique

1.3.3 Classification des transitions de phase

On distingue deux classes de transitions de phase qui sont les transitions d'Ehrenfest et de Landau.

- **Classification d'Ehrenfest**

Selon Ehrenfest la transition du premier ordre les transitions s'accompagnant discontinuité dans la grandeur physique qui sont reliées à dérivées premières de la potentielle thermodynamique. La transition de phase est du second ordre, si la dérivée première de l'énergie libre est continue, mais la dérivée seconde est en revanche discontinue [11, 70, 71].

- **Classification de Landau**

Selon Landou la transition de phase sans chaleur latente peut s'accompagner d'un changement de la symétrie [11,72]. Soient $\mathbf{A}_a$ et $\mathbf{B}_b$ les groupes de symétries des phases **a** et **b** on peut classer les transitions de phase de la manier suivante:

Transition sans paramètre d'ordre

-Si les deux groupes $\mathbf{A}_a$ et $\mathbf{B}_b$ ne sont pas inclus l'un dans l'autre, donc on ne peut pas définir les paramètres des ordres, ce transition toujours transition du premier ordre.

Transition avec paramètre d'ordre

-Si A_a et B_b est inclus l'un dans l'autre, alors on peut définir le paramètre d'ordre, et la transition du second ordre [73].

1.4 Cycle hystérésis

L'hystérésis magnétique se produit lorsqu'un champ magnétique externe est appliqué. Lorsque le champ est retiré, une partie de l'alignement sera conservée: le matériau est devenu magnétisé. Pour démagnétiser, il faut de la chaleur ou un champ magnétique dans le sens opposé [74].

La relation entre la force de champ H et la magnétisation M n'est pas linéaire dans de tels matériaux. Si un aimant est démagnétisé ($H = 0$ et $M = 0$). Pour bien comprendre ce phénomène on trace l'aimantation du système comme montre la figure.1.6 ci-dessous. On remarque dans cette figure que la courbe augmente d'abord rapidement puis se rapproche d'une asymptote appelée saturation magnétique. Si le champ magnétique est réduit de façon monotone, M suit une courbe différente. A force de champ nulle, l'aimantation est décalée de l'origine d'une quantité appelée rémanence. Si la relation H - M est tracée pour toutes les forces du champ magnétique appliquée, le résultat est une boucle d'hystérésis appelée boucle principale. La largeur de la section centrale est le champ de coercivité du matériau (voir la figure 1.6).

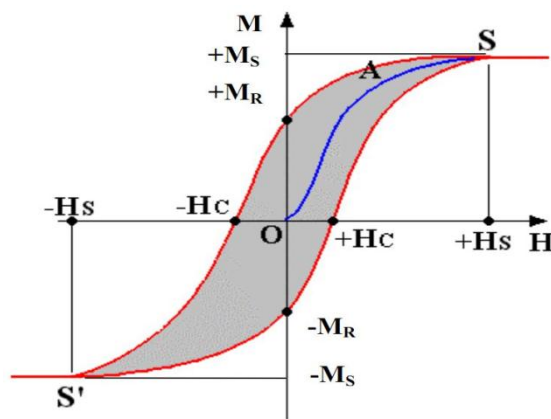


Figure 1 .6 : Champ magnétique H en fonction de l'aimantation M .

1.4.1 Paramètres caractéristiques des cycles d'hystérésis

La cycle hystérésis est caractéristique du type de matériau observé et peut varier en taille et en forme (c'est-à-dire étroite ou large). La boucle peut être générée en

utilisant pour mesurer la quantité de champ magnétique à divers points en présence d'un champ magnétique, quand il est retiré du champ magnétique, et quand une force est appliquée pour amener le champ magnétique revenir à zéro. Ces boucles sont importantes dans la capacité de mémoire des dispositifs pour l'enregistrement audio ou le stockage magnétique des données sur les disques d'ordinateurs. Les boucles d'hystérésis sont générées à partir de l'observation de matériaux désordonnés en l'absence du champ magnétique, une fois qu'un matériau désordonné est introduit dans un champ magnétique, ses moments s'alignent parallèlement et dans la même direction du champ appliquée, ce qui donne un champ magnétique plus fort. Une fois retirés du champ magnétique, il reste une certaine aimantation résiduelle. Afin de ramener le moment magnétique à zéro, une force coercitive doit être appliquée dans laquelle les moments s'annulent mutuellement. Cette boucle d'hystérésis résume donc la voie qu'un matériau prend de l'addition et du retrait d'une force de magnétisation. Dans ce qui suit, nous définissons brièvement les quatre paramètres caractéristiques des cycles d'hystérésis que nous retrouvons.

- **L'aimantation rémanente**

Lorsque l'aimantation a été augmentée à son maximum, on appelle l'aimantation rémanente, la valeur de l'aimantation obtenue lorsque le champ est ramené à zéro. Cette valeur montre que le matériau ne peut être spontanément démagnétisé.

- **Champ à saturation**

Le champ à saturation est la valeur minimale du champ magnétique appliqué pour lequel l'aimantation du matériau atteint sa valeur à saturation.

- **Aimantation de saturation**

L'aimantation à saturation M_s correspond à la valeur maximale de l'aimantation du matériau, où tous les moments magnétiques sont parallèles au champ magnétique appliqué.

- **Champ coercitif**

La coercivité est l'intensité du champ magnétique appliqué nécessaire pour réduire l'aimantation de ce matériau à zéro après que l'aimantation de l'échantillon a été conduite à saturation. En plus, la coercivité mesure la résistance d'un matériau ferromagnétique/ferrimagnétique à la diamagnétique.

1.4.2 Matériaux magnétiques durs et doux

L'observation des cycles hystérésis (comme indiqué dans la figure.1.7) permet de regrouper les matériaux ferromagnétiques en deux catégories :

- **Matériaux doux**

Les matériaux magnétiques doux sont des matériaux ferromagnétiques ou ferrimagnétiques ayant une aimantation rémanente M_r élevée facile à annuler, champ coercitif H_c faible et surface des cycles hystérésis étroite, et forte perméabilité c'est la base des machines tournantes ou des toute system magnétique voyant une indication alternative.

- **Matériaux durs**

Les matériaux ferromagnétiques ou ferrimagnétiques durs sont caractérisés par de champ coercitif H_c élevé, une aimantation rémanente M_r faible et difficile à annuler, la surface des cycles hystérésis plus large et convient pour les aimants permanents.

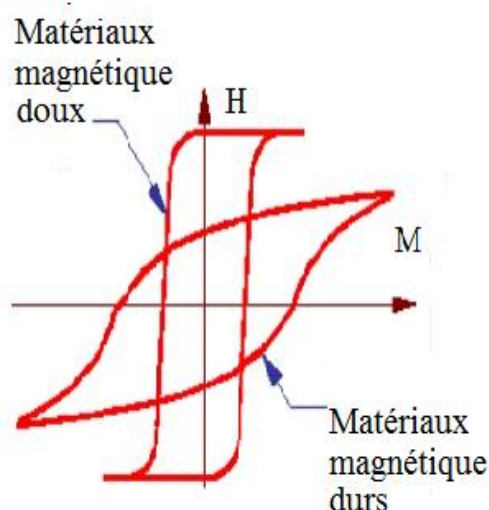


Figure 1.7 : Cycles hystérésis des matériaux durs et doux.

1.4.3 Applications de l'hystérésis

Il existe une grande variété d'applications de l'hystérésis dans les ferromagnétiques. Beaucoup d'entre eux utilisent leur capacité à conserver une mémoire, par exemple une bande magnétique, des disques durs et des cartes de crédit. Dans ces applications, des aimants durs (coercivité élevée) comme le fer sont souhaitables, de sorte que la mémoire n'est pas facilement effacée.

Le fer magnétiquement doux (coercivité faible) est utilisé pour les noyaux dans les électro-aimants. La faible coercivité réduit cette perte d'énergie associée à l'hystérésis. La faible perte d'énergie au cours d'une boucle d'hystérésis est également la raison

pour laquelle le fer doux est utilisé pour les noyaux de transformateurs et les moteurs électriques.

1.5 Températures des transitions

La température de transition est la température à laquelle un matériau passe d'un état à un autre état, ce comportement magnétique est influencé par le changement de la température et ce changement apparaît avant les températures suivantes :

1.5.1 Température de Curie

La température de Curie apparaît à des conditions des températures élevées, elle différencie entre les phases para et Ferro- magnétique [75].

1.5.2 Température de Néel

La température de Néel T_N , est la température à laquelle le matériau présente une transition de phase de l'état Antiferromagnétique à l'état paramagnétique [76].

1.5.3 Température de compensation

La température de compensation T_{comp} précède celle de Curie. Dans ce cas la résultante des composantes magnétique partielles s'annule et l'aimantation totale du système disparaît. Au point de compensation la relation deux sous-réseaux A et B suivante est vérifiée [77, 78] :

$$|M_A(T_{comp})| = |M_B(T_{comp})| \text{ et } \text{sign} |M_A(T_{comp})| = -\text{sign} |M_B(T_{comp})| \quad (1.4)$$

1.6 Théorie du Champ moyen

Théoriquement il n'y aucune solution exacte peut décrire le comportement d'un modèle de N corps et le rendre exactement soluble, pour ce raison la théorie du champ moyen a été développée. L'idée principale de cette méthode est de faire amener un problème N corps à un problème d'un seul corps, elle est également à négliger les corrélations entre les spins elle reste un moyen puissant pour l'étude des systèmes de spin complexes [81].

1.6.1 Équation du champ moyen pour le composé NdNiO_3 (spin-1/2 et 3/2)

Le ACM est une méthode théorique qui détermine le comportement du système est basé sur l'inégalité de Gibbs-Bogoliubov [82].

$$F \leq F_0 = \frac{-T}{N} \ln(Z_0) + \langle H \rangle_0 - \langle H_0 \rangle_0 = -\frac{1}{N} \ln(z_0) + \text{Tr}(\rho_0 H) - \text{Tr}(\rho_0 H_0) \quad (1.5)$$

H: Hamiltonien de la structure.

F: La véritable énergie libre du système.

H_0 : est l'Hamiltonien d'essai.

F_0 : L'énergie libre moyenne de l'Hamiltonien d'essai.

N: est le nombre total de sites dans chaque sous-réseau;

Z_0 : la fonction de partition;

$\langle \dots \rangle_0$: La moyenne thermique sur l'ensemble défini par H_0 .

Le composé NdNiO_3 contient deux éléments magnétiques $\text{Ni}^{+3}(\sigma = 1/2)$ qui occupaient le premier sous-réseau et $\text{Nd}^{3+}(S = 3/2)$, l'hamiltonien correspondant à ce système a la forme suivante:

$$\mathcal{H} = -J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j - J_2 \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i \sigma_j - J_3 \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i S_j - \Delta_1 \sum_i S_i^2 - H \sum_i S_i \quad (1.6)$$

L'hamiltonien effectif de ce système est donné par :

$$\mathcal{H}_0 = h_s \sum_{\langle i,j \rangle} S_i + h_\sigma \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i - \Delta_1 \sum_i S_i^2 - H \sum_i (S_i + \sigma_i), \quad (1.7)$$

h_s est correspondant aux interactions entre les proches voisins (Premiers proches voisins) des ions Nd, et h_σ est le champ effectif relatif aux interactions entre les proches voisins des ions Ni sont donnés par:

$$h_s = -J_3 \sum_j^{Z_1} \langle \sigma_j \rangle_0 - J_1 \sum_j^{Z_2} \langle S_j \rangle_0 = -J_3 Z_1 m_\sigma - J_1 Z_2 m_s, \quad (1.8)$$

$$h_\sigma = -J_3 \sum_j^{Z_1} \langle S_j \rangle_0 - J_2 \sum_j^{Z_2} \langle \sigma_j \rangle_0 = -J_3 Z_1 m_s - J_2 Z_2 m_\sigma, \quad (1.9)$$

Avec $m_s = \langle S_j \rangle$ et $m_\sigma = \langle \sigma_j \rangle$ sont les paramètres d'ordre du système. $Z_2 = 4$ indique le nombre des premiers proches voisins pour les ions (Nd-Nd ou Ni-Ni) et $Z_1 = 8$ est le nombre des premiers proches voisins pour les différents types d'ions (Nd-Ni).

La fonction de partition pour l' Hamiltonien effectif est donnée par:

$$Z_0 = \text{Tr}(e^{-\beta H_0}) = \text{Tr}(e^{-H_0/T}), \quad (1.10)$$

Avec $\beta = 1/(K_B T)$, K_B est la constante de Boltzmann

$$Z_0 = \left[(2 \cosh(2\beta h_s) e^{4\beta \Delta H_0} + 2 \cosh(\beta h_s e^{\beta \Delta H_0} + 1) (2 \cosh\left(\frac{3}{2} \beta h_\sigma\right) e^{\frac{9}{4}\beta \Delta_\sigma} + 2 \cosh\left(\frac{1}{2} \beta h_\sigma\right) e^{\frac{\beta \Delta_\sigma}{4}}) \right]. \quad (1.11)$$

L'énergie libre par site d'un système à N corps est décrite par:

$$F_0 = \frac{-T}{N} \ln(Z_0) + \langle H \rangle_0 - \langle H_0 \rangle_0 = -\frac{1}{N} \ln(z_0) + \text{Tr}(\rho_0 H) - \text{Tr}(\rho_0 H_0), \quad (1.12)$$

où ρ_0 est l'opérateur de densité: $\rho_0 = \frac{(\exp(-\beta H_0))}{Z_0}, \quad (1.13)$

$$F_0 = -\frac{T}{N} \ln(Z_0) - J_1 \frac{Z_2}{2} m_s^2 - J_2 \frac{Z_2}{2} m_\sigma^2 - \frac{Z_1}{2} J_3 m_s m_\sigma - h_\sigma m_\sigma - h_s m_s. \quad (1.14)$$

1.6.2 Paramètres d'ordre du système

Nous avons obtenu les paramètres d'ordre du système M_{Nd} et M_{Ni} en minimisant l'équation d'énergie libre par rapport à h (h_{Ni} et h_{Nd}), les M_{Nd} et M_{Ni} correspondent aux aimantations du sous-réseau (Nd) et (Ni).

En effet :

$$\frac{\partial F_0}{\partial h} = 0 \rightarrow \begin{cases} \frac{\partial F_0}{\partial h_s} \\ \frac{\partial F_0}{\partial h_\sigma} \end{cases} \leftrightarrow -\frac{T}{N} \frac{\partial}{\partial h_\sigma} \ln(z_0) = m_\sigma, \quad -\frac{T}{N} \frac{\partial}{\partial h_s} \ln(z_0) = m_s. \quad (1.15)$$

D'où les équations de self-consistance que doivent vérifier les champs effectifs

h_σ et h_s :

$$m_s = \frac{3 \sinh\left(\frac{3h_s}{2T}\right) \exp\left(\frac{(9\Delta)}{4}\right) + \left(\sinh\left(\frac{3h_s}{2T}\right) \exp\left(\frac{\Delta}{4T}\right) \right)}{2 \cosh\left(\frac{3h_s}{2T}\right) \exp\left(\frac{(9\Delta)}{4}\right) + 2 \cosh\left(\frac{h_s}{2T}\right) \exp\left(\frac{\Delta}{4}\right)}, \quad (1.16)$$

$$m_\sigma = \frac{1}{2} \tanh\left(1/2\left(\frac{3h_\sigma}{2T}\right)\right). \quad (1.17)$$

Nous avons résolu ces équations dites de 'self-consistance' numériquement. Elles n'admettent pas des solutions uniques. Il existe des solutions stables et instables : Les solutions stables sont celles qui minimisent l'énergie libre vibrationnelle F_0 . Ainsi, lorsque les paramètres d'ordre sont continus, les transitions sont dites du deuxième ordre et lorsqu'ils sont discontinus, les

transitions sont du premier ordre. La résolution de ces équations à l'aide d'un programme fortran, a permis de déterminer l'état qui minimise l'énergie libre F_0 ce programme permet de déterminer l'état d'aimantation qui donne l'énergie minimale et l'évolution du paramètre d'ordre du système en fonction de la température à partir de la configuration qui minimise l'énergie.

1.6.3 Exposants critiques β , α , δ

Les exposants critiques décrivent le comportement des grandeurs physiques à proximité des transitions de phase continues. Au voisinage de la température critique, le comportement de chacune des grandeurs physique est présenté par une puissance de $|T-T_c|$, par conséquent, est caractérisé par les exposants, appelés exposant critique. De cette façon, proximité du point critique, les exposant suivantes α , β , γ et δ sont associés à m , c , χ et h (les équations (1.18 et 1.19). Au-dessus de T_c , la longueur de corrélation varie en $|T - T_c|^{-\gamma}$. Il est démontrée que ces grandeur physique thermodynamique sont indispensables aussi bien pour la localisation d'une transition de phase que pour la détermination de sa nature.

Les exposants critiques sont définis comme suit [79, 80] :

$$c \sim |T - T_c|^{-\alpha}, M_0 \sim |T - T_c|^{-\beta}, T_c > T, \quad (1.18)$$

$$\chi \sim |T - T_c|^{-\gamma}, h \sim M_t^\delta (T_c = T). \quad (1.19)$$

Les valeurs prévues par l'approximation du champ moyen Pour une dimension $D \geq 4$ sont $\alpha = 0$, $\beta = 1.2$, $\gamma = 1$ et $\delta = 2$.

Chapitre 2

Modèles théoriques et méthodes numériques

Chapitre 2 : Modèles théoriques et méthodes numériques

2.1 Modèles de spin

Plusieurs modèles de spin ont été développés qui dépendent essentiellement des degrés de liberté et aussi sur d'autres termes d'interaction dans l'hamiltonien. Les modèles de spin peuvent être classiques ou la mécanique quantique dans la nature. Précisément, les modèles de spin classiques incluent des modèles discrets tels que le modèle de Potts et le modèle d'Ising, ou des spins continus comme les vecteurs unitaires bidimensionnels du modèle XY [83-86], les vecteurs unitaires tridimensionnels du modèle classique de Heisenberg etc. Ici et dans ce qui suit nous étudions des modèles qu'on utilise, telle que : Le modèle d'Ising, Le modèle Blume-Emery-Griffiths et Le modèle de Heisenberg classique.

2.1.1 Modèle d'Ising

Ce premier modèle est le plus simple modèle de spin, il a été proposé en 1920 par W. Lenz à son étudiant Ising pour expliquer qualitativement les transitions ferromagnétiques-paramagnétiques. Le physicien Ernst Ising a montré en 1924 dans sa thèse que ce modèle ne présente aucune transition de phase dans une dimension.

Le modèle contient des variables discrètes qui représentent les moments dipolaires magnétiques des spins atomiques qui peuvent être dans l'un des deux états (+up ou -down). Les spins sont disposés dans un graphique, généralement un réseau, permettant à chaque spin d'interagir avec ses voisins. Le modèle permet l'identification des transitions de phase, comme un modèle simplifié de la réalité. Ce modèle a été résolu analytiquement en 1944 par Onsager [87]. Cependant, les systèmes avec plus de deux états à spin plus élevé, avec des spins mixtes ou avec une dimension supérieure à deux n'ont pas des solutions exactes.

La modèle d'Ising est également devenue un modèle standard pour tester les hypothèses d'échelle et d'universalité [88].

Dans ce modèle, les spins interagissent selon le hamiltonien suivant:

$$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j - h \sum_{\langle i \rangle} \sigma_i \quad (2.1)$$

Avec : J_1 est une constante de couplage qui est positive pour ferromagnétique, zéro pour un paramagnétique et négative pour un état antiferromagnétique.

h : est un champ magnétique extérieur, le symbole $\langle i, j \rangle$ indique que la somme du réseau est limitée à l'exécution sur toutes les paires de plus proches voisins, avec $\sigma_i = \pm 1$.

2.1.2 Modèle de Heisenberg

Le modèle de Heisenberg est un modèle statistique utilisé dans l'étude des spins mixtes et des transitions de phase des systèmes magnétiques, qui permet de traiter directement la dépendance en spin d'un système de plusieurs électrons.

Dans le modèle d'Heisenberg les spins sont des vecteurs unitaires à trois dimensions représentés soit par des vecteurs à trois composantes ou bien par deux variables θ et Φ des coordonnées sphériques [89].

Ce modèle est défini par Le hamiltonien suivant :

$$\mathcal{H} = -J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \vec{S}_j - J_2 \sum_{\langle j,k \rangle} \vec{S}_j \vec{S}_k - \Delta \sum_i (s_i^1)^2 - h \sum_i \vec{S}_i \quad (2.2)$$

Avec ; J_i ($i=1,2$ et 3) : est la constante d'échange ; H : champ magnétique extérieure, et Δ : Champ cristallin.

2.1.3 Modèle de Blume-Emery-Griffiths

Le modèle de BEG a été étudié la première fois dans le contexte de la superfluidité et de la séparation de phase dans l'hélium mélangé $^3\text{He}-^4\text{He}$ [90], le modèle de BEG présente une riche variété des phénomènes critiques et multi critiques [91]. Par la suite, le modèle a été réinterprété pour décrire les phénomènes critiques dans les systèmes magnétiques qui contiennent plusieurs spins [92], ce modèle est l'un des rares modèles simples qui donnent à la fois la transition de phase du premier et du second ordre [93].

L'Hamiltonien du modèle BEG est défini par :

$$\mathcal{H} = -J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j - K \sum_{j,i} S_i^2 S_j^2 \quad (2.3)$$

Le premier terme décrit le couplage entre les spins dans les sites i et j , le second terme décrit le couplage biquadratique.

2.2 Théorie de la fonctionnelle de la densité

Au cours des 30 dernières années, théorie de la fonctionnelle de la densité a été la méthode dominante pour la simulation en mécanique quantique des systèmes périodiques. Ces dernières années, elle a également été adoptée par les chimistes quantiques et maintenant très largement utilisé pour la simulation des surfaces d'énergie dans les molécules. Elle est aussi l'une des méthodes les plus importantes utilisées en physique et en chimie théorique, grâce à laquelle nous pouvons définir les caractéristiques d'un système multi-particules. C'est l'un des calculs quantiques les plus utilisés car elle peut être appliquée aux divers systèmes à un coût et à une vitesse élevée. Le principe DFT est de reformuler le problème quantique et de le transformer d'un système multi-particules en un système mono particule.

Faiblesses de la DFT

La valeur prédite par le calcul de la largeur de bande interdite (gap) avec la méthode de la DFT a été toujours une des grandes faiblesses de cette méthode. Les premières simulations effectuées sur le germanium ont prédit un comportement métallique, chose qu'on peut l'expliquer par le fait que la DFT est par construction une théorie de l'état fondamental alors que la notion du gap nécessite une excitation du système.

La largeur de la bande interdite est donnée par :

$$E_{\text{gap}} = I(N) - AE(N) = E(N + 1) - E(N - 1) - 2E(N), \quad (2.4)$$

où, $I(N)$ est l'énergie d'ionisation, $AE(N)$ l'affinité électronique et $E(N)$ l'énergie du système à N électrons. On peut réécrire l'équation (2.4) En fonction des états de Kohn-Sham :

$$E_{\text{gap}} = e_{n+1}(N + 1) - e_n(N), \quad (2.5)$$

où, le gap calcule en DFT s'écrit :

$$E_{\text{gap}}^{\text{DFT}} = e_{n+1}(N) - e_n(N). \quad (2.6)$$

De ce fait, il y a une discontinuité (positive) entre le gap réel et le gap DFT même si la fonctionnelle d'échange-corrélation E_{xc} est exacte, de ce fait on déduit que la DFT sous-estime toujours la valeur du gap ce qui a donné naissance à d'autres méthodes qui prennent en compte les excitations électroniques, citant par exemple la méthode GW.

Équation de Schrödinger

L'équation d'Erwin Schrödinger (1887-1961) et s'écrit comme suit:

$$H\psi = \left[\sum_i^N \frac{-\hbar^2 \nabla_i^2}{2m} - \sum_I^A \frac{-\hbar^2 \nabla_I^2}{2M} - \sum_{i<I} \frac{Z_I e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_I|} - \sum_{I<J} \frac{e^2}{|\vec{R}_I - \vec{R}_J|} - \sum_{i<I} \frac{Z_I Z_J e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_J|} \right] \psi = E\psi, \quad (2.7)$$

$\frac{-\hbar^2 \nabla_i^2}{2m}$: L'opérateur d'énergie cinétique des électrons de masse m

$\frac{-\hbar^2 \nabla_I^2}{2M}$: L'opérateur d'énergie cinétique des noyaux de masse M

$\frac{Z_I e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_I|}$: Effets de puissance ou de tension pour diverses réactions structurales (électron -noyau)

$\frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|}$: Effets de puissance ou de tension pour diverses réactions structurales (électron - électron)

$\frac{Z_I Z_J e^2}{|\vec{R}_I - \vec{R}_J|}$: Effets de puissance ou de tension pour diverses réactions structurales (électron - électron)

ψ : La fonction d'onde

E : Energie totale de system

N : le nombre d'électrons

Z_I : les charges,

R_I et r_i les positions des noyaux et des électrons respectivement.

La solution exacte de cette équation est très complexe, mais en utilisant l'approximation de Born-Oppenheimer [94], qui a mis à la fois Max Born et Robert Oppenheimer est devenu possible dans une certaine mesure. Cette approximation prévoit la possibilité de négliger le mouvement des noyaux par rapport au mouvement des électrons. Cela est dû à la masse élevée du noyau et à sa vitesse lente par rapport à la masse et à la vitesse des électrons. Cela nous permet d'isoler le mouvement des électrons du mouvement des noyaux et le résultat sera retenu à la frontière contenant l'énergie cinétique électronique représente la situation, en plus de la situation

énergétique résultant de l'interaction de l'électron avec le noyau. Ainsi, nous nous sommes bornés à résoudre l'équation de Schrödinger pour les électrons. Nous pouvons réécrire l'équation ci-dessus comme suit (l'équation de Schrödinger à un seul électron, mono-électronique) :

$$H\psi = [H^e + E_A]\psi = E\psi, \quad (2.8)$$

$$H^e\psi = [T + V_{ex} + U]\psi = E^e\psi. \quad (2.9)$$

Plusieurs méthodes ont été développées pour résoudre cette équation, mais elles ont été basées sur des fonctions d'onde telles que la méthode Hertry Fock a proposé une méthode, dans celle-ci, la fonction d'onde $\psi(r_1, r_2, \dots, r_n)$ pour N électrons est représentée comme le produit des fonctions d'ondes à un électron (mono-électroniques) :

$$\psi(r_1, r_2, \dots, r_n) = \psi(r_1)\psi(r_2)\psi(r_3), \dots, \psi(r_n), \quad (2.10)$$

Les énergies totales sont définies comme :

$$E = \langle \psi | H | \psi \rangle, \quad (2.11)$$

$$E = \sum_i \langle \psi(r_i) | \psi | \frac{-\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 | \psi(r_i) \rangle + \sum_i \langle \psi(r_i) | V_{ex} | \psi(r_i) \rangle + \frac{kz}{2} \sum_i \langle \psi(r_i) \psi(r_i') | \frac{1}{|r_i - r_j|} | \psi(r_i) \psi(r_i') \rangle. \quad (2.12)$$

La méthode DFT fournit une façon alternative, qui est la densité d'électrons, qui est la base pour connaître les caractéristiques du groupe étudié.

La probabilité de trouver un électron centré en position ($\vec{r}$) est définie comme suit:

$$n(\vec{r}) = N \int |\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_n)|^2 ds_1, ds_2, \dots, ds_n. \quad (2.13)$$

La probabilité de densité électronique aux deux caractéristiques principales suivantes:

- $n(\vec{r} \rightarrow \infty) = 0.$ (2.14)

- $\int n(\vec{r}) d\vec{r} = N.$ (2.15)

Théorie de la fonctionnelle de la densité est issue du modèle de Thomas Fermi, développé par Llewellyn Thomas (1903-1992) et Enrico Fermi (1901-1954) en 1927 la méthode de Thomas Fermi repose sur un modèle statistique d'approximation de la

distribution électronique des atomes. Ce modèle a donné une idée de la possibilité d'utiliser la densité électronique pour calculer l'énergie cinétique [95-98].

2.2.1 Théorie de Hohenberg et Cohen

Thomas et Fermi ont proposé une méthode pour calculer l'énergie d'un système uniquement en termes de densité électronique. Les simplifications impliquées dans leur approche ont limité son utilité, de sorte qu'il n'était pas quantitativement applicable pour l'étude de la plupart des systèmes. Cependant, l'idée d'utiliser la densité électronique comme variable centrale s'est avérée être l'inspiration pour DFT. Cette dernière a été prouvée comme étant une théorie exacte des systèmes à plusieurs corps par Hohenberg et Kohn en 1964 [98]. Elle s'applique non seulement aux systèmes d'électrons à structure condensée avec des noyaux fixes, mais aussi plus généralement à tout système de particules en interaction dans un potentiel externe

$V_{\text{ex}}(\mathbf{r})$. Cette théorie est basée sur deux théorèmes :

Théorème 1 : Quand on connaît la densité $\rho(\mathbf{r})$, on connaît le potentiel extérieur $V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$.

Théorème 2 : L'énergie de l'état fondamental est obtenue à partir de la densité électronique exacte.

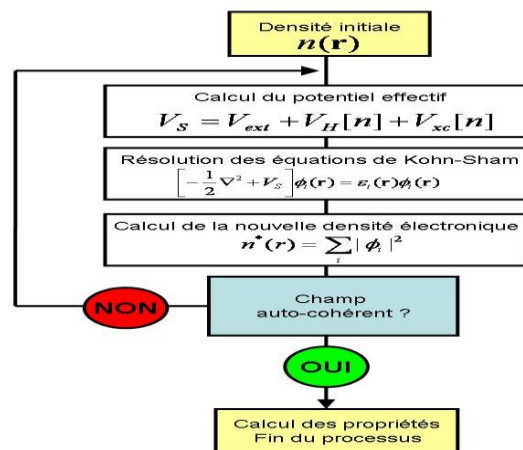


Figure 2. 1: Schéma décrivant le processus itératif pour la résolution des équations de Kohn-Sham.

2.2.2 L'approximation de la densité locale (LDA)

L'approximation LDA est la plus simple et consiste à considérer la densité comme équivalente à celle d'un gaz d'électrons homogène [99]. Il varie lentement en fonction de la coordonnée. Valeurs multiples car l'échange d'énergie peut ainsi être utilisé. Par exemple, l'énergie d'échange formulée par Dirac est de la forme:

$$E_{xc}^{LDA}[\rho(\vec{r})] = \int \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc}[\rho(\vec{r})] d\vec{r}. \quad (2.16)$$

La méthode X_α proposée par Slater est donnée par la formule suivante:

$$E_{xc}^{LDA}[\rho(\vec{r})] = \frac{3}{2} \alpha \int \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc} \left[\rho(\vec{r})^{\frac{4}{3}} \right] d\vec{r}, \quad (2.17)$$

$$\text{avec : } \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc} = -\left(\frac{3}{4} \left(\frac{3}{8\pi}\right)^{\frac{1}{3}}\right) \quad (2.18)$$

La valeur $\alpha = 3/2$ récupère l'expression de Dirac. La valeur $\alpha = 4/2$ donne de bons résultats pour les atomes et les molécules. L'énergie de corrélation E est nulle dans le X_α méthode. Un fonctionnel la corrélation $E_{\varepsilon_{xc}}(\vec{r})$ a été proposée par Vosko et Wang [99].

2.2.3 L'approximation du gradient généralisé (GGA)

Cette méthode consiste à introduire le gradient de densité dans la description des effets d'échange et de corrélation. Alors que la méthode LDA est locale en considérant une densité équivalente à celle d'un gaz homogène, elle est incorporée ici aux éléments non locaux. En effet, le gradient de densité peut prendre en compte la variation de la densité dans les voisins de chaque point.

On peut définir:

$$E_{xc}^{GGA}[\rho(\vec{r})] = \int \rho(\vec{r}) f[\rho(\vec{r}), \nabla \rho(\vec{r})] d\rho(\vec{r}) \quad (2.19)$$

$f[\rho(\vec{r}), \nabla \rho(\vec{r})]$ étant la fonction d'échange et de corrélation dépendante de la densité électronique et de son gradient [100].

2.3 Théorie du Champ effectif

La méthode Théorie du Champ effectif (TCF) avec corrélations est basée sur les identités de Callen [101]. Elle est basée sur les techniques d'opérateur différentiel de [102]. La procédure de cette méthode commence par la construction d'un amas fini

dans un système qui peut être généralisé pour le cas de l'amas fini plus grand [103]. Cette méthode donne des résultats plus exacts que ceux obtenus par la méthode ACM, car cette dernière néglige les corrélations entre moments magnétiques [103]. À côté des deux méthodes précédentes, il existe des autres puissantes méthodes pour traiter les simulations numériques du comportement complexe du système. Mais elles prennent plus de temps en raison de son processus d'échantillonnage répétitif, et il nécessite donc une grande capacité informatique.

2.3.1 Études de $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ (5/2,3/2,1/2) quadruple pérovskite par la méthode du Champ effectif

L'hamiltonien effectif du système est défini par la relation suivante:

$$H = -J_{\sigma q} \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i q_j - J_{\sigma s} \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i s_j - J_{qs} \sum_{\langle i,j \rangle} q_i s_j - J_{\sigma} \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i \sigma_j - J_q \sum_{\langle i,j \rangle} q_i q_j - J_s \sum_{\langle i,j \rangle} s_i s_j - \Delta_{\sigma} \sum_{\langle i,j \rangle} (\sigma_i)^2 - \Delta_q \sum_{\langle i,j \rangle} (q_i)^2 - \Delta_s \sum_{\langle i,j \rangle} (s_i)^2 - h(\sum_i \sigma_i - \sum_i q_i - \sum_i s_i), \quad (2.3.1)$$

où σ, q et s les spins de Cu, Fe et Os, respectivement,

" $\text{Cu}^{+2}(\sigma = \pm 1/2), \text{Fe}^{+3}(q = \pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2), \text{Os}^{+5}(s = \pm 3/2, \pm 1/2)$ ", $J_{\sigma q}$ désigne le couplage d'échange entre Cu^{+2} et Fe^{+3} , $J_{\sigma s}$ désigne le couplage d'échange entre Cu^{+2} et Os^{+5} , $J_{\text{Fe}-\text{Os}}$ indique le couplage d'échange entre Fe^{+3} et Os^{+5} , J_{σ} (ou $J_{\text{Cu}-\text{Cu}}$) désigne le couplage d'échange entre les ions Cu^{+2} , J_q (ou $J_{\text{Fe}-\text{Fe}}$) désigne le couplage d'échange entre les ions Fe^{+3} , J_s (ou $J_{\text{Os}-\text{Os}}$) indique le couplage d'échange entre les ions Os^{+5} , tandis que $\Delta_{\sigma}, \Delta_q$ et Δ_s sont, respectivement, les champs de cristal de Cu, Fe et Os et h désigne le champ magnétique extérieur. Nous avons fixé l'un des trois sous-réseaux, à savoir σ, s et q , pour chaque cas, pour obtenir les trois hamiltoniens H_1 et H_2 et H_3 associés suivant:

$$H_1 = J_{s\sigma} \sum_i^{N/2} \sigma_0 s_i - J_{q\sigma} \sum_i^{N/2} \sigma_0 q_i - J_{\sigma\sigma} \sum_j^{N/2} \sigma_0 \sigma_j - h\sigma_0, \quad (2.3.2)$$

$$H_2 = J_{s\sigma} \sum_{\langle i \rangle}^{N/2} \sigma_i s_0 - J_{ss} \sum_{\langle i \rangle}^{N/2} s_i s_0 - J_{qs} \sum_{\langle i,j \rangle}^{N/2} q_i s_0 - \Delta_{\text{Os}}(s_0)^2 - hs_0, \quad (2.3.3)$$

$$H_3 = -J_{q\sigma} \sum_{\langle i \rangle}^{N/2} \sigma_i q_0 - J_{qq} \sum_{\langle i \rangle}^{N/2} q_i q_0 - J_{qs} \sum_{\langle i,j \rangle}^{N/2} s_i q_0 - \Delta_{\text{Fe}}(q_0)^2 - hq_0. \quad (2.3.4)$$

2.3.2 Équations de l'état du système:

Nous prenons $h = 0$, pour plus de simplicité. Ensuite, nous calculons les valeurs $\langle \sigma_0 \rangle$, $\langle s_0 \rangle$, et $\langle q_0 \rangle$ des spins centraux et nous utilisons la technique de l'opérateur différentiel [104], pour étudier les identités de Callen [105]. Puis, en utilisant à la fois la technique de l'opérateur différentiel et l'approximation de découplage [107,106], on obtient les équations d'aimantation du système, pour les variables de spin suivantes $\sigma_0 = 1/2$, $s_0 = 3/2$ et $q_0 = 5/2$, suivantes:

$$\langle \sigma_0 \rangle = \frac{1}{2} \tanh(\beta L_1), \quad (2.3.5)$$

$$\langle S_0 \rangle = \frac{3 \operatorname{sh}(3\beta L_2) \exp(2\beta \Delta_{Os}) + \operatorname{sh}(\beta L_2)}{2 \operatorname{ch}(3\beta L_2) \exp(2\beta \Delta_{Os}) + 2 \operatorname{ch}(\beta L_2)}, \quad (2.3.6)$$

$$\langle q_0 \rangle = \frac{5 \operatorname{sh}(5\beta L_3) + 3 \exp(-4\beta \Delta_{Fe}) \operatorname{sh}(3\beta L_3) + \exp(-6\beta \Delta_{Fe}) \operatorname{sh}(\beta L_3)}{2 \operatorname{ch}(5\beta L_3) + 2 \operatorname{ch}(3\beta L_3) \exp(-4\beta \Delta_{Fe}) + 2 \operatorname{ch}(\beta L_3) \exp(-6\beta \Delta_{Fe})}, \quad (2.3.7)$$

$$L_1 = -\frac{1}{2} J_{s\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} S_i - J_{\sigma\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} \sigma_i - \frac{1}{2} J_{q\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} S_i = a + b + c, \quad (2.3.8)$$

$$L_2 = -\frac{1}{2} J_{s\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} \sigma_i - J_{ss} \sum_{i=1}^{N/2} S_i - \frac{1}{2} J_{qs} \sum_{i=1}^{N/2} q_i = d + e + f, \quad (2.3.9)$$

$$L_3 = \frac{1}{2} J_{q\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} q_i - J_{qs} \sum_{i=1}^{N/2} S_i - \frac{1}{2} J_{q\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} \sigma_i = j + k + l, \quad (2.3.10)$$

$$a = -\frac{1}{2} J_{s\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} S_i, b = -\frac{1}{2} J_{\sigma\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} \sigma_i, c = -\frac{1}{2} J_{q\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} q_i, \quad (2.3.11)$$

$$d = -\frac{1}{2} J_{qs} \sum_{i=1}^{N/2} q_i, e = -\frac{1}{2} J_{ss} \sum_{i=1}^{N/2} S_i, f = -J_{s\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} \sigma_i, \quad (2.3.12)$$

$$j = -\frac{1}{2} J_{qs} \sum_{i=1}^{N/2} S_i, k = -\frac{1}{2} J_{q\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} q_i, l = -\frac{1}{2} J_{q\sigma} \sum_{i=1}^{N/2} \sigma_i. \quad (2.3.13)$$

L'action des opérateurs différentiels sur des fonctions arbitraires $f_i(x, y, z)$ (avec $i = 1, 2$ et 3) est défini par les équations suivantes [108]:

$$\langle \langle \sigma_0 \rangle \rangle = \langle \exp(a \nabla_x + b \nabla_y + c \nabla_z) * f_1(x, y, z) \rangle_{|x=y=z=0}, \quad (2.3.14)$$

$$\langle \langle s \rangle \rangle = \langle \exp(d \nabla_x + e \nabla_y + f \nabla_z) * f_2(x, y, z) \rangle_{|x=y=z=0}, \quad (2.3.15)$$

$$\langle \langle q \rangle \rangle = \langle \exp(j \nabla_x + k \nabla_y + l \nabla_z) * f_3(x, y, z) \rangle_{|x=y=z=0}, \quad (2.3.16)$$

avec :

$$f_1(x, y, z) = \frac{1}{2} \tanh \beta (x + y + z), \quad (2.3.17)$$

$$f_2(x, y, z) = \frac{3\text{sh}3\beta(x+y+z) \exp(2\beta\Delta) + \text{sh}(\beta(x+y+z))}{2\text{ch}(3\beta(x+y+z)) \exp(2\beta\Delta) + 2\text{ch}(\beta(x+y+z))}, \quad (2.3.18)$$

$$f_3(x, y, z) = \frac{5\text{sh}5\beta(x+y+z) + 3\text{sh}(3\beta(x+y+z)) \exp(-4\beta(x+y+z)) + \text{sh}(\beta(x+y+z))}{2\text{ch}(5\beta(x+y+z)) + 3\text{ch}(3\beta(x+y+z)) \exp(-4\beta\Delta) + \text{ch}(\beta(x+y+z)) \exp(-6\beta\Delta)}. \quad (2.3.19)$$

A partir des équations (2.3.20), pour le spin $\sigma = \pm 1/2$, et l'identité de Van Der Waerden donné dans l'équation 2.3.21 [108], pour le spin $S = \pm 1/2, \pm 3/2$ et l'équation 2.3.22, pour le spin $q = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}$ et $\pm \frac{5}{2}$, nous pouvons exprimer les identités de Callen, données dans les équations (2.3.14), (2.3.15) et (2.3.16) comme suit:

$$\exp(\theta\sigma_i) = \text{ch}(\theta) + 2\sigma_i \text{sh}(\theta), \quad (2.3.20)$$

$$\exp(\theta s_i) = \text{ch}\left(\frac{\delta}{\mu}\theta\right) + \frac{\mu}{\delta} s_i \text{sh}\left(\frac{\delta}{\mu}\theta\right), \delta = 2, \mu = 1, 2 \text{ et } 3, \quad (2.3.21)$$

$$\exp(\theta q_i) = \text{ch}\left(\frac{\delta}{\epsilon}\theta\right) + \frac{\epsilon}{\delta} q_i \text{sh}\left(\frac{\delta}{\epsilon}\theta\right), \delta = 2, \epsilon = 1, \dots, 5. \quad (2.3.22)$$

Le terme quadratique relatif au spin est défini par les relations suivantes:

$$Q_1 = \langle (s)^2 \rangle, \quad (2.3.23)$$

$$Q_2 = \langle (q)^2 \rangle. \quad (2.3.24)$$

L'identité de Callen des termes quadratiques est comme suit:

$$\langle Q_1 \rangle = \langle e^{(d\nabla_x + e\nabla_y + f\nabla_z)} \rangle_* g_1(x, y, z) |_{x=y=z=0}, \quad (2.3.25)$$

$$\langle Q_2 \rangle = \langle e^{(j\nabla_x + k\nabla_y + l\nabla_z)} \rangle_* g_2(x, y, z) |_{x=y=z=0}, \quad (2.3.26)$$

avec :

$$g_1(x, y, z) = \frac{3\text{ch}3\beta(x+y+z) \exp(2\beta\Delta) + \text{ch}(\beta(x+y+z))}{2\text{ch}(3\beta(x+y+z)) \exp(2\beta\Delta) + 2\text{ch}(\beta(x+y+z))}, \quad (2.3.27)$$

$$g_2(x, y, z) = \frac{5\text{ch}5\beta(x+y+z)+3\text{ch}(3\beta(x+y+z))\exp(-4\beta(x+y+z))+\text{ch}(\beta(x+y+z))}{2\text{ch}(5\beta(x+y+z))+3\text{ch}(3\beta(x+y+z))\exp(-4\beta\Delta)+\text{ch}(\beta(x+y+z))\exp(-6\beta\Delta)} \quad (2.3.28)$$

Ainsi, les identités de Callen, dans les équations (2.3.14), (2.3.15), (2.3.16), (2.3.25) et (2.3.26), ont les expressions suivantes:

$$\langle \sigma_0 \rangle = \langle \exp(\frac{1}{2} J_{\sigma\sigma} \sum_{i=1}^{12} \sigma_i \nabla_x + \frac{1}{2} J_{ss} \sum_{i=1}^{12} \sigma_i \nabla_y + \frac{1}{2} J_{q\sigma} \sum_{i=1}^{12} \sigma_i \nabla_y q_i) \rangle^* f(x, y, z) | x = y = z = 0 \quad (2.3.29)$$

$$\begin{aligned} & \langle \prod_{i=1}^{12} (\text{ch}(\sqrt{Q_1} \frac{1}{2} J_{\sigma\sigma} \nabla_x + \frac{1}{\sqrt{Q_1}} s - \text{Sh}(\sqrt{Q_1} \frac{1}{2} J_{ss} \nabla_x)) \prod_{i=1}^{12} (\text{ch}(1/2 J_{\sigma\sigma} \nabla_y) \\ & + 2\sigma_i \text{sh}(\frac{1}{2} J_{\sigma\sigma} \nabla_y) \prod_{i=1}^3 \text{ch}(\frac{1}{2} \frac{1}{\sqrt{Q_2}} J_{q\sigma} \nabla_z) + \frac{1}{Q_2} q * \text{sh}(\frac{1}{2} \sqrt{Q_2} J_{q\sigma} \nabla_z) \rangle^* f_1(x, y, z) | x = y = z = 0 \end{aligned} \quad (2.3.30)$$

$$\langle s_0 \rangle = \langle \exp(\frac{1}{2} J_{\sigma s} \sum_{i=1}^3 \sigma_i \nabla_x + \frac{1}{2} J_{ss} \sum_{i=1}^3 s_{0i}^1 \nabla_y + \frac{1}{2} J_{sq} \sum_{i=1}^{12} s_0^2 \nabla_z) \rangle^* f_2(x, y, z) | x = y = z = 0 \quad (2.3.31)$$

$$\begin{aligned} & = \langle \prod_{i=1}^{12} (\text{ch}(\frac{1}{2} J_{\sigma s} \nabla_x) + 2\sigma_i \text{sh}(J_{\sigma s} \nabla_x)) \prod_{j=1}^{12} S_{0j}^1 \text{ch}(\sqrt{Q_1} \frac{1}{2} J_{ss} \nabla_y) \prod_{k=1}^3 (\text{ch}(\sqrt{Q_2} \frac{1}{2} J_{sq} \nabla_z) + \frac{1}{\sqrt{Q_2}} q_k \text{sh}(\sqrt{Q_2} \frac{1}{2} J_{sq} \nabla_z) \rangle^* f_2(x, y, z) | x = y = z = 0 \end{aligned} \quad (2.3.32)$$

$$\langle q \rangle = \langle \exp(\frac{1}{2} J_{qq} \sum_{i=1}^3 q_i \nabla_x + \frac{1}{2} J_{\sigma s} \sum_{i=1}^3 \sigma_i \nabla_y + \frac{1}{2} J_{sq} \sum_{i=1}^3 s \nabla_z) \rangle^* f_3(x, y, z) | x = y = z = 0 \quad (2.3.33)$$

$$\begin{aligned} & = \prod_i^3 (\text{ch}(\frac{1}{2} J_{\sigma q} \nabla_y + 2\sigma_i \text{sh}(\frac{1}{2} J_{\sigma q} \nabla_y) \prod_j^{12} \text{ch}(\sqrt{Q_1} \frac{1}{2} J_{qq} \nabla_z) + \frac{1}{\sqrt{Q_1}} s_j * \text{sh}(\sqrt{Q_1} \frac{1}{2} J_{sq} \nabla_z) \\ & \prod_{k=1}^{12} (\text{ch}(\sqrt{Q_2} \frac{1}{2} J_{qs} \nabla_x) + \frac{1}{\sqrt{Q_2}} q_k * \text{sh}(\frac{1}{2} J_{sq} \nabla_x \sqrt{Q_2})) \rangle^* f(x, y, z) | x = y = z = 0 \end{aligned} \quad (2.3.34)$$

Ceci donne les équations suivantes:

$$\langle Q_2 \rangle = \frac{1}{4} \frac{\text{ch}(\frac{1}{2}\beta J_2 \sum_i s_i) + 9\text{ch}(\frac{3}{2}J_2\beta \sum_i s_i) \exp(2\beta\Delta)}{\text{ch}(1/2(\beta J_2 \sum_i s_i) + \text{ch}(\frac{3}{2}J_2\beta S_j) \exp(2\beta\Delta))} \quad (2.3.35)$$

$$\langle Q_3 \rangle = \frac{1}{4} \frac{\text{ch}(\frac{1}{2}\beta J_3 \sum_i q_i) + 9\text{ch}(\frac{3}{2}J_3\beta \sum_i q_i) \exp(2\beta\Delta) + 25\text{ch}(\frac{5}{2}J_3\beta \sum_i q_i) \exp(6\beta\Delta)}{\text{ch}(\frac{1}{2}(\beta J_3 \sum_i q_i) + \text{ch}(\frac{3}{2}J_3\beta q_j) \exp(2\beta\Delta) + 25\text{ch}(\frac{5}{2}J_3\beta \sum_i q_i) \exp(6\beta\Delta))} \quad (2.3.36)$$

En appliquant l'approximation de découplage sur les équations d'état (2.3.29) - (2.3.34) on obtient les équations suivantes:

$$m_1 = \left[\text{ch}(X_1 \nabla x) + \frac{m_2}{\sqrt{Q_2}} \text{sh}(X_1 \nabla x) \right]^4 * \left[\text{ch}(Y_1 \nabla z) + \frac{m_3}{\sqrt{Q_3}} \text{sh}(Y_1 \nabla z) \right]^6 * f_1(x, y, z) |_{x=y=z=0} \quad (2.3.37)$$

$$X_1 = \frac{1}{2} \beta J_{s\sigma} \sqrt{Q_2}, \quad Y_1 = \frac{1}{2} \beta J_{qs} \sqrt{Q_3}, \quad (2.3.38)$$

$$f_1(x, y, z) = 1/2 \tanh(\beta(x + y + z)), \quad (2.3.39)$$

$$m_2 = [\text{ch}(X_2 \nabla x) + \frac{m_3}{\sqrt{Q_3}} * \text{sh}(X_2 \nabla x)]^6 * [\text{ch}(Y_2 \nabla y) + 2m_1 \text{sh}(Y_2 \nabla y)]^{12} *$$

$$f_2(x, y, z) |_{x=y=z=0}, \quad (2.3.40)$$

avec :

$$X_2 = \frac{1}{2} \beta J_{qs} \sqrt{Q_3} \text{ et } Y_2 = \frac{1}{4} \beta J_{s\sigma}, \quad (2.3.41)$$

$$f_2(x, y, z) = \frac{3 \text{sh}(3\beta(x+y+z)) + \text{sh}(\beta(x+y+z)) * \exp(-2\beta\Delta)}{2 \text{ch}(3\beta(x+y+z)) + 2 \text{ch}(\beta(x+y+z)) * \exp(-2\beta\Delta)} \quad (2.3.42)$$

$$m_3 = [\text{ch}(X_3 \nabla x) + \frac{m_3}{\sqrt{Q_2}} \text{sh}(X_3 \nabla x)]^6 * [\text{ch}(Y_3 \nabla y) + 2m_1 \text{sh}(Y_3 \nabla y)]^{12} * f_3(x, y, z) |_{x=y=z=0}, \quad (2.3.43)$$

avec:

$$X_3 = \frac{1}{2} \beta J_{qs} \sqrt{Q_2}, \quad Y_3 = \frac{1}{4} \beta J_{q\sigma}, \quad (2.3.44)$$

$$f_3(x, y, z) = \frac{5 \text{sh}(5\beta(x+y+z)) + 3 \text{sh}(3\beta(x+y+z)) * \exp(-2\beta\Delta) + 3 \text{sh}(\beta(x+y+z)) * \exp(-4\beta\Delta)}{2 \text{ch}(5\beta(x+y+z)) + 3 \text{ch}(3\beta(x+y+z)) * \exp(-4\beta\Delta) + \text{ch}(\beta(x+y+z))}, \quad (2.3.45)$$

$$Q_1 = \frac{1}{4} \frac{\text{ch}(\frac{1}{2}\beta J_{ss} \sum_i s_i) + 9\text{ch}(\frac{3}{2}\beta J_{ss} \sum_j s_j) \exp(2\beta\Delta)}{\text{ch}(1/2(\beta J_{ss} \sum_i s_i) + \text{ch}(\frac{3}{2}\beta J_{ss} \sum_j s_j) \exp(2\beta\Delta))}, \quad (2.3.46)$$

$$Q_2 = \frac{1}{4} \frac{\text{ch}(\frac{1}{2}\beta J_{qq} \sum_i q_i) + 9\text{ch}(\frac{3}{2}\beta J_{qq} \sum_j q_j) \exp(2\beta\Delta) + 25\text{ch}(\frac{5}{2}\beta J_{qq} \sum_i q_i) \exp(6\beta\Delta)}{\text{ch}(\frac{1}{2}(\beta J_{qq} \sum_i q_i) + \text{ch}(\frac{3}{2}\beta J_{qq} \sum_j q_j) \exp(2\beta\Delta) + 25\text{ch}(\frac{5}{2}\beta J_{qq} \sum_i q_i) \exp(6\beta\Delta))}. \quad (2.3.47)$$

2.3.3 Température de transition:

Nous examinons la température de transition en l'absence du champ magnétique extérieur. Le développement des équations (2.3.37), (2.3.40) et (2.3.43) mentionnées ci-dessus donne respectivement des expressions de puissances croissantes de m_1 , m_2 et m_3 , avec les coefficients Q_1 et Q_2 . En linéarisant ces équations d'état élargies, on obtient des équations couplées de la forme suivantes:

$$M = \begin{pmatrix} C_1 & C_2 & C_3 \\ C_4 & C_5 & C_6 \\ C_7 & C_8 & C_9 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m_1 \\ m_2 \\ m_3 \end{pmatrix}. \quad (2.3.48)$$

Les entités de la matrice précédente peuvent être déterminées à l'aide de la technique de l'opérateur différentiel. Les températures de transition de phase du second ordre sont obtenues en résolvant numériquement l'équation:

$$\det(M)=0. \quad (2.3.49)$$

2.4 Méthode de Monte Carlo

La méthode de Monte Carlo sert à résoudre des problèmes qui admettent une interprétation probabiliste. Ces méthodes font partie d'un ensemble d'algorithmes de calcul qui sont basés sur l'échantillonnage aléatoire répété à obtenir des résultats numériques à l'équilibre, cette méthode a été développée en 1947 et publiée pour la première fois en 1949 dans un article par J. Von Neumann, S. Ulma et N. Métropolis vers la fin de la seconde guerre mondiale pour étudier la diffusion des neutrons, dans matériaux fissile. Le nom de cette méthode, "Monte Carlo", est en référence aux jeux de hasard pratiqués dans un célèbre casino de Monaco.

En 1956 Albert et Wainwright réaliseront, à leur tour, la simulation des sphères dures

en s'intéressant à la transition de phase solide-liquide et constatèrent la convergence des propriétés vers liquide. Il est intéressant de noter que les méthodes de Monte Carlo sont couramment utilisées dans d'autres domaines que la physique. Ainsi, en affaires, les techniques SMC sont utiles dans la modélisation phénomènes avec un degré élevé d'incertitude des données initiales telles que le calcul du risque; en application aux problèmes d'exploration spatiale et pétrolière en mathématique. La méthode SMC est effectuée pour évaluer les intégrales définies multidimensionnelles dans le cas de conditions aux limites compliquées; Les prédictions fournies par les méthodes SMC durée de l'échec, dépassements de coûts (coûts imprévus qui apparaissent dans le budget résultant d'une sous-estimation du coût réel pendant la budgétisation) et les dépassements d'horaire sont généralement plus précis que les intuitions humaines ou autres méthodes alternatives [109, 110].

La méthode de Monte Carlo a deux types différents:

- ✓ Monte Carlo statistique qui servira de cadre théorique général pour cette thèse
- ✓ Monte Carlo cinétique.

Equation Maîtresse

Une quantité observable est généralement définie comme une fonction Q de spins.

L'espérance de toute quantité observable, telle que la magnétisation ou l'énergie interne, est idéalement calculée en faisant la moyenne de la quantité dans l'espace de phases sur tous les états de spin du système, donné par :

$$\langle Q \rangle = \sum_{\text{states}} Q e^{-\beta H/Z}. \quad (2.4.50)$$

La somme s'exécute sur tous les états possibles du système (l'espace d'état peut être continu ou discret). Z Signifie la fonction de partition tandis que $\beta = 1/k_B T$, avec T : la température du système, k_B : la constante de Boltzmann, et H : l'hamiltonien du système.

Les principes de la simulation Monte Carlo

Les éléments de base de la simulation par Monte Carlo, à travers les trois idées maîtresses sont:

- ✓ L'échantillon important.
- ✓ la balance détaillée.
- ✓ le taux d'acceptation.

2.4.1 Echantillon important

Le problème, ici, est que la région importante dans l'espace de phase de haute dimension est relativement étroite et alors trop rarement balayée par l'échantillonnage aléatoire. En fait, seules les configurations de spin dans cette région pertinente sont importantes pour déterminer les moyennes. Par conséquent, il serait utile de restreindre l'échantillonnage, seulement, à ces configurations importantes. Cette solution au problème d'échantillonnage est connue depuis longtemps ce que l'on appelle l'échantillonnage d'importance [111-115]. L'avantage de cette technique est qu'on peut avoir une bonne estimation des grandeurs physiques à partir de petits échantillons mais cette technique donne des erreurs statistiques c. à d. un bruit dans Z .

L'idée derrière l'échantillonnage d'importance est de construire une chaîne de Markov appropriée qui attire les configurations selon la loi de Boltzmann qui se base sur la fonction de la probabilité de distribution d'un système de particules suivante:

$$P_1(\{\sigma_i\}) = \frac{e^{-\beta H(\{\sigma_i\})}}{Z}, \quad \text{avec} \quad Z = \text{Tr}_{\{\sigma_i\}} e^{-\beta H(\{\sigma_i\})}. \quad (2.4.51)$$

Dans une chaîne de Markov, les règles stochastiques sont définies pour les transitions d'un état à l'autre à condition que la probabilité de la nouvelle configuration dépende uniquement de l'état précédent mais pas de l'historique complet de la trajectoire dans l'espace d'état. Symboliquement, cela peut être donné par :

$$\begin{array}{c} P \quad P \quad P \\ \dots \{\sigma_i\}' \rightarrow \{\sigma_i\}'' \rightarrow \{\sigma_i\}''' \dots \end{array} \quad (2.4.52)$$

La probabilité P de transition doit satisfaire aux conditions suivantes :

- $P(\{\sigma_i\}' \rightarrow \{\sigma_i\}'') \geq 0$ pour tous $\{\sigma_i\}'$ et $\{\sigma_i\}''$.
- $\sum_{\{\sigma_i\}''} P(\{\sigma_i\}' \rightarrow \{\sigma_i\}'') = 1$ pour tous $\{\sigma_i\}'$.
- $\sum_{\{\sigma_i\}''} P(\{\sigma_i\}' \rightarrow \{\sigma_i\}'') P_1(\{\sigma_i\}) = P_1(\{\sigma_i\}')$ pour tous $\{\sigma_i\}'$.

A partir de ces conditions on peut voir que la distribution de Boltzmann désirée est un point fixe de P .

- ✓ La valeur moyenne d'une quantité Q est donnée par:

$$\langle Q \rangle = \frac{\sum_{\alpha} Q_{\alpha} e^{-\beta E_{\alpha}}}{\sum_{\alpha} e^{-\beta E_{\alpha}}}. \quad (2.4.53)$$

- ✓ Supposons que le choix porte sur le sous ensemble $M = \{\alpha_1, \dots, \alpha_M\}$.

- ✓ On ne peut calculer cette moyenne que pour les très petits systèmes.
- ✓ Pour les grands systèmes on somme sur un sous ensemble d'états.

Les techniques Monte Carlo consistent à choisir, au hasard, un sous ensemble d'états à partir d'une distribution P_a à spécifier :

- ✓ L'estimation de la quantité Q est donnée par:

$$\langle Q_M \rangle = \frac{\sum_{i=1}^M Q_{\alpha i} P_{\alpha i}^{-1} e^{-\beta E_{\alpha i}}}{\sum_{j=1}^M P_{\alpha j}^{-1} e^{-\beta E_{\alpha j}}} . \quad (2.4.54)$$

- ✓ Le meilleur choix est d'attribuer à chaque état son poids dans la distribution de Boltzmann l'équation (2.4.51).
- ✓ L'estimation devient:

$$Q_M = \frac{\sum_{i=1}^M Q_{\alpha i} P_{\alpha i}^{-1} e^{-\beta E_{\alpha i}}}{\sum_{j=1}^M P_{\alpha j}^{-1} e^{-\beta E_{\alpha j}}} = \frac{\sum_{i=1}^M Z e^{\beta E_{\alpha i}} Q_{\alpha i} e^{-\beta E_{\alpha i}}}{\sum_{j=1}^M Z e^{-\beta E_{\alpha j}} e^{-\beta E_{\alpha j}}} , \quad (2.4.55)$$

$$Q_M = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M Q_{\alpha i} . \quad (2.4.56)$$

L'un des points importants de la simulation Monte Carlo est de générer, de façon aléatoire, les états selon la distribution de probabilité de Boltzmann. En général, les simulations Monte Carlo utilisent le processus de Markov pour générer les états.

2.4.2 La balance détaillée

La condition de l'équilibre des détails garantit que «l'équilibre à venir» est seulement une distribution de Boltzmann et pas une autre distribution. Si le système est en équilibre, les probabilités de transition d'un état au même état sont égales [115, 116]:

$$\sum_{\beta} P_{\alpha} W(\alpha \rightarrow \beta) = \sum_{\beta} P_{\beta} W(\beta \rightarrow \alpha) . \quad (2.4.57)$$

A partir de l'équation suivante:

$$\sum_{\beta} W_{\alpha \rightarrow \beta} = 1$$

On a la relation suivante:

$$p_{\alpha} = \sum_{\beta} P_{\beta} W_{\alpha \rightarrow \beta} . \quad (2.4.58)$$

Supposons que les probabilités de transitions $W_{\alpha \rightarrow \beta}$ peuvent être déterminées comme les éléments de la matrice de Markov W . On note par $q_{\alpha}(t)$ la probabilité en instant t

à l'état α , si nous mesurons le temps mis dans chaque état durant la chaîne de Markov, la probabilité à un instant suivant $t+1$ (où sera le système à l'état β) sera :

$$q_{\beta}(t+1) = \sum_{\alpha} W_{\alpha \rightarrow \beta} q_{\alpha}(t). \quad (2.4.59)$$

Sous forme matricielle, on écrit :

$$Q_{\beta}(t+1) = W \cdot Q_{\alpha}(t), \quad (2.4.60)$$

où $Q(t)$ est le vecteur dont les coordonnées sont les différents poids statistiques $q_{\alpha}(t)$. A l'équilibre, le processus de Markov satisfera :

$$Q(\infty) = W^n Q(\infty). \quad (2.4.61)$$

Toutefois, il est possible au processus d'atteindre l'équilibre dynamique par une rotation de Q sur toute la chaîne. En notant n la taille limite du cycle parcouru, on aura :

$$Q(\infty) = W^n Q(\infty) \quad (2.4.62).$$

- ✓ Donc l'équation (2.4.57) ne garantit pas l'équilibre.
- ✓ L'équation (2.4.57) pour éliminer le cycle limite on impose la condition de la balance détaillée.

Un choix simple de la probabilité de transition est comme suit :

$$\frac{w(\alpha \rightarrow \beta)}{w(\beta \rightarrow \alpha)} = \frac{P_{\beta}}{P_{\alpha}} = e^{-\beta(E_{\beta} - E_{\alpha})}, \quad (2.4.63)$$

$$w(\alpha \rightarrow \beta) \propto e^{-\frac{1}{2}\beta(E_{\alpha} - E_{\beta})}. \quad (2.4.64)$$

Mais ce n'est pas un très bon choix. Il y a d'autres choix comme par exemple l'algorithme de Métropolis.

2.4.3 Le taux d'acceptation :

On a deux choses :

- Le choix de la cible (est-ce que le système va aller à un état cible).
- Accepter le changement (c.à.d. allé vers β ou bien rester en α).

A partir d'une configuration α , on tire au hasard une configuration β , avec une probabilité $a(\alpha \rightarrow \beta)$. Cette nouvelle configuration est acceptée avec une probabilité $\rho(\alpha \rightarrow \beta)$. Ainsi, on a :

$$W(\alpha \rightarrow \beta) = a(\alpha \rightarrow \beta) \rho(\alpha \rightarrow \beta) \quad (2.4.65).$$

Dans l'algorithme de Métropolis on choisit :

$$a(\alpha \rightarrow \beta) = a(\beta \rightarrow \alpha). \quad (2.4.66)$$

La matrice a est choisie symétrique afin de ne pas favoriser un sens de déplacement,

donc $P_{\alpha} W_{\alpha \rightarrow \beta} = P_{\beta} W_{\beta \rightarrow \alpha} = P_{\alpha} W_{\alpha \rightarrow \beta} \rightarrow P_{\beta} \rho_{\beta \rightarrow \alpha} \cdot \quad (2.4.67).$

Algorithme de Métropolis

L'algorithme de Métropolis est très général ; il peut s'appliquer à tout modèle pour lequel il est possible de générer des nombres aléatoires et d'y associer des variations d'énergie. L'implémentation de l'algorithme de Métropolis suit les étapes suivantes :

1- à partir d'une configuration initiale à d'énergies E_a , une nouvelle configuration est créée de façon aléatoire.

- chaque nouvelle configuration est testée pour savoir si elle doit être rejetée ou acceptée, afin d'obtenir la nouvelle configuration b d'énergie E_b (à retenir).
- Une fois les déplacements aléatoires effectués, on calcule la variation d'énergie $\Delta E = E_a - E_b$.

Si $\Delta E < 0$ on accepte le choix sinon on génère un nombre aléatoire r compris entre 0 et 1, si $r < \exp(-\beta \Delta E)$ on accepte le choix sinon l'on reprend le processus jusqu'à l'obtention de b.

Contributions à l'étude Monte Carlo et Ab initio des propriétés magnétiques de la famille des structures pérovskites : YCrO_3 , $\text{Lu}_2\text{CoMnO}_6$ et $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$.

3.1 Études des transitions de phase, des propriétés magnétiques et électronique de la pérovskite YCrO_3 par Ab-initio et simulation Monte Carlo : modèle de Heisenberg

Au cours de la dernière décennie, de nombreuses études sur les comportements magnétiques des matériaux font l'objet d'un grand nombre de sujets de recherche. Parmi eux, les structures de Perovskite sont très attrayantes en raison de leurs multiples propriétés physiques intéressantes et peuvent être utilisées pour une grande variété de dispositifs Nano technologique [117-123], d'enregistreurs magnétiques de haute densité [124], des capteurs [125], et d'aimants permanents etc. En effet, la classe des structures pérovskites a la formule générale ABO_3 , où A correspond à un grand cation électropositif, B représente un métal de transition et O est l'oxygène [126]. Ce type d'oxyde peut être obtenu par une variété de méthodes expérimentales telles que la procédure en céramique [127], ou la méthode de co-précipitation des nitrates ou de l'hydroxyde pertinents, offrant des poudres cristallines fines [128]. La variation de ces procédures et les conditions de température et de pression peuvent être une conséquence directe de l'ambiguïté structurale. Le composé YCrO_3 est un matériau complexe qui appartient à la famille de ces oxydes.

La structure cristalline du YCrO_3 a été indexée comme un réseau orthorhombique avec un groupe d'espace Pbnm dans un grand nombre de travaux [128-133]. De plus, la substitution de métaux de transition sur le site de Chrome est l'une des méthodes efficaces. Dans des travaux antérieurs (Lei Yang et al.) [134], ils ont trouvés du ferrimagnétisme dans $\text{YMn}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{O}_3$ à moitié dopé, ce qui suggère fortement l'apparition de l'ordre du cation du site B dans le composé, alors que le modèle ordonné n'a pas encore été identifié. Araujo *et al* ont montrés que le composant YCrO_3 est un isolant antiferromagnétique avec une transition ferroélectrique à 473 K accompagné du comportement d'hystérésis [135]. Les mêmes auteurs ont trouvé un ferromagnétisme robuste au-dessus de la température ambiante dans des couches de YCrO_3 amorphismes obtenus par un laser pulsé.

Dans cette étude nous utilisons des calculs Ab initio et des simulations de Monte Carlo ainsi que des méthodes théoriques pour donner plus de détails sur le

comportement magnétique de ce système dans une structure cubique. Nous utilisons le modèle classique de Heisenberg et calculons les couplages d'échange, l'anisotropie magnétique et nous terminons par des calculs liés au calcul des exposants critiques de la perovskite YCrO_3 , afin d'étudier son comportement critique.

Ce travail est organisé comme suit: Dans la section 2, nous présentons les calculs *Ab initio* et les résultats correspondants. Nous consacrons la section 3 pour le développement d'analyse des simulations de Monte Carlo, et aussi pour l'étude du modèle de Heisenberg relatifs, et nous clôturons cette section par des discussions et d'interprétation des résultats obtenus. La section 4 est réservée à la conclusion.

3.1.1 Étude par méthode de l'Ab initio

Tous les calculs ont été effectués en utilisant la méthode FP-LAPW implémentée dans le code WIEN2K [136], qui se base sur la théorie de la fonctionnelle de la densité [137], avec la fonction de corrélation d'échange traitée dans les Approximations de Gradient Généralisées [138]. Pour étudier les propriétés magnétiques, nous considérons une maille de $12 \times 12 \times 12$ dans l'espace réel [139]. L'énergie totale est convergée vers une valeur moins de 10^{-6} Ryd et l'énergie de coupure est fixée à -6,0 Ryd. Pour calculer l'anisotropie magnétique, nous avons utilisé le programme DIPAN qui calcule l'anisotropie dipolaire magnéto-cristalline et le champ magnétique dipolaire hyperfine par une sommation de réseau direct sur le moment magnétique de tous les sites [136].

Optimisation du volume

La perovskite YCrO_3 a une structure cubique avec le groupe d'espace P_{m3m} et un paramètre de maille $a=3.76 \text{ \AA}$ [140]. En prenant en compte la relaxation du réseau, nous avons trouvé la valeur du paramètre de réseau $a=3.78 \text{ \AA}$, qui est en accord avec celui expérimental, à la fois par l'approximation GGA et LDA comme indiqué dans la Figure 5.1. Trois atomes sont considérés; un atome d'yttrium (Y) occupant le site dans les positions (0, 0, 0), un atome de chrome (Cr) est placé dans la position (1/2, 1/2, 1/2), tandis que les atomes d'oxygène sont localisés à les positions: (0, 1/2, 1/2), (1/2, 1/2, 0) et (1/2, 1/2, 0).

Valeurs des paramètres du système

Afin de calculer les valeurs de couplage magnétique, nous considérons la structure magnétique de notre système qui consiste en deux sous-réseaux avec le modèle classique de Heisenberg décrit par l'hamiltonien suivant:

$$H = -J_1 \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \vec{S}_j - J_2 \sum_{\langle j,k \rangle} \vec{S}_j \vec{S}_k - \Delta \sum_i (s_i)^2 \quad (3.1.1)$$

J_1 : Couplage d'échange entre les proches voisins $\vec{S}_i$ et $\vec{S}_j$.

J_2 : Couplage d'échange entre les seconds proches voisins $\vec{S}_j$ et $\vec{S}_k$.

Le symbole $\langle i, j \rangle$ désigne l'interaction entre les proches voisins.

Δ : est l'anisotropie magnétique le long de l'axe facile. Cr^{3+} est le seul ion de spin magnétique présent dans les matériaux étudiés avec $S = 3/2$. Le choix du modèle de Heisenberg pour décrire les interactions magnétiques dans ce système est essentiellement lié à l'existence de l'anisotropie. Selon le hamiltonien (3.1.1), les valeurs des couplages d'échange J_1 et J_2 peuvent être obtenues en utilisant l'expression suivante:

$$J_i = \frac{E(\text{AFM}_i) - E(\text{FM})}{ZS^2}, \quad (3.1.2)$$

où $E(\text{AFM}_i)$, $i=1, 2$ et $E(\text{FM})$ sont les énergies du système relatives aux configurations antiferromagnétiques et ferromagnétiques (tableau 3.1.1), respectivement. Les énergies des configurations antiferromagnétiques, $\text{AFM}_{i=1,2}$ sont calculées, respectivement, pour les deux cas $E_{\text{AFM1}}(\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow)$ et $E_{\text{AFM2}}(\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow)$, avec des spins situés sur des sommets en réseau. Z est le nombre de voisins les plus proches; chaque spin dans le réseau possède 6 premiers proches voisins et 12 seconds proches voisins. Les constantes de couplage d'échange trouvées par la méthode GGA sont $J_1 = 13,9 \text{ meV}$ et $J_2 = 6.74 \text{ meV}$.

En utilisant le modèle d'anisotropie mono-ionique [141-143], le paramètre (Δ), l'anisotropie magnétique est donnée par:

$$\Delta = \frac{E}{\sum_i S_i^2}, \quad (3.1.3)$$

Avec E est l'énergie de l'anisotropie magnétique. Cela correspond à la différence d'énergie entre les directions faciles et difficiles. En utilisant le programme DIPAN implémenté dans WIEN2K, nous avons calculé toutes les énergies d'anisotropie

magnétique (Tableau 3.1.2) pour les directions suivantes: 100, 010, 001, 101, 011, 110 et 111. L'énergie minimale trouvée correspond à la direction 110.

La différence d'énergie $\Delta E = -1.63 \times 10^{-19} \text{ eV}$ trouvée est faible, ce qui peut être dû à la concurrence avec le champ de cristal, cela prédit une faible valeur du paramètre d'anisotropie magnétique. Cependant, le terme Δ dans l'équation (3.1.1) sera conservé et utilisé comme un paramètre réduit normalisé.

Théorie de l'absorption de la méthode XMCD:

La méthode XMCD est déterminé par la différence d'absorption entre la lumière polarisée circulairement droite (μ_B^+) et gauche (μ_B^-), la gauche et la droite sont référées à la direction de propagation du rayonnement entrant par rapport à l'axe d'aimantation du système. À partir de la section efficace d'absorption pour la transition dipolaire pure, nous pouvons obtenir les relations suivantes [144]:

$$m_L = \frac{\mu_b}{\hbar} \langle Lz \rangle = -\frac{4}{3} \frac{\int_{L_3+L_2} d\omega(\mu^+ - \mu^-)}{\int_{L_3+L_2} d\omega(\mu^+ + \mu^-)} (10 - n_{3d}) \quad (3.1.4)$$

$$m_S = \frac{\mu_b}{\hbar} \langle Sz \rangle = -\frac{6 \int_{L_3} d\omega(\mu^+ - \mu^-) - 4 \int_{L_3+L_2} d\omega(\mu^+ - \mu^-)}{\int_{L_3+L_2} d\omega(\mu^+ + \mu^-)} (10 - n_{3d}) \left(1 + \frac{7 \langle Tz \rangle}{2 \langle Sz \rangle} \right)^{-1} \quad (3.1.5)$$

En appliquant ces relations à l'atome de Cr dans YCrO_3 , nous avons obtenu séparément la valeur du spin et du moment magnétique orbital.

Résultats et discussions

Nous avons représenté la densité totale et partielle des états de YCrO_3 . Comme nous savons, le GGA sous-estime la valeur de bande interdite, nous avons donc représenté directement le DOS en utilisant GGA + U avec ($U = 3 \text{ eV}$). Pour avoir plus de précision dans la bande interdite comparée à la bande expérimentale, les atomes de Cr occupent le site tétraédrique dans la structure cubique, comme nous le savons dans le champ cristallin les orbitales d divisées en deux niveaux e_{2g} et t_{2g} , cette dernière contient 3 électrons situés entre - 2 et 0 eV. Le composé YCrO_3 est un isolant pour spin-down et semi-conducteur dans la majorité des spin-up, les spectres XMCD

montrent que nous avons principalement transition de 2p à 3d états vides, avec une petite contribution de 2p à 4s états vides. L'intégrale XMCD et XAS nous permettent de calculer séparément la valeur du moment orbital et du moment de spin, nous avons trouvé $m_s = 2.38$ et $m_l = -0.094$. Le moment orbital a une petite contribution au moment magnétique total comme indiqué dans les travaux précédents [145].

3.1.2 Simulation par Monte carlo

Dans cette section, nous effectuons des recherches sur les propriétés magnétiques de YCrO_3 en utilisant des simulations de Monte Carlo avec le modèle de Heisenberg. Explicitement, nous étudions à température finie, le comportement des aimantations, les effets des couplages d'échange et de l'anisotropie magnétique réduite sur les diagrammes de phase et le comportement critique de YCrO_3 . L'algorithme de Metropolis est utilisé avec des conditions aux limites périodiques pour calculer les grandeurs thermodynamiques, à savoir l'aimantation et les dérivées de l'aimantation. Le programme a été effectué pour la taille du réseau du système, L . Les quantités calculées sont données respectivement par :

$$m = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |\vec{S}_i|, \quad (3.1.6)$$

$$\frac{d\langle m \rangle}{d(\frac{1}{k_B T})} = N(\langle me \rangle - \langle m \rangle \langle e \rangle), \quad (3.1.7)$$

$$\frac{d(\ln \langle m \rangle)}{d(\frac{1}{k_B T})} = N(\frac{\langle me \rangle}{\langle m \rangle} - \langle e \rangle), \quad (3.18)$$

où K_B est la constante de Boltzmann, $N = L^3$ est le nombre total de spins dans le système, avec L , la taille du réseau et $e = E / N$ est l'énergie interne par site du système.

Comportement critique

Au voisinage de la température de Curie, le comportement des grandeurs physiques est représenté par la puissance de la température $t' = |T - T_c|$. Dans ce contexte, ce comportement est fonction de constantes appelées "exposants critiques". Ils permettent de définir la classe d'universalité des matériaux décrits. Les exposants critiques suivants, β , γ et α sont respectivement associés à l'aimantation m , à la susceptibilité magnétique χ et à la chaleur spécifique C_v , tels que: $m \sim |T_c - T|^\beta$, $\chi \sim |T - T_c|^{-\gamma}$ et $C_v \sim |T - T_c|^{-\alpha}$. On montre que ces grandeurs thermodynamiques sont

utiles aussi bien pour la localisation d'une transition de phase que pour la détermination de sa nature.

La loi d'échelle donne [146-148]:

$$m(L) = L^{-\frac{\beta}{\nu}} f_m \left(t' L^{\frac{1}{\nu}} \right), \quad (3.1.9)$$

$$\frac{d \langle m \rangle}{d \left(\frac{1}{k_B T} \right)} = L^{\frac{1-\beta}{\nu}} f'_m \left(t' L^{\frac{1}{\nu}} \right), \quad (3.1.10)$$

$$\frac{d(\ln \langle m \rangle)}{d \left(\frac{1}{k_B T} \right)} = L^{\frac{1}{\nu}} f_{dm} \left(t' L^{\frac{1}{\nu}} \right), \quad (3.1.11)$$

où, f_m , f'_m et f_{dm} sont des fonctions d'échelle de taille finie avec $t' = |T - T_c|$. La température critique T_c peut être obtenue à partir de la température de transition du système. Dans ce qui suit, nous utilisons la constante de Boltzmann réduite $K_B = 1$.

Le Modèle

Nous avons effectué des simulations Monte Carlo / Métropolis du composé antiferromagnétique YCrO_3 avec l'hamiltonien Heisenberg classique donné dans l'équation (3.1). Nous avons commencé les simulations en choisissant un état initial dans lequel les spins des deux sous-réseaux sont antiparallèles (état antiferromagnétique), en gardant les spins le long de l'axe facile. Ensuite, la direction d'un spin choisi au hasard est changée aléatoirement de la direction initiale à une direction tentée, favorisée par la rotation du spin autour de la direction initiale dans un espace sphérique. Ainsi, la différence d'énergie ΔE entre l'état tenté et l'état initial est évaluée. Si $\Delta E \leq 0$ la nouvelle direction de la rotation est acceptée et devient permanente. Si $\Delta E > 0$, la nouvelle direction du spin est acceptée avec la probabilité $e^{-\beta \Delta}$, avec $\beta = \frac{1}{K_B T}$. Le processus a été répété pour tous les spins du réseau dans chaque étape Monte Carlo. Le programme a été réalisé pour 6 étapes de Monte Carlo de 10×10^5 . Les premières configurations doivent être générées à partir de 10^5 étapes de SMC.

Résultats et discussions

Les résultats de simulations de Monte Carlo présentés dans cette section ont été trouvés pour des paramètres réduits $\mathbf{r} = \frac{J_2}{J_1}$ et $\mathbf{d} = \frac{\Delta}{J_1}$. Lors de l'étude des effets de chaque paramètre sur les diagrammes de phase, l'autre paramètre du système est maintenu constant et un balayage est effectué sur une plage des valeurs des paramètres étudiés, y compris les valeurs négatives et positives. Nous distinguons deux étapes dans cette étude. Nous examinons d'abord les diagrammes de phase à l'état fondamental correspondant à la température nulle ($T = 0$), avec l'absence et la présence d'un champ magnétique externe. Deuxièmement, à des températures finies, nous commençons par montrer les effets des paramètres du système sur les diagrammes de phase, nous discutons des effets de taille sur la magnétisation totale ainsi que la susceptibilité magnétique et nous analysons les comportements critiques du système étudié.

Diagramme de phase de l'état fondamental ($T = 0$)

Figure 3.1.3 dans le plan (r_1, d) pour une température nulle et sans champ externe, le système présente deux configurations stables : $(m_s = \pm \frac{1}{2})$ et $(m_s = \pm \frac{3}{2})$, ayant une énergie minimale à l'état fondamental. A partir de l'Hamiltonien donné dans l'équation (3.3), les diagrammes de phase de l'état fondamental sont déterminés en calculant et en comparant les deux énergies des configurations, où les constantes de couplage d'échange sont réduites entre les spins s-s, et le champ du cristal réduit est d , h est le champ magnétique externe réduit. Les phases sont séparées par une ligne de transition du premier ordre, correspondant à l'égalité entre les énergies des configurations de l'état fondamental et nous trouvons que la phase $(m_s = \pm \frac{3}{2})$ devient plus dominante quand on augmente la valeur du champ cristallin réduit.

Diagramme de Phase pour ($T \neq 0$)

Les aimantations totales (Figure 3.1.4(a)) et partielles (Figure 3.1.4(b)) en fonction de la température sont illustrées respectivement sur les figures 3.1.4 (a) et 3.1.4(b). Ils sont tracés pour $h=0$, $r=0.48$, et $d=0$, et pour la taille du réseau $L = 6$. La magnétisation totale commence par sa valeur maximale 1,5 à basses températures et décroît continuellement jusqu'à la température de Curie $T_C \approx 9$, indiquant que le

système subit une transition de phase du second ordre de la phase magnétique stable à la phase paramagnétique où les aimantations sont nulles.

Les aimantations totales en fonction du champ cristallin réduit d pour les valeurs $r=0.48$ et $h=0$ sont illustrées sur les figures 3.1.5(a) et 3.1.5(b). À basse température nous trouvons la transition du premier ordre entre les deux phases (1/2) et (3/2), si on augmente la température, la phase (1/2) se transforme à la phase (3/2), c'est un bon accord avec le diagramme de phase de l'état fondamental.

Les figures 3.1.6 (a) et 3.1.6(b)) montrent les ensembles formés par les points critiques, indiquant les lignes de transition du second ordre, nous montrons dans deux diagrammes différents (figures 3.1.6 (a) et 3.1.6 (b)), la variation de la température critique (figure 3.1.6 (a)) par rapport au paramètre d'anisotropie magnétique réduit pour les valeurs $r=0.48$ et $h=0$, et dans (figure 3.1.6 (b)), $r=0.48$ et $h=0$, en fonction du paramètre du couplage d'échange en fixant la taille du système à $L = 6$.

Nous avons rétabli qu'à basse température (figures 3.1.6 (a) et 3.1.6(b)), une ligne de transition du premier ordre (ligne rouge pointillée) qui se termine à un point critique isolé. Ces deux phases ordonnées (magnétique), désordonnée (paramagnétique) sont séparées par une ligne de transition du second ordre (ligne noire continue). Au-dessus des points d'extrémité, (petites cercles) un passage continu apparaît entre les phases (1/2) et (3/2). Ces résultats concordent qualitativement avec ceux rapportés dans les travaux référencés dans [149].

Pour étudier l'effet du paramètre extrinsèque sur le système, nous illustrons dans la Figure 3.1.7 la magnétisation, qui dépend du champ magnétique externe, pour les paramètres intrinsèques fixes et pour les valeurs de température réduite, nous avons trouvé que la réponse des magnétisations au champ magnétique externe montre des comportements d'hystérésis avec des boucles uniques où le champ coercitif magnétique réduit est inversement proportionnel avec la température et devient nul à $T=T_c$. Ce comportement révèle la dépendance du champ coercitif en termes de température. Ce résultat a été également trouvé dans d'autres travaux [149,150].

Le comportement critique de la perovskite YCrO_3 est étudié en suivant les exposants critiques. Une telle étude a été déjà réalisée pour une perovskite à base de manganite et a donné des résultats satisfaisants. Ainsi, nous calculons les exposants critiques, ν , β et γ liés aux grandeurs: La longueur de corrélation, l'aimantation et la susceptibilité.

Nous utilisons le logarithme de l'équation (3.1.9) pour calculer la valeur de ν en considérant la valeur de la pente ($1 / \nu$) de l'ajustement linéaire de la figure 3.1.8 (a). Et, les exposants critiques β et γ sont calculés à partir des pentes ($1 - \beta / \nu$) et (γ / ν) des ajustements linéaires sur les figures 3.1.8 (b) et 3.1.8(c), respectivement. Les exposants critiques obtenus sont $\nu = 0,50 \pm 0,0631$, $\beta = 0,31 \pm 0,04$ et $\gamma = 1,29 \pm 0$, qui sont comparable avec les ceux du modèle de Heisenberg tridimensionnel: $\nu = 0,703$, $\beta = 0,36$ et $\gamma = 1,38$ [151-153]. Selon ces valeurs, la perovskite YCrO_3 appartient à la classe d'universalité d' Heisenberg 3D.

3.1.3 Conclusion

Dans ce travail, nous avons utilisé des calculs Ab initio et des simulations de Monte Carlo avec le modèle classique de Heisenberg, afin d'étudier les diagrammes de phase et les propriétés magnétiques de la perovskite YCrO_3 . En utilisant la méthode Ab initio, les couplages d'échange et l'anisotropie magnétique ont été étudiés; la direction 110 a été trouvée et la direction magnétique facile. Tous les paramètres du système trouvés ont été normalisés et soumis à un balayage afin d'étudier les comportements magnétiques avec des simulations de Monte Carlo. Pour ce faire, nous combinons cette méthode avec l'algorithme de Métropolis dans le cadre du modèle classique de Heisenberg pour étudier les effets des paramètres susmentionnés sur les diagrammes de phase et le comportement critique. Les calculs des exposants critiques ont confirmé que la perovskite YCrO_3 appartient à la classe d'universalité d'Heisenberg 3D. Les résultats trouvés dans cette étude sont en accord avec d'autres travaux théoriques et expérimentaux.

La liste des figures :

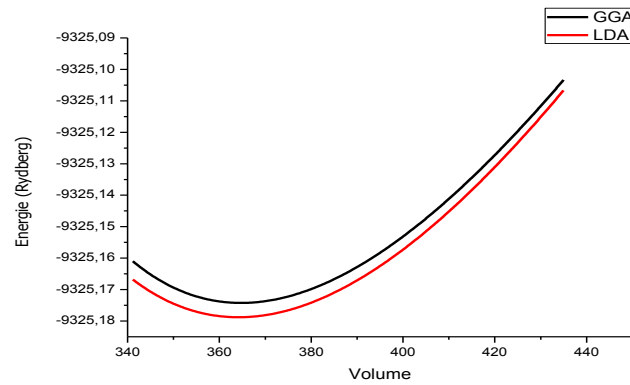


Figure 3.1.1 : Optimisation des paramètres de volume avec GGA et LDA.

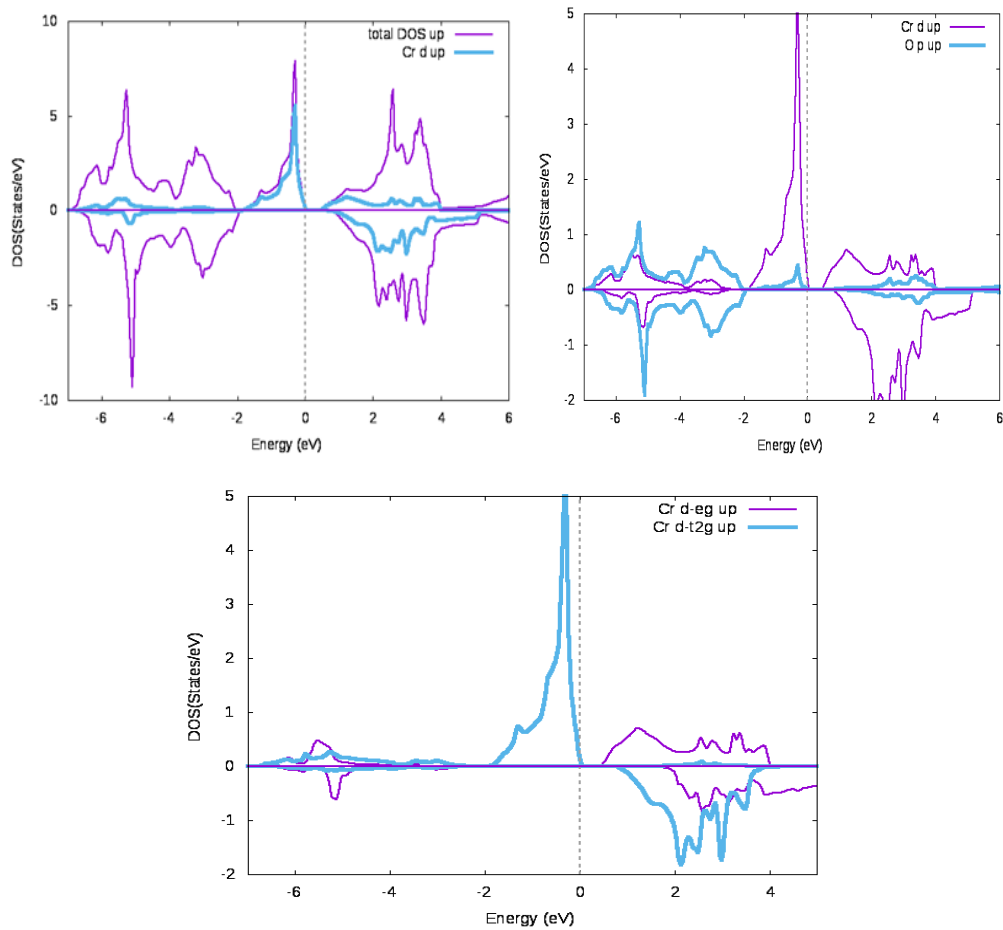


Figure 3.1. 2 (a): Densité totale et partielle pour YCrO_3 en utilisant la méthode GGA + U, (b) densité partielle pour les états 3d et 2p, (c) : Champ cristallin de ligands 3d-Cr.

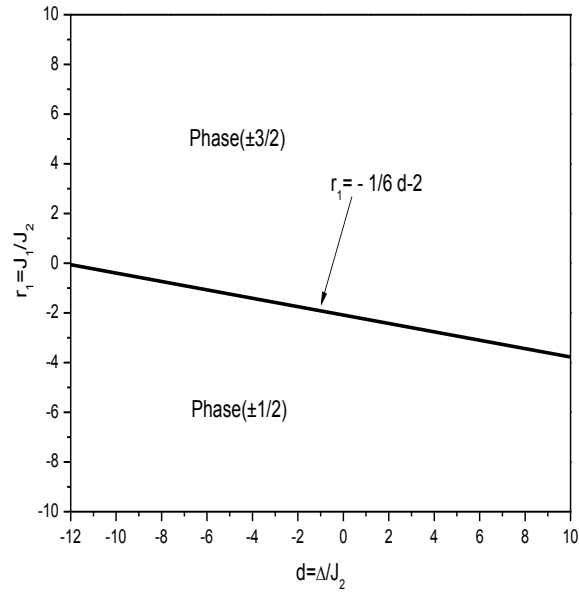


Figure 3.1.3 : Le diagramme de phase dans le plan (d, r_1) , pour $h=0$.

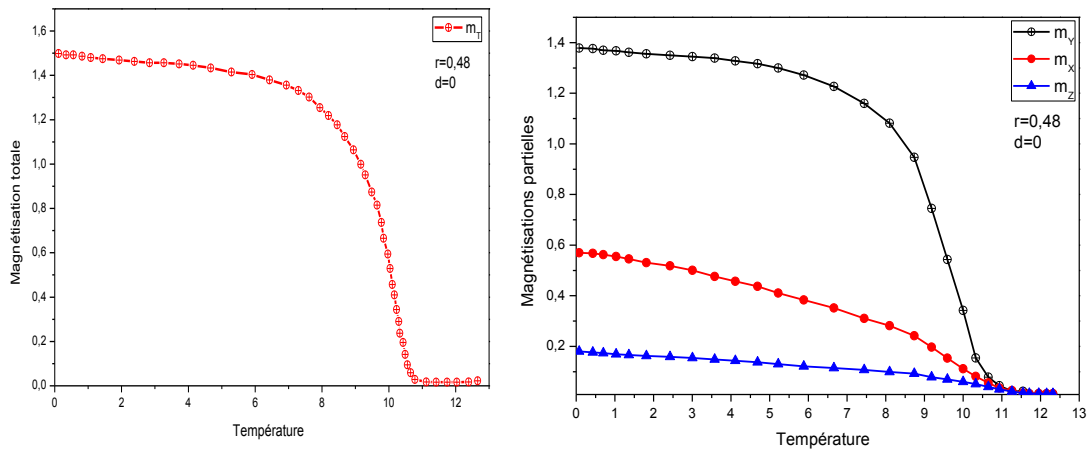


Figure 3.1.4(a) : la magnétisation totale en fonction de température, pour les valeurs $r=0.48, h=0, d=0$, (b) : Les magnétisations partielles en fonction de température, pour les valeurs $r=0.48, d=0$.

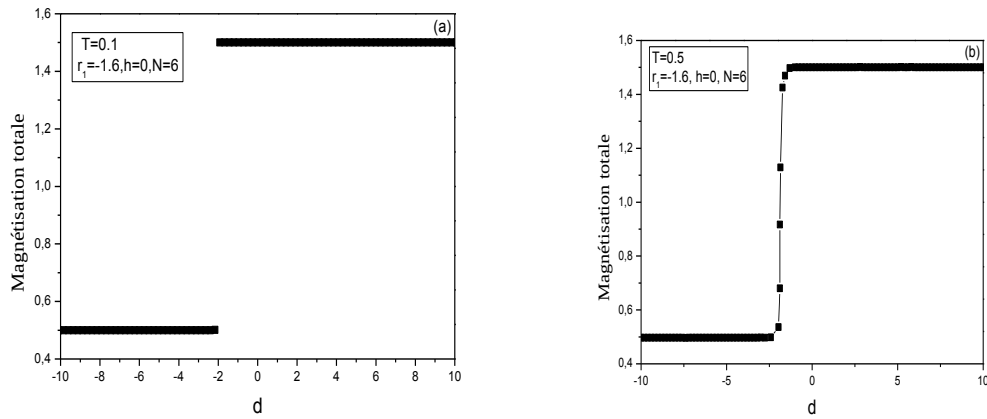


Figure 3.1.5 (a) : La magnétisation totale en fonction de champ cristalline pour (a) $r_1 = -1.6$, $T = 0.1$, $N=6$ et $h = 0$ et (b) $r_1 = -1.6$, $T = 0.5$, $N=6$ et $h = 0$.

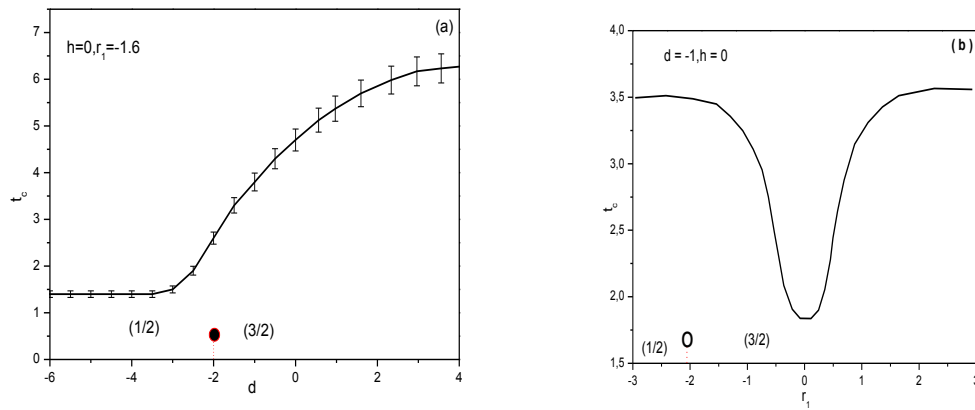


Figure 3.1.6(a) : température de curie en fonction de champ cristallin pour les valeurs (a) $r_1 = -1.6$, $T = 0.1$ et $h = 0$, (b) $r_1 = -1.6$, $T = 0.5$ et $h = 0$, (b) : Variation de la température critique par rapport à l'anisotropie magnétique réduite, pour $d = -1$, $h=0$, $N=6$.

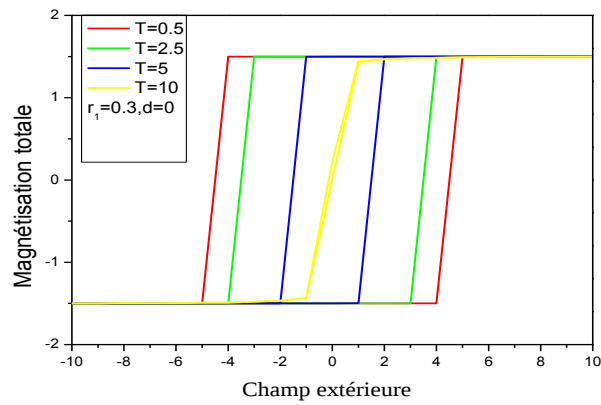
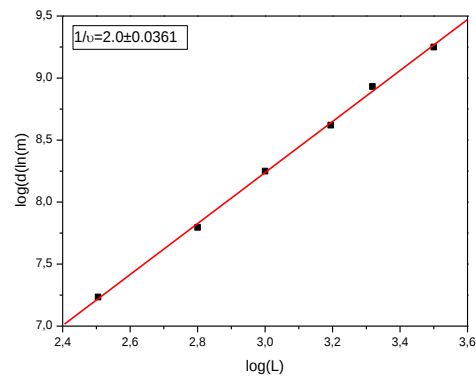
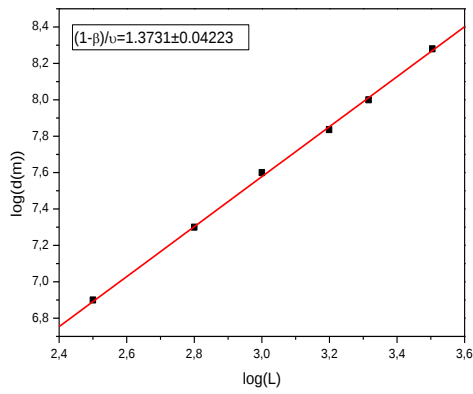


Figure 3.1.7 : La magnétisation total en fonction de champ externe, pour $T=0.5$, $T=2.5$, $T=5$, $T=10$, $r=0.3$, $N=6$ et $d=0$.

(a)

(b)



(c)

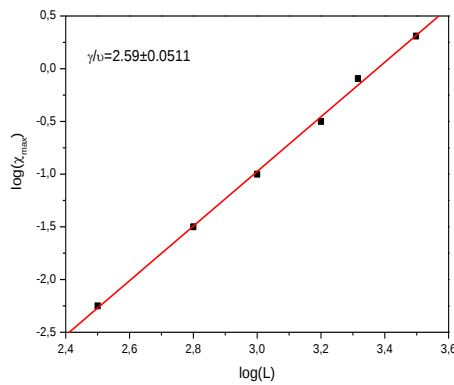


Figure 3.1.8 : Le diagramme log-log des maxima de la taille du réseau L , (a). (b), le graphe log-log des maxima de la taille du réseau L (c), le log-log des maxima de la susceptibilité en fonction de la taille du réseau L .

Configurations	Énergies (Ry)
$E_{\text{FM}}(\uparrow\uparrow\uparrow)$	-37298.07898
$E_{\text{AFM1}}(\uparrow\downarrow\downarrow)$	-37298.065108
$E_{\text{AFM2}}(\uparrow\uparrow\downarrow)$	-37298.065561

Le tableau 3.1.1 : Energies de différentes configurations YCrO_3 , par l'approximation GGA.

Direction			Énergie (J/m**3)
X	y	Z	
0	0	1	$-0.1287918\text{E} - 9$
1	1	0	$-0.8708497\text{E} - 9$
0	1	0	$-0.4113102\text{E} - 9$
1	0	0	$-0.3011775\text{E} - 9$
1	1	1	$-0.1556771\text{E} - 10$
0	1	1	$-0.3282711\text{E} - 9$
1	0	1	$-0.1018261\text{E} - 9$

Le tableau 3.1.2 : Energies pour les différentes directions de YCrO_3 , par l'approximation GGA.

3.2 Propriétés magnétiques et électroniques de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$
--

Les composés de pérovskite ont été décrits dans de nombreuses publications antérieures [156, 157]. Récemment, ces composés ont reçu beaucoup d'attention et d'intérêt avec des études expérimentales et théoriques en raison de leurs applications potentielles. Parmi ces derniers, il y a les mémoires magnétiques [158, 159], la jonction tunnel [160], les capteurs spintroniques [161, 162], les micro-ondes et les applications haute puissance [163-165]. La référence de cette famille a une formule générale $\text{A}_2\text{BB}'\text{O}_6$ avec A est un cation alcalino-terreux, B et B' doivent être des métaux de transition et O est de l'oxygène [166, 167]. Une étude récente a montré que le $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ est un nouveau membre des oxydes multiferroïques. Il fait l'objet d'études intéressantes en raison de son ordre électrique et magnétique à longue portée. Yáñez-Vilar et autres indiquent que en dessous de 35 K, $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ possède une forte polarisation électrique à une aimantation nette [168], en dépit de l'ordre antiferromagnétique du $S = 3/2$ Mn^{4+} et Co^{2+} à un arrangement antiferromagnétique $\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow$ selon de l'axe c. Ce comportement est similaire à ceux trouvés par Choi et al. Dans $\text{Ca}_3\text{MnCoO}_6$ [169, 170], où l'on observe l'ordre magnétique $\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow$ le long des chaînes d'ions Co-Mn-Co-Mn, avec la différence que l'ion Co^{2+} se situe dans la $\sigma = 1/2$ état plutôt que le $\sigma = 3/2$ état. En général, le Co^{2+} présente deux configurations électroniques différentes en fonction de l'occupation de t_{2g} et par exemple des orbitales. Les configurations de haut spin (HS) et bas spin (LS) sont $t_{2g}^7 e_g^0$ ($\sigma = 3/2$) et $t_{2g}^5 e_g^2$ ($\sigma = 1/2$) respectivement, tandis que pour Mn^{4+} est $t_{2g}^3 e_g^0$ ($S = 2/3$).

Les propriétés magnétiques et électroniques du spin mixte, y compris les doubles composés de perovskite ont attiré de nombreux chercheurs en utilisant différentes méthodes techniques; voir les références [171-179]. Récemment, le composé $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ a été largement étudié par de nombreuses techniques différentes [180-181], mais la méthode MC et la méthode d'Ab initio et l'étude de diagramme de phase à $T = 0$ sont toujours portés disparus pour autant que nous savons. Les objectifs du présent article sont de compléter cette lacune dans la littérature. La prise en compte de la variété intéressante des effets électroniques et des interactions magnétiques qui peuvent apparaître le long du $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ nous amène à combiner deux méthodes.

Premièrement, nous utilisons des calculs Ab initio pour déterminer la configuration stable et calculer l'interaction de couplage $J_{\text{Mn-Co}}$. De plus, nous utilisons la simulation Monte Carlo pour présenter l'aimantation, la susceptibilité, la chaleur spécifique et l'énergie et déterminer la température de transition. Pour comprendre l'effet de la taille du système L et des interactions de couplage sur le système, nous traçons l'aimantation, la susceptibilité, la chaleur spécifique et l'énergie en fonction de la température avec différentes valeurs de taille du système et interactions de couplage. le diagramme de phase des états fondamentaux à $T = 0$ a été étudié et présenté dans le domaine ($J_{\text{Co-Co}} / J_{\text{Mn-Co}}$, $J_{\text{Mn-Mn}} / J_{\text{Mn-Co}}$), et ($\Delta_s / J_{\text{Mn-Co}}$, $\Delta_\sigma / J_{\text{Mn-Co}}$), nous trouvons les phases les plus stables en rivalisant et en comparant toutes les valeurs d'énergie. Ce travail vise également à trouver la classe d'universalité du composé $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ en calculant les exposants critiques.

Méthodes de calcul

En utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) basée sur la méthode FPLAPW qui est implémentée dans le code WIEN2K [182], Pour étudier les propriétés magnétiques de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$. Le potentiel de corrélation d'échange a été traité en utilisant l'approximation de gradient généralisée (GGA) pour les calculs d'énergie totale [183]. Les sphères atomiques muffin-tin (MT), supposées ne pas se chevaucher, sont considérées comme 2.15, 1.97, 1.86 et 1.6 unités atomiques (au) pour Lu, Co, Mn et O, respectivement. Le seuil est spécifié via le produit RM_{TKmax} , où RMT est le plus petit rayon de sphère de muffin-tin ("atomique"), et K_{max} est l'amplitude du plus grand vecteur d'onde. Nous utilisons $\text{RM}_{\text{TKmax}} = 7,5$ dans cette étude et k-points environ 500 dans la zone de Brillouin irréductible pour la convergence auto-cohérente. Le critère de convergence a été choisi pour être l'énergie totale et fixé à 0,0001 eV. Pour calculer les valeurs d'énergie, nous considérons un réseau $2 \times 1 \times 1$ dans l'espace réel. La double pérovskite $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ a cristallisé dans la structure monoclinique avec space group $\text{P}2_1 / \text{n}$ (n °.14).

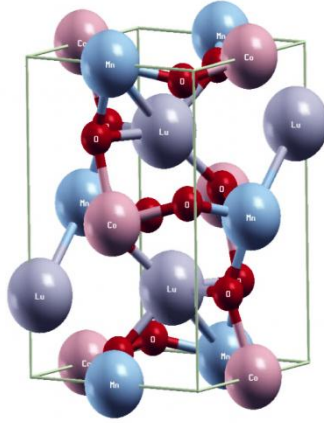


Figure 3.2.1 : La structure cristalline de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$

Modèle et Hamiltonien

Le composé forme des chaînes d'alternance et des ions qui sont disposés dans deux sous-réseaux différents. Le sous-réseau est occupé par spin supposé, prendre les valeurs $\pm 1/2$, tandis que le sous-réseau est occupé par des tours. La Figure 6.1 C'est l'illustration simple de la structure cristalline de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$, montrant l'atome d'oxygène octaédrique entourant les ions et l'alternance, les ions Oxygen sont situés aux coins des octaèdres qui sont centrés par les ions Lu.

L'hamiltonien décrivant le système est donné par:

$$\mathcal{H} = -J_1 \sum_{\langle ij \rangle} \sigma_i \sigma_j - J_2 \sum_{\langle ij \rangle} S_i S_j - J_3 \sum_{\langle ij \rangle} S_i \sigma_j - \Delta \sum_i S_i^2 - h \sum_i (S_i + \sigma_i) \quad (3.2.1)$$

Les paramètres de couplage J_1, J_2 et J_3 décrivent les interactions d'échange entre les spins, et Δ sont les champs de cristal agissant sur les deux sous-réseaux, h est le champ magnétique externe.

Tous les calculs suivants ont été effectués avec des paramètres réduits $r_1 = \frac{J_{\text{Co-Co}}}{J_{\text{Mn-Co}}}$,

$$r_2 = \frac{J_{\text{Mn-Mn}}}{J_{\text{Mn-Co}}}, T_r = \frac{T}{|J_{\text{Mn-Co}}|}, h = \frac{H}{J_{\text{Mn-Co}}}, d_s = \frac{\Delta_s}{J_{\text{Mn-Co}}} \text{ et } d_\sigma = \frac{\Delta_\sigma}{J_{\text{Mn-Co}}}.$$

Les énergies totales pour les différentes configurations AFM et FM sont données par:

$$E_{\uparrow\uparrow\downarrow} = \left(\frac{9}{4}\right) (+6J_{\text{Mn-Co}} - 8J_{\text{Mn-Mn}} - 8J_{\text{Co-Co}}), \quad (3.2.2)$$

$$E_{\uparrow\uparrow\uparrow} = \left(\frac{9}{4}\right) (-6J_{\text{Mn-Co}} - 8J_{\text{Mn-Mn}} - 8J_{\text{Co-Co}}), \quad (3.2.3)$$

avec : $E_{\uparrow\uparrow\downarrow} = -128665.69283520 \text{ Ry}$ et $E_{\uparrow\uparrow\uparrow} = -128665.68752778 \text{ Ry}$

La combinaison des équations (3.2.2, et 3.2.3) donne la valeur de l'interaction de couplage entre Mn et Co suivante :

$$J_{\text{Mn-Co}} = \frac{E^{\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow} - E^{\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow}}{12 \left(\frac{3}{2}\right)^2}.$$

La valeur du couplage d'échange obtenue par la méthode GGA est : $J_{\text{Mn-Co}} = -2.673 \text{ MeV}$.

3.2.1 Les calculs d'Ab initio

Afin d'étudier la stabilité magnétique de la double pérovskite $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ et de trouver l'énergie minimale correspondante à la configuration stable, nous utilisons des calculs Ab initio basés sur le code de Wien2k. En utilisant le FP-LAPW, nous déterminons l'énergie totale des configurations pour les deux cas suivants: Le premier est une configuration ferromagnétique (FM) dans laquelle le manganèse et le cobalt sont dans la même direction, tandis que le second est une configuration anti-ferromagnétique (AFM) pour laquelle le manganèse et le cobalt sont dans des directions opposées. En utilisant l'approximation GGA, nous trouvons que la configuration magnétique la plus stable est l'AFM, l'ion Co^{2+} est dans l'état $\sigma = 3/2$ plutôt que dans l'état $\sigma = 1/2$, ce résultat est en bon accord avec celui expérimental comme dans la référence [184].

Propriétés électroniques:

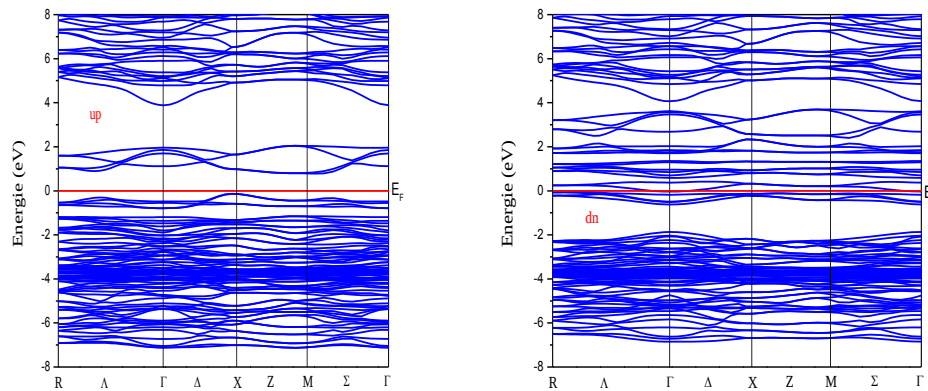


Figure 3.2.2: Les structures de bande de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ tracées pour spin-up et spin-down par la méthode de GGA.

Les structures de bande calculées le long de la haute symétrie R, A, Γ , Δ , X, Z, M, Σ et Γ .

Dans la zone de Brillouin pour le spin-up et le spin-down ont été montrées sur la Figure 3.2.2, pour $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ avec l'approximation GGA. Le spin up dans la structure de la bande présente une double bande interdite entre le niveau de Fermi (E_F), qui est considéré comme l'origine, et le niveau d'énergie $E=1$ eV et le second entre les niveaux d'énergies 2 et 4 eV. La valeur nulle de l'écart d'énergie dans la structure de la bande spin-down indique le caractère métallique de cette composé, tandis que le gap d'énergie zéro dans la structure de bande, est la conséquence du caractère semi-métallique [185]. Les états spin-up sont plus proches les uns des autres que les états spin-down dans la bande de valence. La petite bande interdite indirecte se situe entre les directions x et Λ . La bande de conduction traverse le niveau de Fermi et se chevauche de manière significative sur celle-ci (c'est-à-dire un intervalle d'énergie nul), dans la structure de bande centrifuge indiquant un comportement conducteur typique. Ceci nous permet de conclure que les états proches permettent aux électrons une mobilité facile qui influence la conductivité du système.

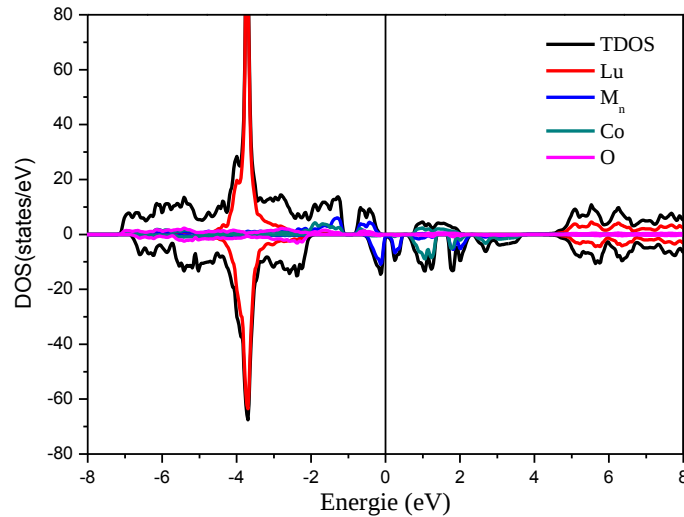


Figure 3.2.3 : Densité totale et partielle des états traités par approximation GGA pour $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$.

La densité partielle, totale des états électroniques des atomes (Lu, Mn, Co, O) et la densité totale de densité d'états électroniques projetés entre -8 et 8 eV sont illustrées à la figure 4.2 en utilisant l'approximation GGA. Le niveau de Fermi est fixé à zéro, et le canal de spin majoritaire présente un comportement métallique tandis que le canal

de spin minoritaire a un caractère semi-conducteur, avec une bande interdite autour du niveau de Fermi, ce qui conduit à une polarisation de spin de 100%. Les atomes de Lu et O ne sont pas magnétiques; en raison de la symétrie parfaite des états "up" et "down". Par conséquent, les caractères ferromagnétiques du composé résultent de la non-symétrie des états de spin "up" et des états de spin "down" venant de l'hybridation des atomes Mn et Co.

3.2.2 Simulation par Monte Carlo

Pour simuler le comportement magnétique de ce système complexe, la méthode SMC a été réalisé et combiné avec un algorithme de de l'algorithme de Métropolis. Le système a été conçu dans le programme de simulation comme un volume cubique $L_B = 64$, qui reste supérieur à la limite thermodynamique déterminée à $L_{ThL} = 28$ pour cette classe de matériaux [31, 32]. Une méthode d'échantillonnage standard est utilisée pour traiter l'hamiltonien dans l'équation (3.2.1). La configuration initiale a été générée aléatoirement, les spins sont localisés de manière aléatoire dans les sites de sous-réseau. Le programme de simulation a été construit de manière à considérer les conditions aux limites cycliques. A chaque étape SMC, tous les sites du système sont traversés séquentiellement et des tentatives de retournement à spin unique sont effectuées. Un algorithme de Métropolis a été inclus dans le programme pour aider à décider de l'acceptation ou du rejet des bascules à spin unique. La simulation a récupéré les données à partir de $3 \cdot 10^6$ étapes de SMC, où les premières étapes $1.8 \cdot 10^5$ ont été utilisées pour atteindre l'équilibre. À l'équilibre, les moyennes des quantités physiques suivantes ont été calculées par site:

L'énergie interne est:

$$E = \frac{\langle H \rangle}{L^3} \quad (3.2.4)$$

Tandis que l'énergie totale et partiales sont respectivement définies par :

$$M = \frac{1}{L^3} \left| \sum_i S_i - \sum_i \sigma_i \right|, \quad (3.2.5)$$

$$m_\sigma = \frac{2}{L^3} \langle \sum_i \sigma_i \rangle, \quad (3.2.6)$$

$$m_S = \frac{2}{L^3} \langle \sum_i S_i \rangle . \quad (3.2.7)$$

La susceptibilité χ et la chaleur spécifique C_V sont respectivement données par:

$$\chi = \frac{(\langle M^2 \rangle - \langle M \rangle^2)}{k_B T}, \quad (3.2.8)$$

$$C_V = \frac{1}{(k_B T)^2} (\langle H^2 \rangle - \langle H \rangle^2), \quad (3.2.9)$$

où k_B est la constante de Boltzmann. Les comportements critiques des quantités observables sont déterminés par [186, 187, 188] :

$$M \sim |T_c - T|^\beta, \quad (3.2.10)$$

$$\chi \sim |T_c - T|^{-\gamma}, \quad (3.2.11)$$

$$C_V \sim |T_c - T|^{-\alpha}, \quad (3.2.12)$$

où α, β et γ sont les exposants critiques associés. Pour déterminer les exposants critiques, nous utilisons la dérivée de l'aimantation m et $\ln \langle m \rangle$ par rapport à $\frac{1}{k_B T}$:

$$\frac{d\langle m \rangle}{d\beta} = \langle ME \rangle - \langle M \rangle \langle E \rangle, \quad (3.2.13)$$

$$\frac{d(\ln \langle m \rangle)}{d(\beta)} = \frac{\langle ME \rangle}{\langle M \rangle} - \langle E \rangle, \quad (3.2.14)$$

selon la théorie de l'échelle de taille finie [189, 190], la localisation des transitions de phase et leur nature peuvent être étudiées en utilisant les grandeurs thermodynamiques telles que:

$$M(L) = L^{-\frac{\beta}{\nu}} M^0 \left(\epsilon L^{\frac{1}{\nu}} \right), \quad (3.2.15)$$

$$\chi(L) = L^{\frac{\gamma}{\nu}} \chi^0 \left(\epsilon L^{\frac{1}{\nu}} \right), \quad (3.2.16)$$

$$C(L) = L^{\frac{\alpha}{\nu}} C^0 \left(\epsilon L^{\frac{1}{\nu}} \right), \quad (3.2.17)$$

avec M^0, χ^0 et C^0 sont la fonction d'échelle et $\epsilon = (T - T_c)$.

Le diagramme de phase de l'état fondamental:

L'énergie de l'état fondamental peut être calculée exactement à partir de l'équation (3.3.1) et l'expression de l'énergie de l'état fondamental par site est donnée par:

$$E_g = -J_{Co-Co} \frac{z_1}{2} \sigma^2 - J_{Mn-Mn} \frac{z_2}{2} S^2 - J_{Mn-Co} \frac{z_3}{2} S\sigma - \frac{\Delta_s}{2} S^2 - \frac{\Delta_\sigma}{2} \sigma^2, \quad (3.2.18)$$

avec z_1, z_2 et z_3 désigner le nombre des premiers proches voisins entre sous-réseaux respectivement Mn – Mn, Co – Co et Mn – Co .

En comparant les énergies de toutes les configurations on obtient deux cas qui sont indiqués dans la Figure 3.2.3, ce diagramme de phase est tracé dans le plane (r_1, r_2) , les seules phases stables sont: $F_1 = \left(\frac{-3}{2}, \frac{1}{2}\right)$, $F_2 = \left(\frac{3}{2}, \frac{1}{2}\right)$ et $F_3 = \left(\frac{3}{2}, \frac{3}{2}\right)$.

Les différentes phases sont séparées par des lignes, indiquant des transitions de phase qui sont toutes des transitions de phase du premier ordre. Les mêmes phases sont obtenues aussi dans le domaine (d_s, d_σ) .

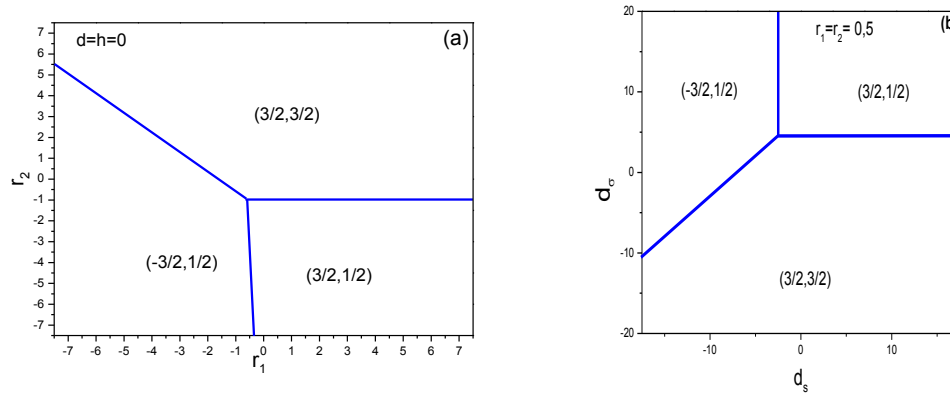


Figure 3.2.3: diagramme de phases de l'état fondamental pour la double perovskite Lu_2MnCoO_6 dans la planes: (a) (r_1, r_2) pour $h = 0, d_s = d_\sigma = 0$, (b) pour (d_s, d_σ) et $r_1 = r_2 = 0.5$.

L'effet de la taille

L'effet de la taille sur des paramètres, tels que les énergies, les chaleurs spécifiques, les magnétisations et les susceptibilités, ont été étudiés et illustrés sur la figure 3.2.4 (a) - (d) avec une taille L qu'on fait varier de 4 à 24 pour $h=0$.

Comme on le voit sur la Figure 3.2.4(b) - (c), nous obtenons un pic qui diverge de la température critique, c'est un signe de transition de phase. La transition du second ordre est établie pour l'énergie, la chaleur spécifique et la susceptibilité, représenté sur les figure 3.2.4(a), figure 3.2.4(b), figure 3.2.4(c) et la figure 3.2.4 (d).

Dans la Figure 3.2.4(a), les aimantations totales sont montrées dans des courbes continues, et donc la transition de phase qui décrit à $T_r = 10$. Dans les Figure 3.2.4(b) - (d) qui montrent les courbes de susceptibilité magnétique sous la forme d'une distribution gaussienne spécifique aux transitions de phase de second ordre avec des pics coïncidant avec $T_r = 10$. La taille du système n'affecte pas la température de transition mais a un impact sur l'amplitude des fluctuations, ce qui peut être vu sur la figure 3.2.4 (a) - (d).

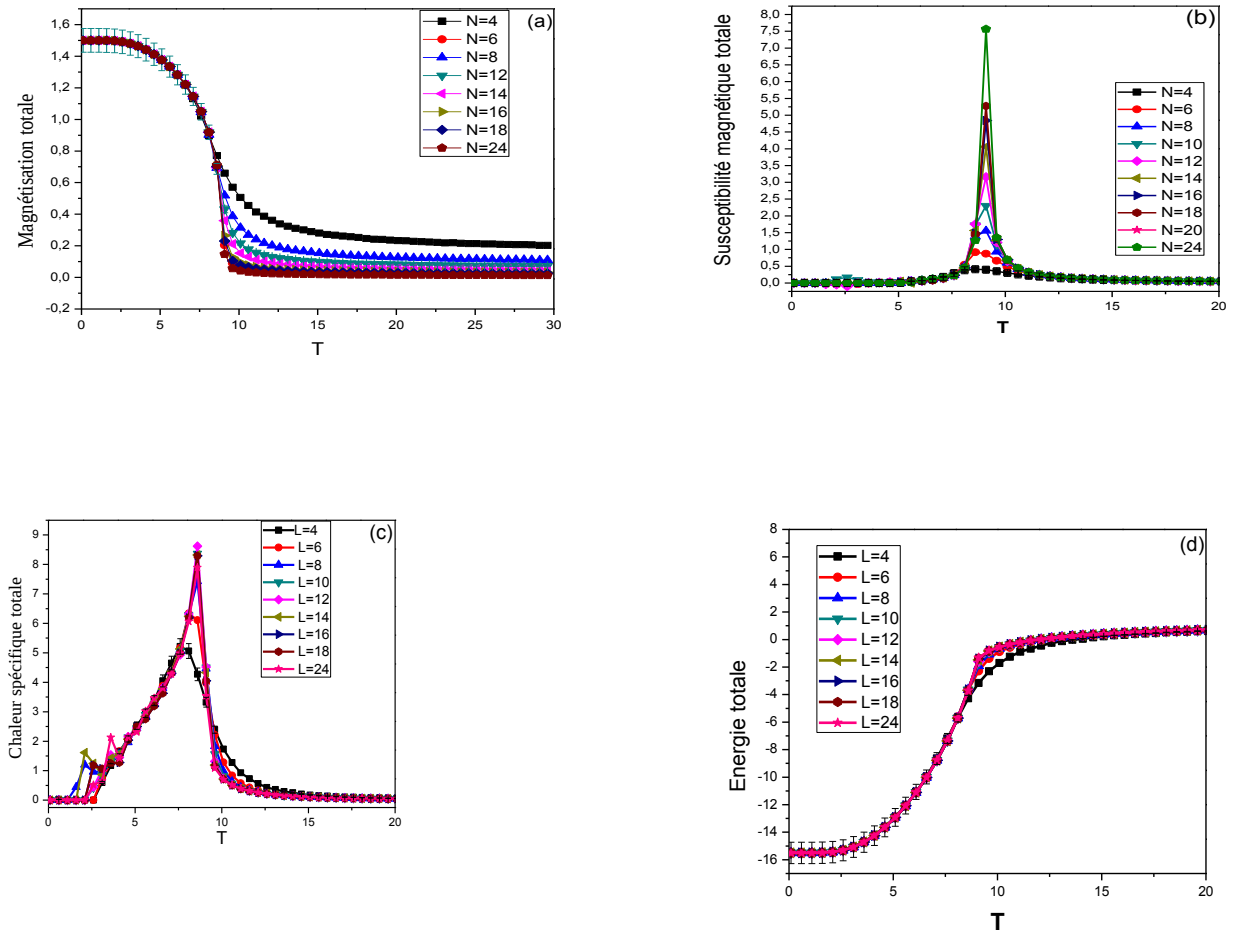
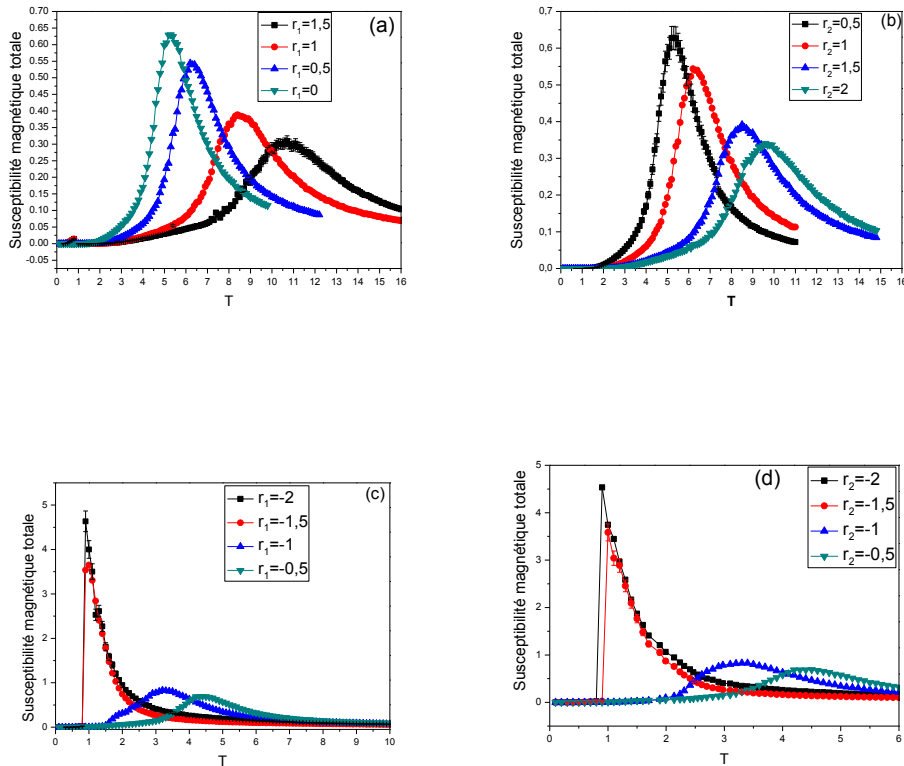


Figure 3.2.4 : (a) L'aimantation totale (b) La susceptibilité totale (c) La chaleur spécifique totale et (d) L'énergie totale en fonctions de la température.

L'effet des interactions de couplage:

Nous étudions maintenant l'effet des interactions des couplages r_1 et r_2 et sur les susceptibilités et la température de transition du système que nous avons présenté sur la figure 3.2.5 (a)-(d) la susceptibilité totale en fonction de la température avec différentes valeurs de paramètres d'interaction de couplage. Pour les valeurs positives et négatives de r_1 et r_2 comme dans les Figure 3.2.5(a)-(d), les susceptibilités magnétiques deviennent plus larges et leurs pics diminuent avec les valeurs de r_1 et r_2 . La figure 3.2.5 (e) - (f), présentent la température de transition T_c en fonction de r_1 et r_2 , nous avons remarqué que la T_c augmente avec les valeurs de r_1 et r_2 . A basses températures (figure 3.2.5 (e) - (f)), la ligne de transition du premier ordre (ligne rouge en pointillé) se termine à un point critique isolé; premier point situé à $(r_1=-2.25, T_c=0.5)$ comme dans la figure 3.2.5 (e) et un autre point situé à $(r_2 = -1.0, T_c = 0.5)$, comme dans la figure 3.2.5(f), ces points apparaissent entre les deux phases ordonnées. Ces deux phases ordonnées sont séparées de la phase paramagnétique par une ligne de transition du second ordre (ligne noire continue). Les points critiques sont représentés par des minuscules cercles.



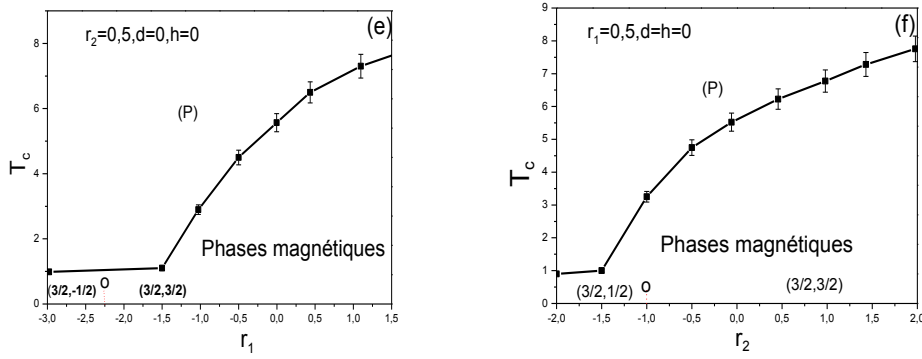


Figure 3.2.5(a)-(d) : La susceptibilité en fonction de la température en absence d'un champs externes et champs cristallins pour les valeurs réduites (a) $r_1 = 0.0$, $r_1 = 0.5$, $r_1 = 1.0$, $r_1 = 1.5$, $r_1 = 2.0$ et $r_2 = 0.5$ (b) $r_2 = 0.0$, $r_2 = 0.5$, $r_2 = 1.0$, $r_2 = 1.5$, $r_2 = 2.0$ et $r_1 = 0.5$ (c) $r_1 = -0.5$, $r_1 = -1.0$, $r_1 = -1.5$ et $r_1 = -2.0$ et $r_2 = 0.5$, (d) $r_2 = -0.5$, $r_2 = -1.0$, $r_2 = -1.5$, $r_2 = -2.0$ et $r_1 = 0.5$.

Sur la figure 3.2.5 (e) - (f), nous montrons la variation de la température de Curie en fonction des interactions de couplage d'échange estimées à partir des pics de susceptibilité pour des valeurs réduites sélectionnées, $d_s=d_o = 0$, et $h=0$.

Les exposants critiques:

Afin de comparer les comportements thermodynamiques du composé à d'autres modèles, il est important d'estimer les exposants critiques en utilisant les diagrammes log-log des maxima de la susceptibilité(m)/ $d(\frac{1}{kT})$, les maxima du dérivé d'aimantation $d\ln(m)/d(\frac{1}{kT})$ en fonctions des tailles de réseau, pour $L = 12, 16, 20, 28, 30$ et 36 comme dans la figure 3.2.6 Les valeurs d'exposant de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ sont illustrées dans le tableau 3.2.1, nous remarquons que le composé $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ appartient à la classe d'universalité d'Ising à 3D.

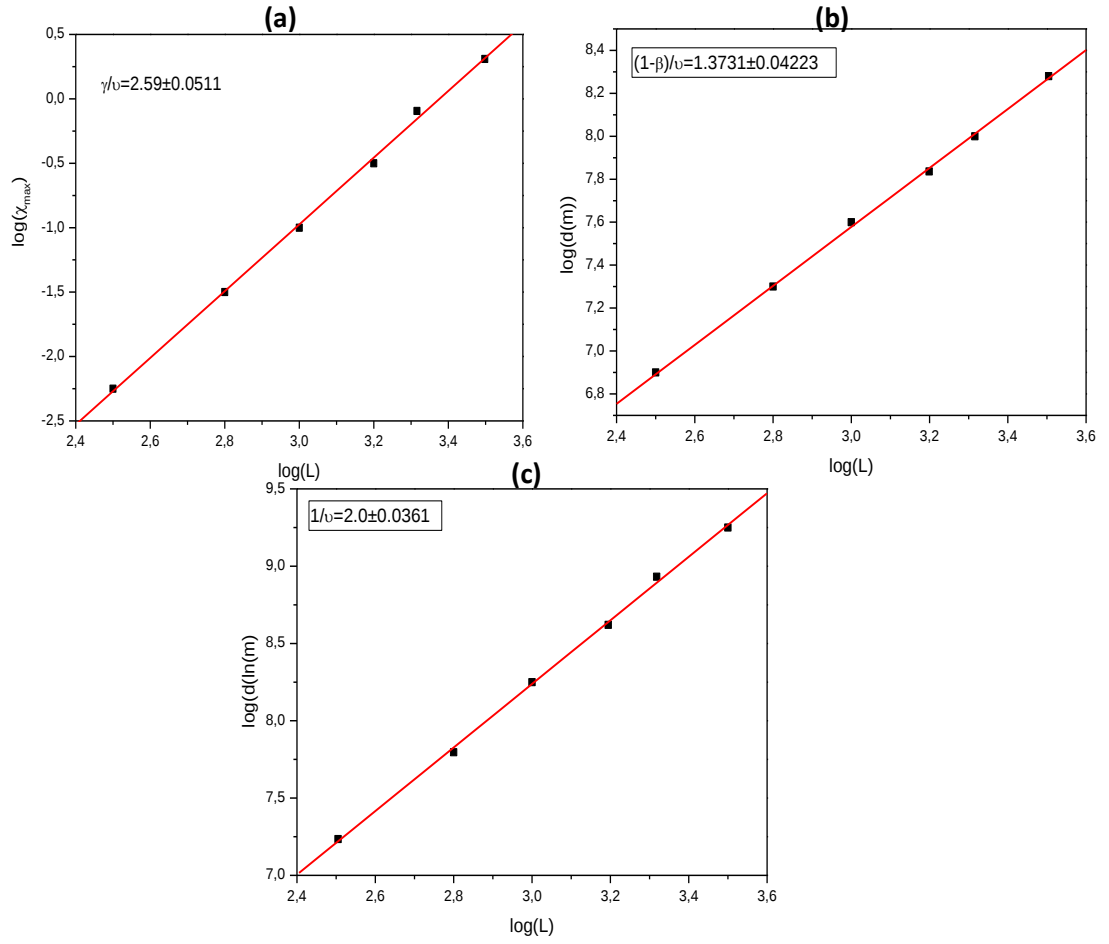


Figure 3.2.6: graphe de log-log des maxima de susceptibilité en fonction de la taille du réseau allant de $L = 12$ à 36 . Les droites dans (a), (b) et (c) sont les ajustements linéaires qui donnent l'exposant critique du system.

Enfin, nos résultats sont en bon accord quantitativement avec les littératures expérimentales et théoriques voir [175, 178], ainsi que et les références qui s'y trouvent, voir aussi les tableaux ci-dessous. Nous notons que la valeur de la transition de la température dans le tableau 3.2.3 est prise pour les valeurs constantes d'interaction de couplage, en l'absence à la fois de champs cristallins et externes [168].

Double pérovskite

Atome magnétique	Co	Mn	Total
Moment magnétique via GGA	2.38	2.78	5.5
Valeur expérimentale du moment magnétique [168]	2.52	2.56	6

Tableau 3.2.1: La comparaison du Moment Magnétique entre nos calculs Ab initio et les résultats expérimentaux.

Exponents critiques	β	γ	ν
$\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$	0.29 ± 0.04223	1.295 ± 0.051	0.5 ± 0.0361
$\text{Sr}_2\text{CrMoO}_6$ [19]	$0,30357 \pm 0,01312$	$1,18749 \pm 0,08757$	$0,61607 \pm 0,02357$
Modèle d' Ising 3D	≈ 0.3 [140]	≈ 1.2 [140]	≈ 0.6 [139]

Tableau 3.2.2: Les valeurs de l'exposant de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$

Matériaux double pérovskite	$J_{\text{Co-Mn}}$ (Mev)	T_N (K)
$\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$	-2.15 [38]	16.5 [169]
$\text{Pb}_2\text{MnTeO}_6$	-----	20 [142]
$\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$	-2.67	17.355

Tableau 3.2.3: Les interactions de couplage et la température de transition de $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ et de certains matériaux similaires.

3.2.3 Conclusion

Dans ce travail, nous avons utilisé la simulation de Monte Carlo et les calculs *Ab-initio* pour étudier les propriétés magnétiques et électroniques de la double pérovskite $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$. Tout d'abord nous avons analysé, à zéro température, les diagrammes de phase de l'état fondamental sur la dépendance à la fois des interactions de couplage et des champs cristallins. Nous avons constaté que le système présente une transition du premier ordre entre les phases les plus stables. Le comportement de la magnétisation, la susceptibilité, la chaleur spécifique et l'énergie totale en fonction de la température indiquent une transition de phase autour de $T = 10$. De plus, les transitions de phase du second ordre ont été observées avant la température de Curie. Ce comportement est affecté lors de la modification des paramètres du système. La valeur des exposants critiques obtenus par SMC avec la taille de réseau $L = 12, 16, 20, 28, 30$ et 36 est très proche de la valeur trouvée dans la littérature.

Accepted Manuscript

Research paper

Magnetic and electronic properties of double perovskite $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$: *Ab-initio* calculations and Monte Carlo simulation

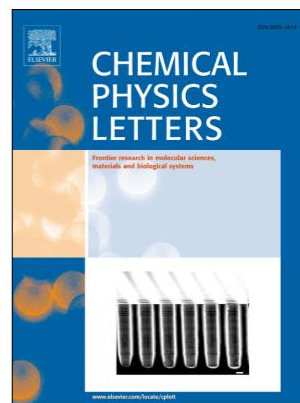
S. Sidi Ahmed, M. Boujnah, L. Bahmad, A. Benyoussef, A. El Kenz

PII: S0009-2614(17)30734-0

DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cplett.2017.07.057>

Reference: CPLETT 34983

To appear in: *Chemical Physics Letters*



3.3 Diagrammes de phase et propriétés magnétiques de $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$

Comme on l'a mentionné auparavant, les oxydes de perovskite ABO_3 ont reçu beaucoup d'attention en raison de la grande variété de propriétés physiques et des fonctionnalités fascinantes telles que la piézoélectricité, la ferroélectricité, la supraconductivité, la magnétorésistance colossale, multiferroïcité etc [195-200].

Dans ABO_3 perovskite, le site B peut être occupé par des divers métaux de transition magnétiques, le site A s'adapte généralement un métal alcalin non magnétique, alcalino-terreux et / ou cations de lanthanides. Par conséquent, la substitution chimique des sites A avec des ions magnétiques est actuellement moins étudiée. Ainsi, la substitution chimique (site A) avec des ions magnétiques est actuellement moins étudiée. Cependant, pour un site B ordonné $\text{DP A}_2\text{BB}'\text{O}_6$, si les trois-quarts des sites A sont substitués par un métal de transition A' , à la fois par un site A et B on obtient un quadruple perovskite ordonnée (QP) avec la formule générale $\text{AA}_3\text{B}_2\text{B}'_2\text{O}_{12}$ [201-205]. En conséquence, des multiples interactions électriques peuvent se produire entre les sites A, B et / ou B' , donnant lieu à une série de phénomènes physiques intéressants tels que le transfert des charges intersites, la disputation des charges et la rétro réflexion induite par le spin et le semi-métallicité [206-210].

Ce travail a été effectué à partir de la motivation offerte par l'opportunité d'étudier une grande variété d'états fondamentaux dans des quadruples pérovskites, et en supposant qu'une substitution dans la moitié des sites B par un autre élément B' pourrait améliorer les propriétés du composé parent. Ainsi, une simulation de Monte Carlo a été réalisée pour étudier la quadruple pérovskite $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$. Le modèle adopté est présenté dans la deuxième section. Dans la troisième section, une description de la méthode de simulation est proposée. La quatrième section est consacrée à la présentation et la discussion des résultats et la cinquième section est consacrée à la conclusion.

3.1.1 Modèle simulé:

La composé $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ est un oxyde magnétique qui appartient à des compositions de quadruple pérovskite et cristallise dans une structure cubique non déformée avec le groupe d'espace Pn-3 et des paramètres de maille $a = b = c = 7,523 \text{ \AA}$ [200]. La figure 3.3.1 montre les positions des atomes magnétiques "Cu, Fe et Os" et l'élément non magnétique "Ca" à l'intérieur d'une maille unitaire du système.

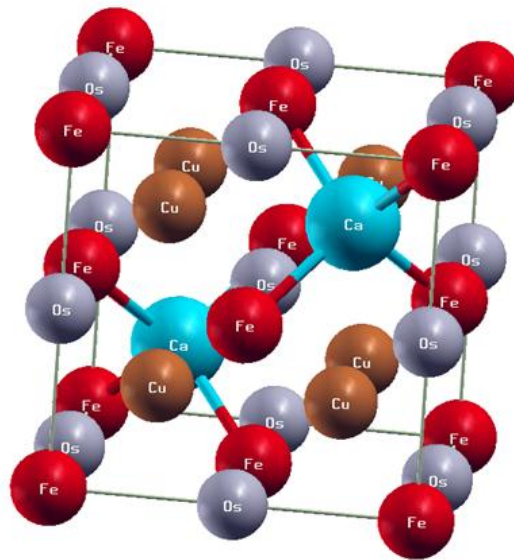


Figure 3.3.1: Croquis tridimensionnel montrant les positions des atomes magnétiques (Cu, Fe et Os) et le Ca non-magnétique à l'intérieur d'une maille du système.

Selon la structure cristalline du système, le modèle pourrait accueillir six interactions d'échange. La première est une interaction A'-B résultant du couplage entre Cu^{+2} dans les sites A' et Fe^{+3} dans les sites B, la seconde est une interaction A'-B' résultant du couplage Cu^{+2} dans les sites A' et Os^{+5} dans les sites B, le troisième est une interaction B-B' résultant du couplage Fe^{+3} dans les sites B et Os^{+5} dans les sites B', le quatrième est un A'-A' interaction résultant du couplage entre les mêmes ions Cu^{+2} dans les sites A', le cinquième est une interaction B-B résultant du couplage entre les mêmes ions Fe^{+3} dans les sites B, et le dernier est un B'-B' interaction résultant du couplage entre les mêmes ions Os^{+5} dans les sites B'. Le modèle pourrait également inclure l'énergie résultant du champ cristallin de chaque atome magnétique et l'énergie résultant de l'interaction avec un champ magnétique externe. Par conséquent, l'Hamiltonien du système est défini par:

H =

$$\begin{aligned}
 & -J_{\sigma q} \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i q_j - J_{\sigma s} \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i s_j - J_{qs} \sum_{\langle i,j \rangle} q_i s_j - J_{\sigma} \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i \sigma_j - J_q \sum_{\langle i,j \rangle} q_i q_j \\
 & -J_s \sum_{\langle i,j \rangle} s_i s_j - \Delta_{\sigma} \sum_{\langle i,j \rangle} (\sigma_i)^2 - \Delta_q \sum_{\langle i,j \rangle} (q_i)^2 - \Delta_s \sum_{\langle i,j \rangle} (s_i)^2 - h(\sum_i \sigma_i + \sum_i q_i + \sum_i s_i)
 \end{aligned}
 \tag{3.3.1}$$

Avec σ, q et s représente de Cu, Fe et Os " $\text{Cu}^{+2}(\sigma = \pm 1/2), \text{Fe}^{+3}(q = \pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2), \text{Os}^{+5}(s = \pm 3/2, \pm 1/2)$ " , respectivement. $J_{\sigma q}$ désigne le couplage d'échange entre Cu + 2 et Fe + 3 ($J_{\text{Cu-Fe}}$) . $J_{\sigma s}$ désigne le couplage d'échange entre Cu^{+2} et Os^{+5} ($J_{\text{Cu-Os}}$). J_{qs} désigne le couplage d'échange entre Fe^{+3} et Os^{+5} ($J_{\text{Fe-Os}}$). J_{σ} désigne le couplage d'échange entre les ions Cu^{+2} ($J_{\text{Cu-Cu}}$). J_q désigne le couplage d'échange entre les ions Fe^{+3} ($J_{\text{Fe-Fe}}$). J_s désigne le couplage d'échange entre les ions Os^{+5} ($J_{\text{Os-Os}}$). $\Delta_{\sigma}, \Delta_q$ et Δ_s Représentent des champs de cristal de Cu, Fe et Os, respectivement. h désigne un champ magnétique externe.

3.3.2 Méthode de simulation:

Pour simuler le comportement magnétique de ce système complexe, la méthode SMC a été réalisé et combiné avec un algorithme de Métropolis. Le système a été conçu dans le programme de simulation comme un volume cubique $L_B = 64$, qui reste supérieur à la limite thermodynamique déterminée à $L_{\text{ThL}}=28$ pour cette classe de matériaux [38, 42]. Une méthode d'échantillonnage standard a été employée pour traiter l'hamiltonien dans équation 3.3.1.

La configuration initiale a été générée aléatoirement d'une manière telle que les spins Cu sont localisés de manière aléatoire dans les sites sous-réseaux de Cu, les spins Fe sont localisés de façon aléatoire dans les sites de sous-réseaux Fe, et les spins Os sont localisés aléatoirement dans les sites de sous-réseaux Os. Le programme de simulation a été construit de manière à considérer les conditions aux limites cycliques. A chaque étape de SMC, tous les sites du système sont traversés séquentiellement et des tentatives de retournement à spin unique sont effectuées. Un algorithme Métropolis a été inclus dans le programme pour aider à décider de l'acceptation ou du rejet des bascules à spin unique. La simulation a récupéré les données à partir de $3 \cdot 10^6$ étapes de SMC, où les premières étapes de $1.8 \cdot 10^5$ ont été utilisées pour atteindre l'équilibre. À l'équilibre, les moyennes des grandeurs physiques suivantes ont été calculées:

Aimantations partielles:

$$m_{\sigma} = \frac{1}{N_{Cu}} < \sum_i \sigma_i > \quad (3.3.2)$$

$$m_q = \frac{1}{N_{Fe}} < \sum_i q_i > \quad (3.3.3)$$

$$m_s = \frac{1}{N_{Os}} < \sum_i s_i > \quad (3.3.4)$$

Avec m_{σ} , m_q , et m_s sont les aimantations des sous-réseaux Cu, Fe et Os, respectivement. N_{Cu} , N_{Fe} , et N_{Os} dénote le nombre d'ions dans chaque sous-réseau.

Aimantation totale:

$$m_{Total} = \frac{N_{Cu}m_{\sigma} + N_{Os}m_s + N_{Fe}m_{Fe}}{N_{Cu} + N_{Fe} + N_{Os}} \quad (3.3.5)$$

Susceptibilité magnétiques partielles:

$$\chi_{\sigma} = \beta(< m_{\sigma}^2 > - < m_{\sigma} >^2) \quad (3.3.6)$$

$$\chi_q = \beta(< m_q^2 > - < m_q >^2) \quad (3.3.7)$$

$$\chi_s = \beta(< m_s^2 > - < m_s >^2) \quad (3.3.8)$$

Avec χ_{σ} , χ_q , et χ_s sont les susceptibilités magnétiques des sous-réseau Cu, Fe et Os, respectivement. $\beta = 1/TK_B$, avec K_B est la constante de Boltzmann et T la température du système.

Résultats et discussion

Tous les paramètres utilisés pendant la simulation sont réduits au couplage d'échange J_{Cu-Os} . Des couplages de super-échange, qui couplent des ions d'espèces différentes, ont été obtenus à partir de la référence [200], $J_{Cu-Os} = 38\text{meV}$, $J_{Fe-Os} = 32.8\text{meV}$, et $J_{Fe-Os} = 9.19\text{meV}$. Couplages à double échange, qui couplent des ions de la même espèce (J_{Cu-Cu} , J_{Fe-Fe} , et J_{Os-Os} , ont été pris très petit (0.1meV) puisque la distance entre eux est grande et ainsi ils pourraient même être négligés. Dans ce qui suit, les paramètres réduits suivants: r_1 , r_2 , r_3 , r_4 , r_5 , d_{Cu} , d_{Fe} , d_{Os} , T_r , t_c , et h_r représenter J_{Cu-Fe}/J_{Cu-Os} , J_{Fe-Os}/J_{Cu-Os} , J_{Cu-Cu}/J_{Cu-Os} , J_{Fe-Fe}/J_{Cu-Os} ,

J_{Os-Os}/J_{Cu-Os} , Δ_{Cu}/J_{Cu-Os} , Δ_{Fe}/J_{Cu-Os} , Δ_{Os}/J_{Cu-Os} , T/J_{Cu-Os} , T_C/J_{Cu-Os} , et h/J_{Cu-Os} , respectivement.

L'objectif de l'établissement des diagrammes de phase de l'état fondamental est d'évaluer l'impact des interactions d'échange et des champs cristallins sur la détermination des phases stables à l'état fondamental. En effet, la détermination de ces diagrammes doit être effectuée dans un champ magnétique externe nul ($h_r = 0$). En outre; il est également intéressant d'étudier l'impact des champs du cristal uniquement sur la détermination des états stables à l'état fondamental pour un champ magnétique nul ($h_r = 0$). Dans la figure 3.3.2 (a), pour les paramètres réduits r_1 et r_2 allant de -17,5 à 17,5 et des champs de cristal réduits $d_{Fe} = d_{Os} = 0$, les seules phases stables sont : $(-5/2, 3/2, -1/2)$, $(5/2, 3/2, 1/2)$, $(5/2, -1/2, 1/2)$, et $(5/2, -3/2, 1/2)$.

Dans la figure 3.3.2 (b), pour le domaine cristallin allant de -20 à 20 et un paramètre réduit allant de -30 à 30 les seuls sept états stables qui ont été trouvés sont : $(5/2, 1/2, -1/2)$, $(5/2, 3/2, -1/2)$, $(5/2, -1/2, -1/2)$, $(1/2, 1/2, 1/2)$, $(5/2, 1/2, 1/2)$ et $(5/2, 3/2, 1/2)$.

Dans un domaine incluant les champs cristallins, la figure 3.3.2 (c) montre cinq états stables sont : $(5/2, 3/2, -1/2)$, $(5/2, 1/2, -1/2)$, $(5/2, -1/2, -1/2)$, $(5/2, 1/2, 1/2)$ et $(5/2, 3/2, 1/2)$. Dans la figure 3.3.2 (d), nous avons trouvé que, les quatre seuls états stables sont: $(5/2, -3/2, 1/2)$, $(1/2, -3/2, 1/2)$, $(5/2, 3/2, 1/2)$ et $(1/2, 3/2, 1/2)$. Alors que dans la figure 3.3.2 (e) les six phases stables qui ont été trouvées sont: $(5/2, 3/2, -1/2)$, $(3/2, 3/2, -1/2)$, $(1/2, 3/2, -1/2)$, $(1/2, 3/2, 1/2)$, $(3/2, 3/2, 1/2)$ et $(5/2, 3/2, 1/2)$.

Dans la figure 3.3.2 (f), les huit phases stables qui ont été trouvées sont: $(1/2, 1/2, 1/2)$, $(-1/2, 1/2, 1/2)$, $(1/2, -1/2, 1/2)$, $(1/2, 1/2, -1/2)$, $(5/2, -1/2, 1/2)$, $(5/2, 1/2, 1/2)$ et $(5/2, 3/2, 1/2)$.

Nous avons trouvé que la phase stable pour notre système était la phase ferromagnétique $(5/2, 1/2, 1/2)$. Dans le tableau 3.3.2, toutes les autres phases stables du système sont présentées.

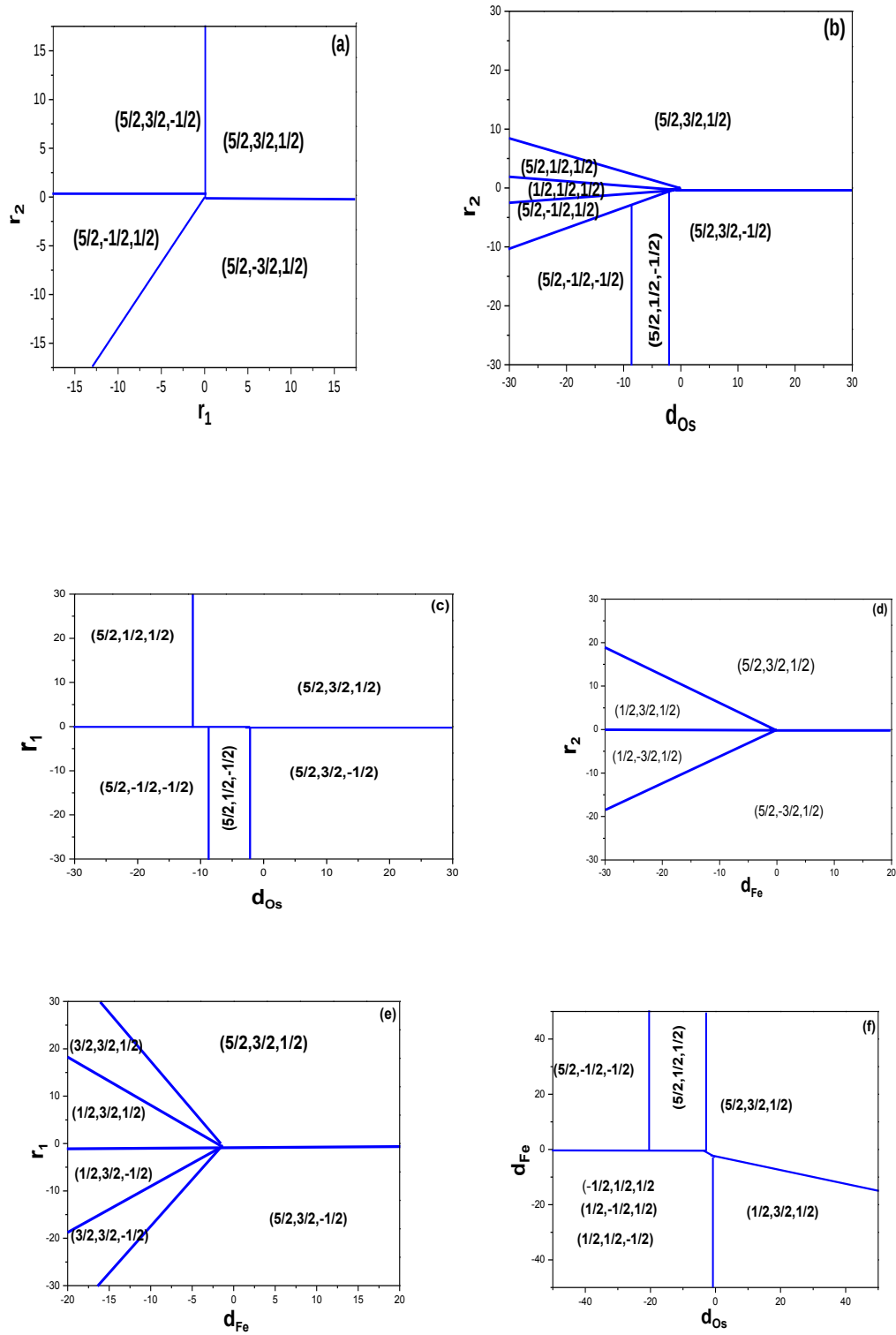


Figure 3.3.2: diagrammes de phase de l'état fondamental de la quadruple pérovskite $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ pour les valeurs réduites $r_3 = r_4 = r_5 = 0.1$, $d_{\text{Os}} = d_{\text{Fe}}$, $d_{\text{Cu}} = 0$, et $h_r = 0$, (a) dans le domaine (r_1, r_2) , (b) dans le domaine (d_{Os}, r_2) , (c) dans le

domaine (d_{Os}, r_1), (d) dans le domaine (d_{Fe}, r_2), (e) dans le domaine (d_{Fe}, r_1), et (f) dans le domaine (d_{Os}, d_{Fe}).

Les diagrammes de phase ont été établis en l'absence de toute considération thermique, tandis que les propriétés magnétiques ont été étudiées sous des perturbations thermiques, qui seront présentées et discutées dans les paragraphes suivants.

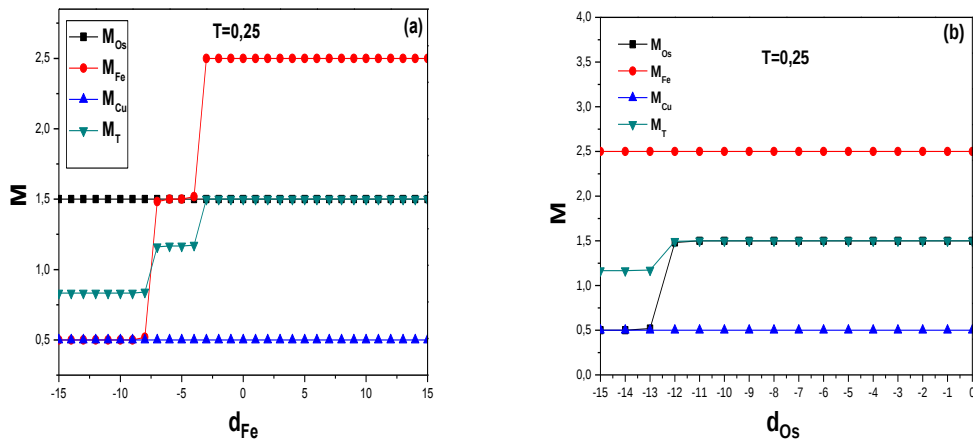


Figure 3.3.3: Magnétisations partielles et totale pour champ magnétique nul $h = 0$ (a) en fonction du champ cristallin réduit de Fe d_{Fe} pour le champ cristallin réduit de Os $d_{Os} = 0$, (b) en fonction de d_{Os} pour $d_{Fe} = 0$, et (c) en fonction de d_{Os} pour valeurs nulles de d_{Fe} , et M_{Cu} , M_{Fe} et M_{Os} représentent l'aimantation partielle de Cu, Fe et Os, respectivement. M_T représente l'aimantation totale.

L'impact de différents champs cristallins de Fe et d'Os sur le comportement des aimantations partielles et totale est illustré sur les figures 3.3.3 (a) et 3.3.3 (b). Une analyse numérique a été effectuée sur une large gamme de valeurs de champs cristallins et a montré qu'une variation significative dans le comportement des aimantations est observée pour une valeur nulle en cas de variation (figures 3.3.3 (a)) et (figures 3.3.3(b)).

La fixation de d_{Os} à 0 et en variant d_{Fe} sur la figure 3.3.3 (a) montre deux gouttes consécutives de l'aimantation partielle de Fe évoquant deux transitions de phase du premier ordre. L'apparition de cette baisse de l'aimantation totale est moins significative car il existe une forte corrélation entre les trois sous-couches. La fixation de d_{Fe} à 0 et variant d_{Os} comme dans la figure 3.3.3 (b) montre également une chute

de l'aimantation partielle de Os évoquant une transition de phase du premier ordre, mais cette fois l'aimantation totale M_T a une chute à faible pente. Le mécanisme de compensation entre les sous-réseaux magnétiques a réduit l'apparition de cette forte baisse de l'aimantation totale.

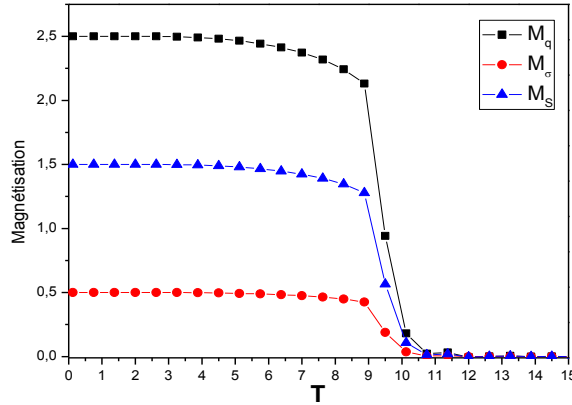


Figure 3.3.4: Dépendance thermique des aimantations partielles des trois sous-réseaux magnétiques Cu, Fe et Os pour les champs magnétiques et cristallins nuls.

La dépendance thermique des aimantations partielles est représentée sur la figure 3.3.4 pour les champs magnétiques et cristallins zéro. Comme prévu, grâce à un couplage ferromagnétique entre Cu dans les sites A' et Fe-Os dans les sites B-B', les aimantations de Cu, Fe et Os partent d'une valeur positive ($1/2$, $3/2$, et $5/2$ respectivement), et déclinent pour disparaître à la température de transition de phase du second ordre.

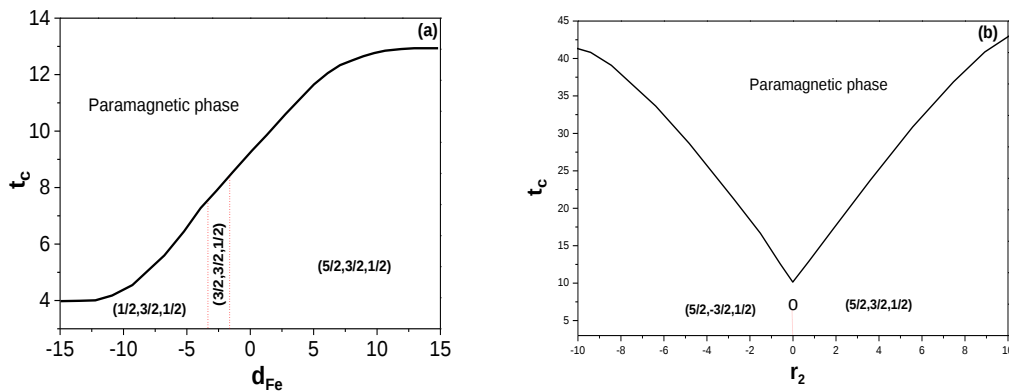
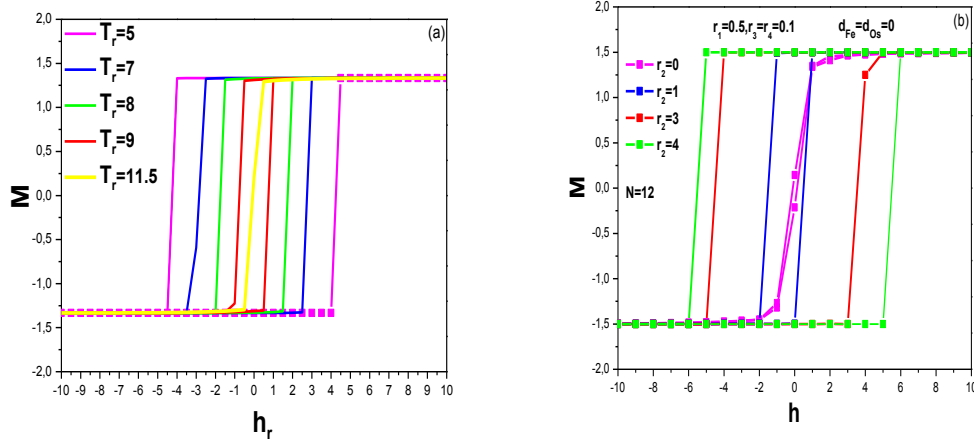


Figure 3.3.5: diagrammes de phase pour le champ magnétique nul, (a) en fonction du champ cristallin réduit. (b) en fonction du couplage réduit pour les champs cristallins réduits nulles.

La figure 3.3.5 montre les diagrammes de phase pour le champ magnétique nul, en fonction du champ cristallin réduit (la figure 3.3.5 (a)) et en fonction du couplage réduit pour les champs cristallins réduits nuls (la figure 3.3.5 (b)). Plusieurs transitions de phase sont mises en évidence dans cette figure. Une transition de phase du second ordre est représentée sur la figure 3.3.5 (a) dans la ligne séparant la zone paramagnétique au-dessus de la ligne et les phases magnétiques ci-dessous. Deux transitions de phase du premier ordre ont été trouvées séparant consécutivement les phases $(1/2, 3/2, 1/2)$, $(3/2, 3/2, 1/2)$ et $(5/2, 3/2, 1/2)$, ce qui concorde étroitement avec les résultats de la figure 3.3.2 (e). Dans la figure 3.3.5 (b), une transition de phase de second ordre a également été trouvée dans la ligne séparant les phases paramagnétique et magnétique. Trois transitions de premier ordre ont été trouvées consécutivement entre les états $(5/2, -3/2, 1/2)$, et $(5/2, 3/2, 1/2)$, ce qui concorde étroitement avec les résultats trouvés à l'état fondamental dans les figures 3.3.2 (d) et 3.3.2 (c), de plus, à basse température (figure 3.3.5 (b)), une ligne de transition de premier ordre (ligne rouge en pointillés) qui se termine en un point critique isolé ($r_2=0, T_C=5.25$) apparaît entre les deux phases ordonnées. Ces deux phases ordonnées sont séparées de la phase paramagnétique par une ligne de transition de second ordre (ligne noire continue). Le point critique isolé est représenté par un minuscule cercle.



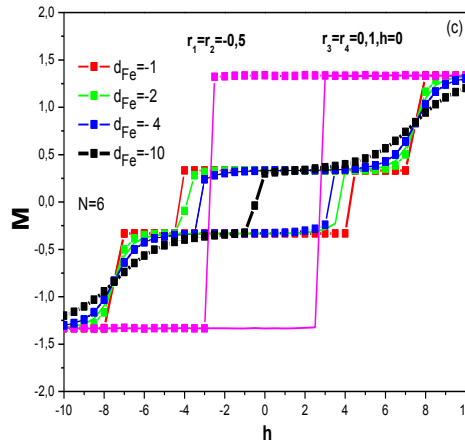


Figure 3.3.6: Magnétisation par rapport aux boucles de champ magnétique. (a) pour plusieurs températures réduites allant de 5 à 10, pour des champs cristallins réduits fixes (b) pour des valeurs différentes pour l'interaction d'échange réduite r_2 de 0 à 4 et $N = 12$. (c) pour différentes valeurs du cristal réduit champ d_{Fe} de -10 à 0 et $N = 6$.

Les figures 3.3.6 montrent le cycle d'hystérésis. Sur la figure 3.3.6 (a), la magnétisation est tracée en fonction du champ magnétique réduit pour plusieurs températures réduites allant de 5 à 10, pour des champs cristallins réduits fixes. Augmenter la température réduite conduit à une régression de la boucle d'hystérésis jusqu'à la disparition de la boucle à $T_C=10$. Deux grandeurs magnétiques importantes sont marquées par la boucle d'hystérésis: le champ coercitif et la saturation magnétique. Champ coercitif ou force coercitive, mesure de la capacité d'un matériau ferromagnétique à résister à un champ magnétique externe sans se démagnétiser, tandis que la saturation magnétique est l'état d'aimantation atteint lorsqu'une augmentation du champ magnétique externe appliqué ne peut pas augmenter l'aimantation du matériau. La figure 3.3.6a indique que le champ coercitif diminue avec l'augmentation de la perturbation thermique, alors que la saturation magnétique reste assez stable. Les figures 3.3.6b et 3.3.6c montrent que le champ coercitif augmente avec l'augmentation de l'interaction d'échange r_2 et du champ cristallin d_{Fe} .

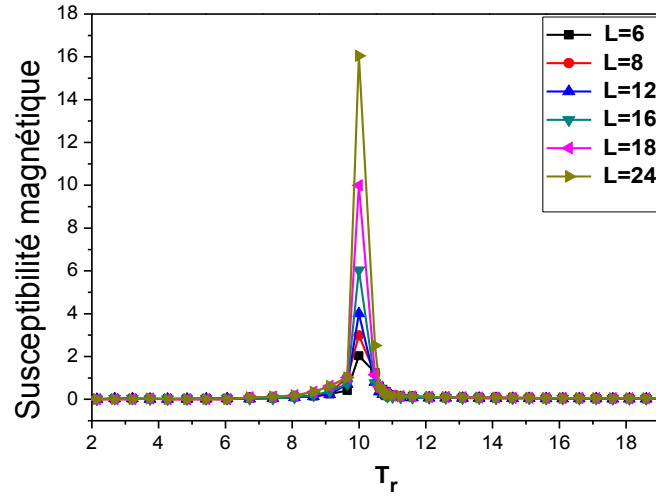


Figure 3.3.7: Susceptibilité magnétique par rapport à la température réduite pour plusieurs tailles allant de 4 à 24.

L'effet de la taille a été étudié et illustré sur la figure 3.3.7 pour des tailles allant de 4 à 24 pour un champ magnétique nul et des champs de cristal réduits. Comme on le voit sur la figure 3.3.4, les aimantations partielles sont représentées dans des courbes continues, et ainsi la transition de phase qui décrit à est de second ordre, ce qui concorde avec les résultats de la figure 3.3.7 qui montrent les courbes de susceptibilité magnétique sous la forme d'une distribution gaussienne spécifique aux transitions de phase de second ordre avec des pics coïncidant avec $T_c=10$. La taille du système n'affecte pas la température de transition mais a un impact sur l'amplitude des fluctuations, que l'on peut voir sur la figure 3.3.7, l'augmentation de la taille du système provoque une augmentation des amplitudes du pic. Les exposants critiques ont été étudiés en utilisant les fonctions d'échelle de taille finie bien connues [211]. Les dérivées dans les équations ont été calculées pour différentes tailles du système (allant de 4 à 24) en fonction de la température.

Les dérivées de l'aimantation M par rapport à $(\frac{1}{k_B T})$ sont données comme:

$$\frac{d\langle m \rangle}{d(\frac{1}{k_B T})} = N(\langle me \rangle - \langle m \rangle \langle e \rangle), \quad (3.3.9)$$

$$\frac{d(\ln \langle m \rangle)}{d(\frac{1}{k_B T})} = N \left(\frac{\langle me \rangle}{\langle m \rangle} - \langle e \rangle \right). \quad (3.3.10)$$

Où k_B est la constante de Boltzmann, $e = \frac{E}{N}$ est le nombre total de tous les spins dans le système et est l'énergie interne par site. $\frac{d\langle m \rangle}{d(\frac{1}{k_B T})}$ Le logarithme des maxima de la quantité $\frac{d(\ln\langle m \rangle)}{d(\frac{1}{k_B T})}$ par rapport à $\log(L)$ a été tracée, et donc l'exposant critique ν a été calculé à partir de la pente de l'ajustement linéaire en utilisant la valeur de $(1 - \frac{\beta}{\nu})$. De même, le logarithme des maxima de la quantité $\log(x_{\max})$ par rapport à $\log(L)$ a été tracé, et donc l'exposant critique γ a été calculé à partir de la pente de l'ajustement linéaire en utilisant la valeur de γ/ν . Les résultats récupérés montrent des valeurs proches des valeurs du modèle d'Ising tridimensionnel.

Exposants critique	β	γ	ν
$\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$	0.3	1.5	0.5
3Dmodèle d' Ising	0.3	1.2	0.6

Tableau 3.3.1: Tableau comparatif des exposants critiques récupérés par SMC dans l'oxyde de quadruple pérovskite $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ et le modèle d'Ising tridimensionnel.

	Fig.2a	Fig.2b	Fig.2c	Fig.2d	Fig.2e	Fig.2f
(5/2,3/2,1/2)	✓	✓	✓	✓	✓	✓
(5/2,3/2,-1/2)	✓	✓	✓		✓	
(5/2, 1/2,1/2)	✓	✓	✓			✓
(5/2,1/2,-1/2)		✓	✓			
(5/2,-1/2,1/2)		✓				
(5/2,-1/2,-1/2)		✓	✓			✓
(5/2,-3/2,1/2)	✓			✓		

(3/2,3/2,1/2)					✓	✓
(3/2,3/2,-1/2)					✓	✓
(3/2,1/2,1/2)						
(3/2,1/2,-1/2)						
(3/2,-1/2,1/2)						
(3/2,-1/2,-1/2)						
(3/2,-3/2,1/2)						
(3/2,-3/2,-1/2)						
(1/2,3/2,1/2)			✓		✓	✓
(1/2,3/2,-1/2)					✓	✓
(1/2,1/2,1/2)		✓				
(1/2,1/2,-1/2)						
(1/2,-1/2, 1/2)						
(1/2,-1/2,-1/2)						
(1/2,-3/2,1/2)			✓			
(1/2,-3/2,-1/2)						

Tableau 3.3.2 : Présentation de la cofiguration la plus stable.

3.3.3 Conclusion

Dans cet article, nous avons étudié les diagrammes de phase et les propriétés magnétiques de l'oxyde de pérovskite quadruple $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ en utilisant la technique de SMC. L'étude porte sur les premiers diagrammes de phases à l'état fondamental. Une grande variété de phases stables ont été trouvées dans les domaines (r_1, r_2) , (r_1, d_{Fe}) , (r_1, d_{Os}) , (r_2, d_{Fe}) et $(d_{\text{Fe}}, d_{\text{Os}})$. Ainsi, une grande variété de transitions de phase du premier ordre et du second ordre ont été observées, en étudiant l'évolution des aimantations partielles et totale par rapport aux différentes valeurs des

champs cristallins de Fe et Os, et dans les diagrammes de phase. L'étude du cycle d'hystérésis a révélé que l'élévation de la température réduite conduit à une régression de la boucle d'hystérésis jusqu'à la disparition de la boucle à température de Curie réduite $T_r = 10$. Le champ coercitif diminue avec l'augmentation de la perturbation thermique, alors que la saturation magnétique reste assez stable .

Accepted Manuscript

Phase diagrams and magnetic properties of $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ quadruple perovskite: Monte Carlo study

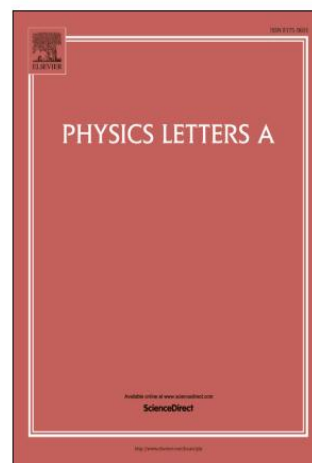
S. Sidi Ahmed, G. Dimitri Ngantso, L. Bahmad, A. Benyoussef, A. El Kenz

PII: S0375-9601(17)30876-9

DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.physleta.2017.09.025>

Reference: PLA 24738

To appear in: *Physics Letters A*



Conclusion général

Le travail développé dans cette thèse a été consacré à l'étude des propriétés magnétiques de famille des pérovskites par la simulation Monte Carlo, la méthode du champ effectif, champ moyen et calcul Ab-initio. Nous avons analysé les diagrammes de phases à l'état fondamental de cette famille des pérovskites en fonction des valeurs réduites, des champs cristallins et des couplages. Cette analyse nous a permis de trouver les différents types de diagrammes de phases. La simulation Monte Carlo nous a permis de montrer que lorsqu'on augmente les valeurs réduites des champs cristallins, la température de transition T_c augmente aussi. L'effet de taille a été étudié par la simulation Monte Carlo ainsi que les différents exposants critiques pour différentes types des pérovskites. Pour toutes les valeurs réduites des Δ , on note le même effet de taille.

Dans la première contribution:

En utilisant la méthode Ab initio, les couplages d'échange et l'anisotropie magnétique de perovskite simple YCrO_3 ont été calculés ; la direction 110 a été trouvée et nous a confirmé que la direction magnétique est facile. Afin d'étudier les comportements magnétiques avec des simulations de Monte Carlo, les calculs des exposants critiques ont confirmé que la perovskite YCrO_3 appartient à la classe d'universalité du modèle Heisenberg 3D.

Dans la deuxième contribution :

Nous avons utilisé la simulation de Monte Carlo et les calculs Ab-initio pour étudier les propriétés magnétiques et électroniques de la double pérovskite $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$. Nous avons analysé les diagrammes de phase de l'état fondamental, et Nous avons calculée aussi le couplage entre des différents atomes magnétique, En utilisant la méthode d' Ab-initio nous avons étudié la structure électronique de la double pérovskite $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$.

Dans la troisième contribution :

nous avons étudié les diagrammes de phase et les propriétés magnétiques de l'oxyde de quadruple pérovskite $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Os}_2\text{O}_{12}$ En utilisant une technique SMC, une grande variété de transitions de phase du premier ordre et du second ordre ont été

Conclusion

observées. L'étude du cycle d'hystérésis a révélé que l'élévation de la température réduite conduit à une régression de la boucle d'hystérésis jusqu'à la disparition de la boucle à température de Curie réduite. Le champ coercitif diminue avec l'augmentation de la perturbation thermique, alors que la saturation magnétique reste assez stable.

Comme perspectives, et pour compléter nos travaux, d'autres propriétés telles que les propriétés électrique et optique pourraient être explorées par la méthode de l'Ab-initio.

Conclusion

Conclusion

Références

- [1] De Lacheisserie, Etienne du Tremolet, Damien Gignoux, and Michel Schlenker, eds. *Magnetism: II-Materials and Applications*. Springer Science & Business Media, 2012.
- [2] Purcell, Edward M., and David J. Morin. *Electricity and magnetism*. Cambridge University Press, 2013.
- [3] O'handley, Robert C. *Modern magnetic materials: principles and applications*. Wiley, 2000.
- [4] Lethuillier, Philippe. "Practical magnetism and instrumentation." *Magnetism*. Springer New York, 2005. 441-472.
- [5] Ahmed, S. Sidi, et al. "Mixed spin-1 and spin-1/2 Blume-Emery-Griffiths model on the Bethe lattice: Monte Carlo simulation." *Superlattices and Microstructures* 109 (2017): 841-851.
- [6] Slater, John C. "The current state of solid-state and molecular theory." *International Journal of Quantum Chemistry* 1.1 (1967): 37-102.
- [7] Spaldin, Nicola A. *Magnetic materials: fundamentals and applications*. Cambridge University Press, 2010.
- [8] Bird, John O. *Electrical circuit theory and technology*. Routledge, 2007.
- [9] Morrish, Allan H. *The physical principles of magnetism*. Vol. 74. New York: Wiley, 1965.
- [10] Koehler, W. C., et al. "Antiferromagnetism in chromium alloys. I. Neutron diffraction." *Physical Review* 151.2 (1966): 405.
- [11] Sanae, Zriouel. "Contributions to the Monte Carlo study of the magnetic properties of nanomaterials such as graphyne and graphone." *arXiv preprint arXiv:1603.06766* (2016).
- [12] Buttner, R. H., and E. N. Maslen. "Electron difference density and structural parameters in CaTiO₃." *Acta Crystallographica Section B: Structural Science* 48.5 (1992): 644-649.

- [13] Tomioka, Yasuhide, et al. "Magnetic and electronic properties of a single crystal of ordered double perovskite $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$." *Physical Review B* 61.1 (2000): 422.
- [14] Shimakawa, Yuichi, Masaki Azuma, and Noriya Ichikawa. "Multiferroic compounds with double-perovskite structures." *Materials* 4.1 (2011): 153-168.
- [15] Ray, Rajyavardhan, et al. "Effects of octahedral tilting on the electronic structure and optical properties of double perovskites A_2ScSbO_6 (A= Sr, Ca) preprint arXiv:1310.4853 (2013).
- [16] Jurca, Ciprian Bogdan. Synthèse et caractérisation de pérovskites doubles magnéto-résistives dérivées de $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. Diss. Université Paris Sud-Paris XI, 2004.
- [17] Tokura, Y. "Y. Tokura and N. Nagaosa, *Science* 288, 462 (2000)." *Science* 288 (2000): 462.
- [18] Kobayashi, K-I., et al. "Room-temperature magnetoresistance in an oxide material with an ordered double-perovskite structure." *Nature* 395.6703 (1998): 677.
- [19] Philipp, J. B., et al. "Structural and doping effects in the half-metallic double perovskite $\text{A}_2\text{CrW}_6\text{O}$ (A= Sr, Ba, and Ca)." *Physical Review B* 68.14 (2003): 144431.
- [20] Aligia, A.A., et al. "Metal-insulator transition in the double perovskites." *Physical Review B* 64.9 (2001): 092414.
- [21] Laguna-Marco, M. A., et al. "Electronic structure, local magnetism, and spin-orbit effects of Ir (IV)-, Ir (V)-, and Ir (VI)-based compounds." *Physical Review B* 91.21 (2015): 214433.
- [22] Ramesh, Ramaroorthy, and Nicola A. Spaldin. "Multiferroics: progress and prospects in thin films." *Nature materials* 6.1 (2007): 21.
- [23] Mandal, Tapas Kumar, et al. "Magnetic and electronic properties of double perovskites and estimation of their curie temperatures by ab initio calculations." *Physical Review B* 78.13 (2008): 134431.
- [24] Mullica, D. F., et al. "Structure of dichromate-type lead pyrophosphate, $\text{Pb}_2\text{P}_2\text{O}_7$." *Journal of Solid State Chemistry* 62.3 (1986): 371-376.
- [25] Woodward, Patrick M. "Octahedral tilting in perovskites. I. Geometrical considerations." *Acta Crystallographica Section B: Structural Science* 53.1 (1997): 32-43.

- [26] Rogado, Nyrisa S., et al. "Magnetocapacitance and magnetoresistance near room temperature in a ferromagnetic semiconductor: $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$." *Advanced Materials* 17.18 (2005): 2225-2227.
- [27] Liu, Yeru, et al. "Cobalt redox mediators for ruthenium-based dye-sensitized solar cells: a combined impedance spectroscopy and near-IR transmittance study." *The Journal of Physical Chemistry C* 115.38 (2011): 18847-18855.
- [28] Zhao, Xiaolin, et al. "Ferroelectric control of magnetism in P (VDF–TrFE)/Co heterostructure." *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 26.10 (2015): 7502-7506.
- [29] Bednorz, J. George, and K. Alex Müller. "Possible highT c superconductivity in the Ba–La–Cu–O system." *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter* 64.2 (1986): 189-193.
- [30] Moritomo, Y., et al. "Metal-insulator transition induced by a spin-state transition in $\text{TbBaCo}_2\text{O}^{5+\delta}$ ($\delta=0.5$)." *Physical Review B* 61.20 (2000): R13325.
- [31] Cheng, Jinguang, et al. "Charge disproportionation and the pressure-induced insulator–metal transition in cubic perovskite PbCrO_3 ." *Proceedings of the National Academy of Sciences* 112.6 (2015): 1670-1674.
- [32] Attfield, J. Paul. "Charge ordering in transition metal oxides." *Solid state sciences* 8.8 (2006): 861-867.
- [33] El Rhazouani, O., et al. "Monte Carlo Simulation investigation of the diluted Double Perovskite $\text{Sr}_2\text{CrRe}_x\text{Os}_{1-x}\text{O}_6$." *Computational Condensed Matter* 8 (2016): 1-6.
- [34] Brown, Ian David. "Recent developments in the methods and applications of the bond valence model." *Chemical Reviews* 109.12 (2009): 6858-6919.
- [35] Chen, Wei-tin, et al. "A half-metallic A-and B-site-ordered quadruple perovskite oxide $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Re}_2\text{O}_{12}$ with large magnetization and a high transition temperature." *Nature Communications* 5 (2014): 3909.
- [36] Hansen, Thomas C., et al. "The D20 instrument at the ILL: a versatile high-intensity two-axis neutron diffractometer." *Measurement Science and Technology* 19.3 (2008): 034001.
- [37] Zhou, J-S., et al. "Identification of electronic state in perovskite CaCrO_3 by high-pressure studies." *Physical Review B* 92.14 (2015): 144421.

- [38] El Rhazouani, O., et al. "Exchange couplings calculation in the Double Perovskite Sr_2CrWO_6 ." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 476 (2017): 38-42.
- [39] Byeon, Song-Ho, et al. "New ferrimagnetic oxide $\text{CaCu}_3\text{Cr}_2\text{Sb}_2\text{O}_{12}$: high-pressure synthesis, structure, and magnetic properties." *Chemistry of materials* 17.13 (2005): 3552-3557.
- [40] García-Martín, Susana, et al. "Crystal Structures at Atomic Resolution of the Perovskite-Related GdBaMnFeO_5 and Its Oxidized GdBaMnFeO_6 ." *Inorganic chemistry* 56.3 (2017): 1412-1417.
- [41] Shimakawa, Yuichi. "A-site-ordered perovskites with intriguing physical properties." *Inorganic chemistry* 47.19 (2008): 8562-8570.
- [42] Mizumaki, M., et al. "Orbital Hybridization and Magnetic Coupling of the A-Site Cu Spins in $\text{CaCu}_3\text{B}_4\text{O}_{12}$ (B= Ti, Ge, and Sn) Perovskites." *Inorganic chemistry* 48.8 (2009): 3499-3501.
- [43] Shiraki, H., et al. "Ferromagnetic cuprates $\text{CaCu}_3\text{Ge}_4\text{O}_{12}$ and $\text{CaCu}_3\text{Sn}_4\text{O}_{12}$ with A-site ordered perovskite structure." *Physical Review B* 76.14 (2007): 140403.
- [44] Shimakawa, Yuichi, Hiroshi Shiraki, and Takashi Saito. "Unusual ferromagnetic-to-antiferromagnetic-to-ferromagnetic transitions in Cu^{2+} ($S=1/2$) cubic spin lattice of A-site ordered perovskites." *Journal of the Physical Society of Japan* 77.11 (2008): 113702.
- [45] Zeng, Z., et al. "Large low-field magnetoresistance in perovskite-type $\text{CaCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$ without double exchange." *Physical review letters* 82.15 (1999): 3164.
- [46] Alonso, J. A., et al. "Enhanced magnetoresistance in the complex perovskite $\text{LaCu}_3\text{Mn}_4\text{O}_{12}$." *Applied physics letters* 83.13 (2003): 2623-2625.
- [47] Byeon, Song-Ho, et al. "New ferrimagnetic oxide $\text{CaCu}_3\text{Cr}_2\text{Sb}_2\text{O}_{12}$: high-pressure synthesis, structure, and magnetic properties." *Chemistry of materials* 17.13 (2005): 3552-3557.
- [48] Subramanian, M. A., et al. "Valence degeneracy in $\text{CaCu}_3\text{Cr}_4\text{O}_{12}$." *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 64.9-10 (2003): 1569-1571.
- [49] Byeon, Song-Ho, et al. "High-pressure synthesis of metallic perovskite ruthenate $\text{CaCu}_3\text{Ga}_2\text{Ru}_2\text{O}_{12}$." *Chemistry of materials* 16.19 (2004): 3697-3701.
- [50] Xiang, H. P., et al. "Magnetic and electronic properties of $\text{CaCu}_3\text{Cr}_4\text{O}_{12}$ and $\text{CaCu}_3\text{Cr}_2\text{Sb}_2\text{O}_{12}$ by first-principles density functional calculation." *Inorganic chemistry* 46.23 (2007): 9575-9583.

- [51] Byeon, Song-Ho, et al. "New ferrimagnetic oxide $\text{CaCu}_3\text{Cr}_2\text{Sb}_2\text{O}_{12}$: high-pressure synthesis, structure, and magnetic properties." *Chemistry of materials* 17.13 (2005): 3552-3557.
- [52] Xiang, Hongping, et al. "Ferrimagnetic and semiconducting $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Sb}_2\text{O}_{12}$ by first principles." *Computational Materials Science* 46.2 (2009): 307-309.
- [53] Boehme, Christoph. "Organic spintronics: Window of opportunity." *Nature Physics* 13.10 (2017): 928.
- [54] Riminucci, Alberto. "Organic Spintronic Devices: Transport Regimes and Applications to Neuromorphic Computing." *CONFERENZA DI DIPARTIMENTO* 2017. 2017.
- [55] Manzetti, Sergio, and Francesco Enrichi. "State-of-the-art developments in metal and carbon-based semiconducting nanomaterials: applications and functions in spintronics, nanophotonics, and nanomagnetism." *Advances in Manufacturing* 5.2 (2017): 105-119.
- [56] Tamulis, Arvydas, et al. "Spintronic characteristics of self-assembled neurotransmitter acetylcholine molecular complexes enable quantum information processing in neural networks and brain." *Chemical Physics Letters* 660 (2016): 189-198.
- [57] Pincelli, T., et al. "Quantifying the critical thickness of electron hybridization in spintronics materials." *Nature Communications* 8 (2017): 16051.
- [58] Pappas, Ilias O., et al. "Fuzzy-Set Analysis to Understand User Experience in Mobile Applications." (2017).
- [59] Chen, Peng-Jen, Tay-Rong Chang, and Horng-Tay Jeng. "Ab initio study of the PbTaSe_2 -related superconducting topological metals." *Physical Review B* 94.16 (2016): 165148.
- [60] Naylor, B. F., and O. A. Cook. "High-Temperature Heat Contents of the Metatitanates of Calcium, Iron and Magnesium1." *Journal of the American Chemical Society* 68.6 (1946): 1003-1005.
- [61] Wang, Yanbin, and Robert C. Liebermann. "Electron microscopy study of domain structure due to phase transitions in natural perovskite." *Physics and Chemistry of Minerals* 20.3 (1993): 147-158.

- [62] Mitchell, R. H., A. R. Chakhmouradian, and P. M. Woodward. "Crystal chemistry of perovskite-type compounds in the tausonite-loparite series,(Sr 1– 2 x Na x La x) TiO 3." *Physics and Chemistry of Minerals* 27.8 (2000): 583-589.
- [63] Goldschmidt, Victor Moritz. "Die gesetze der krystallochemie." *Naturwissenschaften* 14.21 (1926): 477-485.
- [64] Lufaso, Michael W., and Patrick M. Woodward. "Prediction of the crystal structures of perovskites using the software program SPuDS." *Acta Crystallographica Section B: Structural Science* 57.6 (2001): 725-738.
- [65] TOMIOKA, Y., and Y. TOKURA. "8. Metal-Insulator Phenomena Relevant to Charge/Orbital-Ordering in Perovskite-Type Manganese Oxides." *Colossal Magnetoresistive Oxides* (2000): 281.
- [66] Mao, Yuanbing, Hongjun Zhou, and Stanislaus S. Wong. "Synthesis, properties and applications of perovskite phase metal oxide nanostructures." *Materials Matters* 5.2 (2010): 50.
- [67] Newman, M. E. J., and G. T. Barkema. *Monte Carlo Methods in Statistical Physics* chapter 1-4. Oxford University Press: New York, USA, 1999.
- [68] Gogolin, Christian, and Jens Eisert. "Equilibration, thermalisation, and the emergence of statistical mechanics in closed quantum systems." *Reports on Progress in Physics* 79.5 (2016): 056001.
- [69] Blundell, Stephen J., and Katherine M. Blundell. *Concepts in thermal physics*. OUP Oxford, 2009.
- [70] Jedrzejewski, Franck. *Modeles aleatoires et physique probabiliste*. Springer Science & Business Media, 2009.
- [71] Hashimoto, N., et al. "Switching Phenomena between Laminar and Turbulent Flows of Superfluid 4He Generated by a Vibrating Wire." *Journal of Low Temperature Physics* 148.3-4 (2007): 299-303.
- [72] Coey, John MD. *Magnetism and magnetic materials*. Cambridge University Press, 2010.
- [73] Stancil, Daniel D. *Theory of magnetostatic waves*. Springer Science & Business Media, 2012.
- [74] Geckeler, Kurt E., and Hiroyuki Nishide, eds. *Advanced nanomaterials*. John Wiley & Sons, 2009.
- [75] Case, David A., et al. "The Amber biomolecular simulation programs." *Journal of computational chemistry* 26.16 (2005): 1668-1688.

- [76] Bigot, Jean-Yves, et al. *Ultrafast Magnetism I*. Springer International Pu, 2016.
- [77] Goldman, Alex. *Modern ferrite technology*. Springer Science & Business Media, 2006.
- [78] Greiner, Walter, Ludwig Neise, and Horst Stöcker. *Thermodynamics and statistical mechanics*. Springer Science & Business Media, 2012.
- [79] Le Bellac, Michel. *Quantum and statistical field theory*. 1991.
- [80] Mandal, S. K., et al. "Nanostructures of sr²⁺ doped BiFeO₃ multifunctional ceramics with tunable photoluminescence and magnetic properties." *Journal of Physics: Condensed Matter* 25.5 (2013): 055303.
- [81] Falk, Harold. "Inequalities of JW Gibbs." *American Journal of Physics* 38.7 (1970): 858-869.
- [82] Chakhmakhchyan, Levon. *Entangled states and coherent interaction in resonant media*. Diss. Université de Bourgogne, 2014.
- [83] Hadjiagapiou, Ioannis A., A. Malakis, and S. S. Martinos. "Monte Carlo analysis of critical properties of the two-dimensional randomly site-diluted Ising model via Wang–Landau algorithm." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 387.10 (2008): 2256-2266.
- [84] Hadjiagapiou, Ioannis A. "Monte Carlo analysis of the critical properties of the two-dimensional randomly bond-diluted Ising model via Wang–Landau algorithm." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 390.7 (2011): 1279-1288.
- [85] Hui, Kenneth, and A. Nihat Berker. "Random-field mechanism in random-bond multicritical systems." *Physical review letters* 62.21 (1989): 2507.
- [86] Onsager, Lars. "Crystal statistics. I. A two-dimensional model with an order-disorder transition." *Physical Review* 65.3-4 (1944): 117.
- [87] Hadjiagapiou, Ioannis A., A. Malakis, and S. S. Martinos. "Monte Carlo analysis of critical properties of the two-dimensional randomly site-diluted Ising model via Wang–Landau algorithm." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 387.10 (2008): 2256-2266.
- [88] Berg, Bernd A. "Introduction to Markov chain Monte Carlo simulations and their statistical analysis." *Markov Chain Monte Carlo: Innovations and Applications* 7 (2005): 1-52.

- [89] Blume, M., V. J. Emery, and Robert B. Griffiths. "Ising model for the λ transition and phase separation in $\text{He}^3\text{-He}^4$ mixtures." *Physical review A* 4.3 (1971): 1071.
- [90] Canko, Osman, Ümit Temizer, and Mustafa Keskin. "Dynamic phase transition in the kinetic Blume-Emery-Griffiths model in an oscillating external field." *International Journal of Modern Physics C* 17.12 (2006): 1717-1737.
- [91] S. Krinsky et D. Furman, *Phys. Rev. B* 11 (1975) 2602.
- [92] Hoston, William, and A. Nihat Berker. "Dimensionality effects on the multicritical phase diagrams of the Blume–Emery–Griffiths model with repulsive biquadratic coupling: Mean-field and renormalization-group studies." *Journal of applied physics* 70.10 (1991): 6101-6103.
- [93] Born, Max, and Robert Oppenheimer. "Zur quantentheorie der molekeln." *Annalen der Physik* 389.20 (1927): 457-484.
- [94] Thomas, L. H. "Eine statistische method zur bestimmung einiger eigenschaften des atoms und ihre anwendung auf die theorie des periodischen systems der elemente." *Proc Cambridge Phil Soc.* Vol. 23. 1927.
- [95] Fermi, Enrico. "Un metodo statistico per la determinazione di alcune priorieta dell'atome." *Rend. Accad. Naz. Lincei* 6.602-607 (1927): 32.
- [96] Marsden, SS Antman JE, et al. *Interdisciplinary Applied Mathematics*. springer, 1993.
- [97] Kohn, Walter, and Lu Jeu Sham. "Self-consistent equations including exchange and correlation effects." *Physical review* 140.4A (1965): A1133.
- [98] Lardjane, Soumia. *Étude des propriétés structurales, électroniques et magnétiques du semi-conducteur magnétique dilué: ZnO dopé au cobalt*. Diss. Université de Technologie de Belfort-Montbéliard, 2013.
- [99] Perdew, John P. "Generalized gradient approximations for exchange and correlation: A look backward and forward." *Physica B: Condensed Matter* 172.1-2 (1991): 1-6.
- [100] Koepernik, Klaus, and Helmut Eschrig. "Full-potential nonorthogonal local-orbital minimum-basis band-structure scheme." *Physical Review B* 59.3 (1999): 1743.

- [101] Honmura, R., and T. Kaneyoshi. "Contribution to the new type of effective-field theory of the Ising model." *Journal of Physics C: Solid State Physics* 12.19 (1979): 3979.
- [102] Callen, H. Bo. "A note on Green functions and the Ising model." *Physics Letters* 4.3 (1963): 161.
- [103] Huang, Jinhua, et al. "Dynamic critical temperature in $\text{Mn}^{\text{II}}\text{Fe}^{\text{III}}$ bimetallic oxalates." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 479 (2017): 460-466.
- [104] Kaneyoshi, T. "Differential operator technique in the Ising spin systems." *ACTA PHYSICA POLONICA SERIES A* 83 (1993): 703-703.
- [105] Akıncı, Ümit. "Hysteresis behavior of the anisotropic quantum Heisenberg model." *Physics Letters A* 377.28-30 (2013): 1672-1676.
- [106] Kaneyoshi, T., J. W. Tucker, and M. Jaščur. "Differential operator technique for higher spin problems." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 186.3-4 (1992): 495-512.
- [107] Kobayashi, K-I., et al. "Room-temperature magnetoresistance in an oxide material with an ordered double-perovskite structure." *Nature* 395.6703 (1998): 677.
- [108] Binder, Kurt, et al. "Monte Carlo simulation in statistical physics." *Computers in Physics* 7.2 (1993): 156-157.
- [109] Weiße, Alexander, and Holger Fehske. "Chebyshev expansion techniques." *Computational many-particle physics*. Springer, Berlin, Heidelberg, 2008. 545-577.
- [110] Hammersley, J. M., and D. C. Handscomb. "Monte Carlo Methods. Methuen's monographs on applied probability and statistics." Methuen, London (1964).
- [111] Allen, Michael P., and Dominic J. Tildesley. *Computer simulation of liquids*. Oxford university press, 2017.
- [112] Trigg, G. L., et al. "Introduction to Mathematical Physics."
- [113] Albano, Ezequiel V., et al. "Numerical evidence of hyperscaling violation in wetting transitions of the random-bond Ising model in $d=2$ dimensions." *Physical Review E* 95.2 (2017): 022801.
- [114] Balibar, Françoise. *Einstein 1905: de l'éther aux quanta*. Presses universitaires de France, 1992.

- [115] Wang, Liping, and Richard J. Sadus. "Effect of three-body interactions on the vapor-liquid phase equilibria of binary fluid mixtures." *The Journal of chemical physics* 125.7 (2006): 074503.
- [116] Dong, Huafeng, et al. "Improving the optical absorption of BiFeO₃ for photovoltaic applications via uniaxial compression or biaxial tension." *Applied Physics Letters* 102.7 (2013): 072905.
- [117] Kiser, Jillian, et al. "Stress reconfigurable tunable magnetoelectric resonators as magnetic sensors." *Applied Physics Letters* 102.4 (2013): 042909.
- [118] Guo, Er-Jia, K. Dörr, and A. Herklotz. "Strain controlled ferroelectric switching time of BiFeO₃ capacitors." *Applied Physics Letters* 101.24 (2012): 242908.
- [119] Liu, C., F. Yun, and H. Morkoc. "J. Mater. Sci.: Mater. Electron." (2005).
- [120] Bedekar, Vinila, R. Shukla, and A. K. Tyagi. "Nanocrystalline YCrO₃ with onion-like structure and unusual magnetic behaviour." *Nanotechnology* 18.15 (2007): 155706.
- [121] Hill, Nicola A. "Why are there so few magnetic ferroelectrics?." (2000): 6694-6709.
- [122] Pasternak, Moshe P., et al. "Electronic, magnetic and structural properties of the RFeO₃ antiferromagnetic-perovskites at very high pressures." *MRS Online Proceedings Library Archive* 718 (2002).
- [123] Fergus, Jeffrey W. "Perovskite oxides for semiconductor-based gas sensors." *Sensors and Actuators B: Chemical* 123.2 (2007): 1169-1179.
- [124] King, Graham, and Patrick M. Woodward. "Cation ordering in perovskites." *Journal of Materials Chemistry* 20.28 (2010): 5785-5796.
- [125] Ramesha, K., et al. "Observation of local non-centrosymmetry in weakly biferroic YCrO₃." *Journal of Physics: Condensed Matter* 19.10 (2007): 102202.
- [126] Tiwari, Brajesh, M. Krishna Surendra, and MS Ramachandra Rao. "HoCrO₃ and YCrO₃: a comparative study." *Journal of Physics: Condensed Matter* 25.21 (2013): 216004.
- [127] Judin, V. M., A. B. Sherman, and I. E. Myl'Nikova. "Magnetic properties of YFeO₃." *Physics Letters* 22.5 (1966): 554-555.

- [128] Bertaut, E. F., and J. Mareschal. "Etude de la structure magnetique des chromites d'erbium et de neodyme par diffraction neutronique." *Solid State Communications* 5.2 (1967): 93-97.
- [129] Nhalil, Hariharan, et al. "Spin-reorientation and weak ferromagnetism in antiferromagnetic TbMn_{0.5}Fe_{0.5}O₃." *Journal of Applied Physics* 117.17 (2015): 173904.
- [130] Belik, Alexei A., et al. "Neutron powder diffraction study on the crystal and magnetic structures of BiCrO₃." *Chemistry of Materials* 20.11 (2008): 3765-3769.
- [131] Yang, Lei, et al. "Ferrimagnetism and possible double perovskite structure in half Cr-doped YMn_{0.5}Cr_{0.5}O₃." *Journal of Alloys and Compounds* 570 (2013): 41-45.
- [132] Hao, Lin, et al. "Layered B-site cation ordering: A key factor in ferrimagnetism of Y₂MnCrO₆." *Journal of Alloys and Compounds* 601 (2014): 14-18.
- [133] Araujo, C. Moyses, et al. "Disorder-induced room temperature ferromagnetism in glassy chromites." *Scientific reports* 4 (2014): 4686.
- [134] Blaha, Peter, et al. "wien2k." An augmented plane wave+ local orbitals program for calculating crystal properties (2001).
- [135] Hohenberg, P., and W. Kohn. "Phys Rev B 136: 864. doi: 10.1103/PhysRev.136." B864 (1964).
- [136] Perdew, John P., Kieron Burke, and Matthias Ernzerhof. "Generalized gradient approximation made simple." *Physical review letters* 77.18 (1996): 3865.
- [137] Monkhorst, Hendrik J., and James D. Pack. "Special points for Brillouin-zone integrations." *Physical review B* 13.12 (1976): 5188.
- [138] Moreira, Roberto L., and Anderson Dias. "Comment on "Prediction of lattice constant in cubic perovskites"." *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 68.8 (2007): 1617-1622.
- [139] Moussa, F. "F. Moussa, M. Hennion, J. Rodriguez-Carvajal, H. Moudden, L. Pinsard, and A. Revcolevschi, *Phys. Rev. B* 54, 15 149 (1996)." *Phys. Rev. B* 54 (1996): 15.
- [140] Skomski, Ralph. *Simple models of magnetism*. Oxford University Press on Demand, 2008.
- [141] Coey, John MD. *Magnetism and magnetic materials*. Cambridge University Press, 2010.

- [142] Thole, B. T., et al. "X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization." *Physical Review Letters* 68.12 (1992): 1943.
- [143] Zaari, H., et al. "Comparative study between TB-mBJ and GGA+ U on magnetic and optical properties of CdFe₂O₄." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 393 (2015): 183-187.
- [144] Binder, Kurt, et al. "Monte Carlo simulation in statistical physics." *Computers in Physics* 7.2 (1993): 156-157.
- [145] Yeomans, Julia M. *Statistical mechanics of phase transitions*. Clarendon Press, 1992.
- [146] Lewenstein, Maciej, Anna Sanpera, and Verònica Ahufinger. *Ultracold Atoms in Optical Lattices: Simulating quantum many-body systems*. Oxford University Press, 2012.
- [147] Ngantso, G. Dimitri, et al. "Study of the Magnetic Properties and Phase Transitions of Sr₂CrMoO₆ by Mean-Field Approximation." *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 28.8 (2015): 2589-2596.
- [148] Ahmed, S. Sidi, et al. "Mixed spin-1 and spin-1/2 Blume-Emery-Griffiths model on the Bethe lattice: Monte Carlo simulation." *Superlattices and Microstructures* 109 (2017): 841-851.
- [149] García, Jose H., Lucian Covaci, and Tatiana G. Rappoport. "Real-space calculation of the conductivity tensor for disordered topological matter." *Physical review letters* 114.11 (2015): 116602.
- [150] Naji, S., et al. "Monte Carlo study of phase transitions and magnetic properties of LaMnO₃: Heisenberg model." *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 391.15 (2012): 3885-3894.
- [151] Baillie, Clive F., et al. "Monte Carlo renormalization-group study of the three-dimensional Ising model." *Physical Review B* 45.18 (1992): 10438.
- [152] Chen, Kun, Alan M. Ferrenberg, and D. P. Landau. "Static critical behavior of three-dimensional classical Heisenberg models: A high-resolution Monte Carlo study." *Physical Review B* 48.5 (1993): 3249.
- [153] Peczak, P., Alan M. Ferrenberg, and D. P. Landau. "High-accuracy Monte Carlo study of the three-dimensional classical Heisenberg ferromagnet." *Physical Review B* 43.7 (1991): 6087.

- [154] Sleight, Arthur W., John Longo, and Roland Ward. "Compounds of osmium and rhenium with the ordered perovskite structure." *Inorganic Chemistry* 1.2 (1962): 245-250.
- [155] Sleight, Arthur W., and Roland Ward. "Compounds of post-transition elements with the ordered perovskite structure." *Inorganic Chemistry* 3.2 (1964): 292-292.
- [156] Jeng, Horng-Tay, and G. Y. Guo. "First-principles investigations of orbital magnetic moments and electronic structures of the double perovskites $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$, $\text{Sr}_2\text{FeReO}_6$, and Sr_2CrWO_6 ." *Physical Review B* 67.9 (2003): 094438.
- [157] Jeng, Horng-Tay, and G. Y. Guo. "First-principles investigations of orbital magnetic moments and electronic structures of the double perovskites $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$, $\text{Sr}_2\text{FeReO}_6$, and Sr_2CrWO_6 ." *Physical Review B* 67.9 (2003): 094438.
- [158] Gray, Benjamin, et al. "Local electronic and magnetic studies of an artificial $\text{La}_2\text{FeCrO}_6$ double perovskite." *Applied Physics Letters* 97.1 (2010): 013105.
- [159] Bonilla, C. M., et al. "Half-metallic behavior and electronic structure of $\text{Sr}_2\text{CrMoO}_6$ magnetic system." *Physica B: Condensed Matter* 398.2 (2007): 208-211.
- [160] Zhang, Yan, Vincent Ji, and Ke-Wei Xu. "Structural, electronic and magnetic properties of a symmetrical FeReO terminated (001)-oriented slab of double perovskite $\text{Sr}_2\text{FeReO}_6$." *Materials Chemistry and Physics* 136.2-3 (2012): 570-576.
- [161] Fiebig, Manfred. "Revival of the magnetoelectric effect." *Journal of Physics D: Applied Physics* 38.8 (2005): R123.
- [162] Scott, J. F. "Data storage: Multiferroic memories." *Nature materials* 6.4 (2007): 256.
- [163] Chu, Ying-Hao, et al. "Electric-field control of local ferromagnetism using a magnetoelectric multiferroic." *Nature materials* 7.6 (2008): 478.
- [164] Cheng, J., and Z. Q. Yang. "Electronic structures of double perovskites Ba_2MnMO_6 ($M = \text{W}$ and Re) from first-principles studies." *physica status solidi (b)* 243.6 (2006): 1151-1158.
- [165] Szotek, Z., et al. "Electronic structure of half-metallic double perovskites." *Physical Review B* 68.10 (2003): 104411.
- [166] Yáñez-Vilar, S., et al. "Multiferroic behavior in the double-perovskite $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$." *Physical Review B* 84.13 (2011): 134427.
- [167] Choi, Y. J., et al. "Ferroelectricity in an Ising chain magnet." *Physical review letters* 100.4 (2008): 047601.

- [168] Jo, Y. J., et al. "3: 1 magnetization plateau and suppression of ferroelectric polarization in an Ising chain multiferroic." *Physical Review B* 79.1 (2009): 012407.
- [169] Yahyaoui, Samia, and H. T. Diep. "Magnetic properties of (La_{0.56}Ce_{0.14})Sr_{0.30}MnO₃ perovskite." *Physics Letters A* 380.39 (2016): 3212-3216.
- [170] Ngantso, G. Dimitri, et al. "Effective field study of ising model on a double perovskite structure." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 423 (2017): 337-342.
- [171] Jabar, A., et al. "Magnetic properties of the mixed spin-1 and spin-3/2 Ising system on a bilayer square lattice: A Monte Carlo study." *Chemical Physics Letters* 670 (2017): 16-21.
- [172] Ngantso, G. Dimitri, A. Benyoussef, and A. El Kenz. "Monte Carlo study of magnetic properties and critical behavior of Sr₂CrMoO₆." *Current Applied Physics* 16.2 (2016): 211-219.
- [173] Sanyal, Prabuddha, et al. "Magnetism in Sr₂CrMoO₆: A combined ab initio and model study." *Physical Review B* 94.3 (2016): 035132.
- [174] Nid-bahami, A., et al. "Magnetic properties of double perovskite Sr₂RuHoO₆: Monte Carlo Simulation." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 417 (2016): 258-266.
- [175] Toro, CE Deluque, et al. "First principles study of the structural and electronic properties of double perovskite Ba₂YTaO₆ in cubic and tetragonal phases." *Physica B: Condensed Matter* 455 (2014): 18-21.
- [176] Choi, Eun-Mi, et al. "Room temperature ferrimagnetism and ferroelectricity in strained, thin films of BiFe_{0.5}Mn_{0.5}O₃." *Advanced functional materials* 24.47 (2014): 7478-7487.
- [177] Drissi, L. B., and F. Z. Ramadan. "Fluorination-control of electronic and magnetic properties in GeC-hybrid." *Chemical Physics Letters* 659 (2016): 148-153.
- [178] Zapf, Vivien S., et al. "Magnetization dynamics and frustration in the multiferroic double perovskite Lu₂MnCoO₆." *Physical Review B* 93.13 (2016): 134431.
- [179] Chikara, Shaline, et al. "Electric polarization observed in single crystals of multiferroic Lu₂MnCoO₆." *Physical Review B* 93.18 (2016): 180405.
- [180] Zapf, Vivien S., et al. "Coupled magnetic and electric hysteresis in the multiferroic double perovskite Lu₂MnCoO₆." *arXiv preprint arXiv:1409.5072* (2014).

- [181] Gao, G. Y., et al. "Half-metallic ferromagnetism in zinc-blende CaC, SrC, and BaC from first principles." *Physical Review B* 75.17 (2007): 174442.
- [182] Petersen, Max, et al. "Improving the efficiency of FP-LAPW calculations." *Computer Physics Communications* 126.3 (2000): 294-309.
- [183] Perdew, John P. "JP Perdew, JA Chevary, SH Vosko, KA Jackson, MR Pederson, DJ Singh, and C. Fiolhais, *Phys. Rev. B* 46, 6671 (1992)." *Phys. Rev. B* 46 (1992): 6671.
- [184] El Yadari, M., et al. "Monte Carlo study of the double perovskite nano Sr₂VMoO₆." *Journal of Alloys and Compounds* 579 (2013): 86-91.
- [185] El Rhazouani, O., A. Benyoussef, and A. El Kenz. "Phase diagram of the double perovskite Sr₂CrReO₆: Effective-field theory." *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 377 (2015): 319-324.
- [186] Landau, David P., and Kurt Binder. *A guide to Monte Carlo simulations in statistical physics*. Cambridge university press, 2014.
- [187] Stanley, H. Eugene. "Phase transitions and critical phenomena." Clarendon, Oxford 9 (1971).
- [188] Privman, Vladimir. *Finite size scaling and numerical simulation of statistical systems*. Singapore: World Scientific, 1990.
- [189] ōkawa, Hisashi, et al. "Ferrimagnetic mixed-metal assemblies {NBu₄ [MFe(ox)₃]} x." *Molecular Crystals and Liquid Crystals Science and Technology. Section A. Molecular Crystals and Liquid Crystals* 233.1 (1993): 257-262.
- [190] Mathoniere, Corine, et al. "Ferrimagnetic mixed-valency and mixed-metal tris (oxalato) iron (III) compounds: Synthesis, structure, and magnetism." *Inorganic chemistry* 35.5 (1996): 1201-1206.
- [191] Nishida, Miho, Fumiyuki Ishii, and Mineo Saito. "First-principles study of Exchange Interaction in Ising-type Multiferroic Ca₃CoMnO₆." *Proceedings of the International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013)*. 2014.
- [192] Retuerto, Maria, et al. "Pb₂MnTeO₆ Double Perovskite: An Antipolar Antiferromagnet." *Inorganic chemistry* 55.9 (2016): 4320-4329.
- [193] Kimura, T., et al. "Magnetic control of ferroelectric polarization." *nature* 426.6962 (2003): 55.
- [194] Wang, J. B. N. J., et al. "Epitaxial BiFeO₃ multiferroic thin film heterostructures." *science* 299.5613 (2003): 1719-1722.

- [195] Salamon, Myron B., and Marcelo Jaime. "The physics of manganites: Structure and transport." *Reviews of Modern Physics* 73.3 (2001): 583.
- [196] Takenaka, Tadashi, and Koichiro Sakata. "Grain orientation effects on electrical properties of bismuth layer-structured ferroelectric $\text{Pb}(1-x)(\text{NaCe})_{x/2}\text{Bi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ solid solution." *Journal of applied physics* 55.4 (1984): 1092-1099.
- [197] Lee, Patrick A., Naoto Nagaosa, and Xiao-Gang Wen. "Doping a Mott insulator: Physics of high-temperature superconductivity." *Reviews of modern physics* 78.1 (2006): 17.
- [198] Deng, Hongshan, et al. "Strong enhancement of spin ordering by A-site magnetic ions in the ferrimagnet $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{O}_{12}$." *Physical Review B* 94.2 (2016): 024414.
- [199] Barman, Nabadyuti, et al. "Centrosymmetric tetragonal tellurium doped calcium copper titanate and its dielectric tunability." *Solid State Communications* 241 (2016): 7-13.
- [200] Chen, Wei-tin, et al. "A half-metallic A-and B-site-ordered quadruple perovskite oxide $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Re}_2\text{O}_{12}$ with large magnetization and a high transition temperature." *Nature Communications* 5 (2014): 3909.
- [201] Abakumov, A. M., A. A. Tsirlin, and E. V. Antipov. "Transition-Metal Perovskites." *Comprehensive Inorganic Chemistry II (Second Edition)*. Elsevier, 2013. 1-40.
- [202] Larregola, Sebastian A., et al. "New routes to synthesizing an ordered Perovskite $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Sb}_2\text{O}_{12}$ and its magnetic structure by neutron powder diffraction." *Inorganic chemistry* 53.9 (2014): 4281-4283.
- [203] Fujii, Hitoshi, et al. "Ab initio study of electronic, magnetic, and spectroscopic properties in A-and B-site-ordered perovskite $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Sb}_2\text{O}_{12}$." *Physical Review B* 90.1 (2014): 014430.
- [204] Senn, Mark S., et al. "B-Cation order control of magnetism in the 1322 Perovskite $\text{CaCu}_3\text{Fe}_2\text{Nb}_2\text{O}_{12}$." *Chemistry of Materials* 26.16 (2014): 4832-4837.
- [205] Long, Y. W., et al. "Temperature-induced A–B intersite charge transfer in an A-site-ordered $\text{LaCu}_3\text{Fe}_4\text{O}_{12}$ perovskite." *Nature* 458.7234 (2009): 60.
- [206] Long, Y. W., et al. "Temperature-induced A–B intersite charge transfer in an A-site-ordered $\text{LaCu}_3\text{Fe}_4\text{O}_{12}$ perovskite." *Nature* 458.7234 (2009): 60.

Références

- [207] Long, Youwen, et al. "Intermetallic Charge Transfer in A-Site-Ordered Double Perovskite $\text{BiCu}_3\text{Fe}_4\text{O}_{12}$." *Inorganic chemistry* 48.17 (2009): 8489-8492.
- [208] Yamada, Ikuya, et al. "A Perovskite Containing Quadrivalent Iron as a Charge-Disproportionated Ferrimagnet." *Angewandte Chemie International Edition* 47.37 (2008): 7032-7035.
- [209] Wang, Xiao, et al. "Observation of magnetoelectric multiferroicity in a cubic perovskite system: $\text{LaMn}_3\text{Cr}_4\text{O}_{12}$." *Physical review letters* 115.8 (2015): 087601.
- [210] El Rhazouani, O., et al. "Magnetic properties of the fully spin-polarized $\text{Sr}_2\text{CrOsO}_6$ double perovskite: A Monte Carlo simulation." *Physics Letters A* 380.13 (2016): 1241-1246.