

N° d'ordre : 3925

THÈSE

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

Structure de Recherche : Laboratoire de Matière Condensée et Sciences Interdisciplinaires (LaMCScl)

Discipline : Physique

Spécialité : Physique des matériaux

Présentée et Soutenue le 01/ 06 / 2024 par :

Noureddine SABER

Application de la Méthode de Monte Carlo à l'Etude des Propriétés Magnétiques de Nanomatériaux

Devant le JURY :

Hamid EZ-ZAHRAOUY	PES	Faculté des Sciences, Université Mohammed V- Rabat	Président
Mohammed DAOUD	PES	Faculté des Sciences, Université Ibn Tofaïl-Kénitra	Examineur/Rapporteur
El Mehdi SALMANI	PH	Faculté des Sciences, Université Mohammed V- Rabat	Examineur/Rapporteur
Halima ZAARI	PH	Faculté des Sciences, Université Mohammed V- Rabat	Examineur/Rapporteur
Lahoucine BAHMAD	PES	Faculté des Sciences, Université Mohammed V- Rabat	Examineur
Bousselham KABOUCHI	PES	Faculté des Sciences, Université Mohammed V- Rabat	Co-Directeur de thèse
Abdelaziz MHIRECH	PES	Faculté des Sciences, Université Mohammed V- Rabat	Directeur de thèse

Année Universitaire : 2023 - 2024

Dédicace

❖ *A mon cher papa*

Aucune dédicace ne saurait exprimer l'amour, l'estime et le respect que j'ai toujours eu pour toi.

Rien au monde ne vaut les efforts fournis jour et nuit pour mon éducation et mon bien être.

Ce travail est le fruit de tes sacrifices que tu as consentis pour mon éducation et ma formation. « Merci papa »

❖ *A ma chère mère*

Ta prière et ta bénédiction m'ont été d'un grand secours pour mener à bien mes études.

Je te dédie ce travail en témoignage de mon profond amour. Puisse Dieu, le tout puissant, te préserver et t'accorder santé, longue vie et bonheur.

❖ *A mes frères, ma sœur, ma tante, ma femme et mes amies « Yassine, Mehdi, Meryem, Meftaha, Ilham, Hicham, Boutahir, Zeghari, Daryf et Jebrouni »*

Je vous souhaite un avenir plein de joie, de bonheur, de réussite et de sérénité.

Je vous exprime à travers ce travail mes sentiments de fraternité et d'amour.

❖ *Je dédie ce modeste travail aussi*

A tous mes amis sans exception.

Aux membres du Laboratoire de la Matière Condensée et Sciences Interdisciplinaires (LaMCScI), unité de recherche labellisée CNRST, URL-CNRST-17 du Département de Physique.

Saber NOUREDDINE

Remerciements

Je remercie tout d'abord Dieu tout puissant de m'avoir donné le courage, la force et la patience d'achever ce travail.

*Ce travail a été effectué au Laboratoire de Matière Condensée et Sciences Interdisciplinaires (LaMCScI), unité de recherche labellisée CNRST, URL-CNRST-17 du Département de Physique à la Faculté des Sciences de l'Université Mohammed V de Rabat, sous la direction de Monsieur **Abdelaziz MHIRECH**, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des Sciences de Rabat et la co-direction de Monsieur **Bousselham KABOUCHI**, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des Sciences de Rabat.*

*J'adresse mes remerciements les plus chaleureux à mon Directeur de thèse, Professeur **Abdelaziz MHIRECH**, pour sa disponibilité, la qualité de son encadrement, la confiance qu'il nous a prodigué pour la direction de ce travail de recherche, ses idées scientifiques, ses investissements de recherche et de l'aide qu'il a apportée pour l'avancement et l'aboutissement de cette thèse.*

*Mes sincères remerciements vont aussi à mon Co-Directeur de thèse, Professeur **Bousselham KABOUCHI**, pour sa contribution et ses conseils précieux qui m'ont données le courage et la confiance pour l'achèvement de ce travail de recherche, sans jamais cesser de nous encourager et nous pousser vers les horizons de la recherche scientifique.*

Je tiens à remercier vivement tous les membres du Jury pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant d'examiner et juger ce travail.

*Je remercie particulièrement, Monsieur **Hamid EZ-ZAHRAOUY**, Professeur à la Faculté des Sciences de Rabat, d'avoir accepté de présider le Jury de cette thèse.*

*Un grand merci à Monsieur **Mohamed DAOUD**, Professeur à la Faculté des Sciences de Kénitra, pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail de recherche et pour avoir accepté d'être rapporteur et examinateur de cette thèse.*

*Je tiens à exprimer également ma gratitude à Monsieur **El mehdi SALMANI**, Professeur à la Faculté des Sciences de Rabat, pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail de recherche et d'être rapporteur de mon travail de thèse.*

*Mes sincères remerciements vont à Madame **Halima ZAARI**, Professeur à la Faculté des Sciences de Rabat pour avoir accepté d'examiner et d'établir un rapport sur mon travail de thèse.*

*Mes remerciements les plus profonds vont à Monsieur **Lahoucine BAHMAD**, Professeur à la Faculté des Sciences de Rabat, pour sa participation à mon jury de thèse en qualité d'examineur et pour toutes les remarques précieuses qu'il m'a faites. Veuillez agréer, Monsieur, l'assurance de mon profond respect.*

*Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers Monsieur **Zakaria FADIL**, docteur chercheur de la Faculté des Sciences de Rabat, pour son soutien inestimable dans l'aboutissement de ma thèse. Son expertise, ses conseils et sa disponibilité ont été d'une valeur inestimable pour moi. Son engagement envers l'excellence académique et sa passion pour la recherche ont été une source d'inspiration. Je le remercie chaleureusement pour son rôle essentiel et j'espère avoir l'occasion de collaborer à nouveau à l'avenir.*

J'adresse mes vifs remerciements à mes parents pour leur soutien moral et financier ainsi que pour leurs conseils tout au long de cette période. Je remercie également à ma sœur, ma femme et mes frères. Je remercie enfin tous mes amis (es) et qui m'ont aidé et soutenu durant ces années de thèse.

Résumé

La présente thèse est consacrée à l'étude des propriétés magnétiques, magnéto-caloriques et/ou diélectriques de divers nanostructures et nanomatériaux, particulièrement les structures de rubrene, Kesterite, Stannite, 4-(Mg₄C₅₆) Graphullerène, les composés nano-Heusler Ru₂MnX (X = Nb, Ta, V), l'alliage ternaire FeCo_xNi_{1-x}, et l'Ovalène. La détermination des propriétés magnétiques ou diélectriques des différentes structures est réalisée à l'aide de la méthode de Monte Carlo (MC) utilisant l'algorithme de Metropolis et le modèle de Blume-Capel.

L'étude concerne les transitions de phases magnétiques, les températures de compensation et/ou de blocage, ainsi que les comportements de l'aimantation, de la susceptibilité et l'entropie magnétiques. Une partie des travaux de recherche traite l'effet de la dilution sur les propriétés magnétiques de certains nano-systèmes. En outre, l'impact des interactions de couplage entre les spins sur les propriétés diélectriques d'un des nano-systèmes explorés, est étudié par le biais des interactions RKKY.

Les résultats obtenus constituent une contribution significative à la compréhension des comportements des propriétés magnétiques ou diélectriques correspondant aux différentes nanostructures étudiées. Ils sont d'une grande importance en nanotechnologies. En effet, ces résultats ouvrent des perspectives prometteuses dans des applications comme spintronique et réfrigération magnétique.

Mots-clés: Nanomatériaux, Simulations Monte Carlo, Propriétés magnétiques et diélectriques, Température de Compensation, Température de blocage, Dilution.

Abstract

The present thesis is devoted to the study of the magnetic, magnetocaloric, and/or dielectric properties of various nanostructures and nanomaterials, including rubrene, Kesterite, Stannite, 4-(Mg₄C₅₆) Graphullerene structures , nano-Heusler compounds Ru₂MnX (X = Nb, Ta, V), the ternary alloy FeCo_xNi_{1-x}, and Ovalene. The determination of the magnetic or dielectric properties of the different structures is carried out using the Monte Carlo method (MC) employing the Metropolis algorithm and the Blume-Capel model.

The study concerns magnetic phase transitions, compensation and/or blocking temperatures, as well as the behaviors of magnetization, susceptibility, and magnetic entropy. Part of the research work deals with the effect of dilution on the magnetic properties of certain nano-systems. Furthermore, the impact of spin coupling interactions on the dielectric properties of one of the explored nano-systems is studied through RKKY interactions.

The obtained results constitute a significant contribution to the understanding of the magnetic or dielectric properties behaviors corresponding to the different studied nanostructures. They are of great importance in nanotechnologies. Indeed, these results open promising perspectives in applications such as spintronics and magnetic refrigeration.

Keywords: Nanomaterials, Monte Carlo simulations, Magnetic and Dielectric properties, Compensation temperature, Blocking temperature, Dilution.

Liste des publications

1. **N. Saber**, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, and W. O. Benomar, Dilution concentration effects on magnetic properties of three nano-Heusler Ru_2MnX ($X= Nb, Ta, V$) compounds: Monte Carlo study, **International Journal of Thermophysics**, **42** (2021) 98. <https://link.springer.com/article/10.1007/s10765-021-02856-3>.
2. **N. Saber**, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, and W. O. Benomar, Magnetic Behaviors of the Kesterite and the Stannite Nanostructures: Monte Carlo Study, **SPIN**, **12** (2022) 2250008. <http://dx.doi.org/10.1142/S2010324722500084>.
3. **N. Saber**, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, and W. O. Benomar, Magnetic properties of the ternary $FeCo_xNi_{1-x}$ alloy: Monte Carlo simulations, **Philosophical Magazine**, **102** (2022) 1725-1738. <http://dx.doi.org/10.1080/14786435.2022.2079748>.
4. **N. Saber**, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, and W. O. Benomar, Magnetic Properties and Compensation Temperature Behaviors in the Hexacene-like Nanostructure: A Monte Carlo Study. **Journal of Low Temperature Physics**, **210** (2023) 310-324. <http://dx.doi.org/10.1007/s10909-022-02861-2>.
5. **N. Saber**, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi and L. Bahmad, Magnetic properties and thermal behavior of the monolayer Rubrene-like nano-island: Monte Carlo simulations, **Solid State Communications**, **362** (2023) 115084. <http://dx.doi.org/10.21203/rs.3.rs-2336809/v1>.
6. **N. Saber**, S. Zriouel, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad and Z. Fadil, Magnetic Properties and Magnetocaloric Effects of the Graphullerene-Like $4-(Mg_4C_{60})$ Nanostructure: A Monte Carlo study, **Modern Physics Letters B**, **38** (2024) 2350199. <https://doi.org/10.1142/S0217984923501993>.
7. **N. Saber**, H. Eraki, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, C. J. Raorane and W. O. Benomar, The effect of vacant sites on the magnetic properties of a germanene nanostructure: Monte Carlo simulations. **J. Nanopart. Res**, **25** (2023), 215. <http://dx.doi.org/10.1007/s11051-023-05861-9>.
8. **N. Saber**, Z. Fadil, H. Sabbah, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, C. J. Raorane, S. S. Sana H. Fouad and M. Hashem, Exploring Dielectric Phenomena in Sulflower-

- Like Nanostructure via Monte Carlo technique. **Communications in Theoretical Physics**. <https://doi.org/10.1088/1572-9494/ad3221>.
9. Z. Fadil, **N. Saber**, A. Mhirech, B. Kabouchi and L. Bahmad, Dielectric Properties of Ovalene-Like Nanostructure with RKKY Interactions: Monte Carlo Study, **SPIN**, **12** (2022) 2250031. <http://dx.doi.org/10.1142/S201032472250031X>.
 10. Z. Fadil, **N. Saber**, H. Eraki, A. Mhirech, B. Kabouchi and L. Bahmad, Magnetic Properties and Compensation Temperature of a Mixed Monolayer Coronene-Like Nanostructure: Monte Carlo Study, **SPIN**, **12** (2022) 2250020. <http://dx.doi.org/10.1142/S2010324722500205>.
 11. Z. Fadil, **N. Saber**, H. Eraki, A. Mhirech, B. Kabouchi and L. Bahmad, Study of the Blume–Emery–Griffiths Model for Mixed Carbon-Like Nanotube: Monte Carlo Study, **Journal of Low Temperature Physics**, **210** (2023) 285-296. <http://dx.doi.org/10.21203/rs.3.rs-2075504/v1>.
 12. H. Eraki, **N. Saber**, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi and L. Bahmad, Monte Carlo Study on the Magnetic Properties of the Silicene-Germanene Junction-Like Nanostructure, **SPIN**, (2023) 2350026. <http://dx.doi.org/10.1142/S2010324723500261>.
 13. H. Eraki, **N. Saber**, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, S. Karam, R. Haldhar, C. J. Raorane and S.C. Kim, Investigating Dielectric Behavior of Zethrene-Inspired Nanoscale System: Monte Carlo Approach, **SPIN**. <http://dx.doi.org/10.1142/S2010324724500073>
 14. H. Eraki, **N. Saber**, H. Sabbah, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, M. Ali, P. Rosaiah, C. J. Raorane and R. Haldhar, A Theoretical Study on the Magnetic Features of Ru₂MnX Nano-Heusler Alloys, **SPIN**. <http://dx.doi.org/10.1142/S2010324724500115>
 15. Z. Fadil, Rajesh Haldhar, Chaitany Jayprakash Raorane, **N. Saber**, R. El Fdil, Steve Karam, P. Rosaiah, Mohamed Ouladsmane and Seong-Cheol Kim, Monte Carlo Simulations Revealing Ground State Characteristics and Magnetic Hysteresis in Perylene-like Nanostructure. **Journal of Low Temperature Physics**, (2023) 1-17. <http://dx.doi.org/10.1007/s10909-023-03024-7>.
 16. H. Eraki, D. Kabouchi, Z. Fadil, **N. Saber**, R. El Fdil, A. Mhirech, E. Salmani, A. A. Alsayyari, S. Saadaoui, and C. J. Raorane, Exploring Dielectric Responses in Nano Kagome Bilayers Through Monte Carlo Simulations, **ECS Journal of Solid State Science and Technology**. **13** (2024) 063011. <http://dx.doi.org/10.1149/2162-8777/a>

Liste des figures

Figure I.1 : Trajectoire des électrons autour du noyau

Figure I.2 : Diagramme schématique des courbes aimantations ZFC et FC sous un champ appliqué H . La flèche indique la température de blocage, T_B

Figure I.3 : Boucles d'hystérésis pour les matériaux magnétiques doux (a) et dur (b)

Figure I.4 : Principe l'effet magnétocalorique

Figure I.5 : Principe de la dilution dans un nanomatériau

Figure I.6 : Modèle d'Ising pour un réseau bidimensionnel montrant l'interaction avec les proches voisins $S_{i,j+1}$, $S_{i,j-1}$, $S_{i+1,j}$ et $S_{i-1,j}$.

Figure I.7 : Conditions aux limites périodiques pour le modèle d'Ising à deux dimensions

Figure I.8 : Conditions aux limites de bords libres pour le modèle d'Ising bidimensionnel

Figure II.1 : Illustration schématique d'une structure de type Rubrène avec des spins S (atomes rouges) et σ (atomes bleus) et différents paramètres de couplage d'échange (ligne en couleur).

Figure II.2 : Diagrammes de phase à l'état fondamental : (a) $J_{SS} = 1$ et $J_{S\sigma} = -1$, (b) $J_{SS} = 1$ et $D = 0$, (c) $J_{S\sigma} = -1$ et $H = 0$, (d) $J_{SS} = 1$ et $H = 0$, (e) $D = 0$ et $H = 0$.

Figure II.3 : (a) Aimantations et (b) susceptibilités en fonction de la température pour $D=0$, $H=0$, $J_{SS} = 1$ et $J_{S\sigma} = -0.02$

Figure II.4 : Magnétisation totale (a) susceptibilité totale (b) pour différentes valeurs de $J_{S\sigma}$ $J_{SS}=1$, $H=0$ et $D=0$.

Figure II.5 : (a) Magnétisation totale, (b) susceptibilité totale pour des paramètres fixes : $D=0$, $H=0$ et $J_{S\sigma} = -0.02$, et températures en fonction du paramètre J_{SS} (c).

Figure II.6 : Aimantation totale en fonction du champ cristallin pour $T=0.1$, $H=0$ et $J_{SS}=1$.

Figure II.7 : Cycles d'hystérésis du nano-îlot de type Rubrène pour $D=0$: (a) $J_{SS}=1$ et $J_{S\sigma} = -0.02$, (b) $J_{SS}=1$ et $T=0.1$. (c) $J_{S\sigma} = -0.02$ et $T=0.1$

Figure II.8 : Illustration schématique des nanostructures de Kesterite (a) et de Stannite (b).

Figure II.9 : Aimantations (a, c) et susceptibilités (b, d) des nanostructures de Kesterite et de Stannite pour des paramètres fixes : $d=0$, $R_1=1$ et $R_2=1$.

Figure II.10 : Aimantations totales (a, c) et susceptibilités totales (b, d) des nanostructures de Kesterite et de Stannite en fonction de la température réduite pour $d=0$.

Figure II.11 : Aimantation totale (a) susceptibilité totale (b) des nanostructures Kesterite et Stannite pour: $R_1=1$, $R_2=1$ et $d=0$.

Figure II.12 : Aimantations totales en fonction des paramètres réduits R_1 , R_2 et d pour $t=0.5$. (a) : $R_2=1$ et $d=0$, (b) : $R_1=1$ et $d=0$ et (c) : $R_1=1$ et $R_2=1$.

Figure III.1: Illustration schématique d'une nanostructure de type Graphullerène. Les boules bleues symbolisent les spins σ et les boules rouges les spins S . Ces spins sont interconnectés par plusieurs interactions de couplage d'échange.

Figure III.2: Diagrammes de phase à l'état fondamental pour : (a) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$, (b) $J_{\sigma\sigma}=1$, $J_{\sigma S}=-1$ et $D=0$, (c) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma S}=-1$ et $D=0$, (d) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $D=0$, (e) $J_{\sigma\sigma}=1$, $J_{\sigma S}=-1$ et $H=0$, (f) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma S}=-1$ et $H=0$, (g) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $H=0$, (h) $J_{\sigma\sigma}=1$, $D=0$ et $H=0$, (i) $J_{SS}=1$, $D=0$ et $H=0$.

Figure III.3: Comportement thermique de : (a) Aimantations, (b) Susceptibilités (c) Chaleur spécifique magnétique et (d) Binder cumulent : $D=0$, $H=0$, $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$.

Figure III.4: Cycles d'hystérésis d'une nanostructure Graphullerène pour : (a) : $D=0$, $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$, (b) : $T=1$, $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$

Figure III.5: Entropie magnétique pour différentes valeurs de H ($H=1, 2, 3$ et $4T$).

Figure III.6: Entropie magnétique change pour différentes intensités de champ magnétique, plus précisément $H=1, 2, 3$ et $4T$.

Figure III.7: Pouvoir de refroidissement relatif du système en fonction du champ magnétique de $H=0T$ à $H=1, 2, 3$ et $4T$.

Figure IV.1: Représentation schématique de trois nano-composés Heusler Ru_2MnX ($X= Nb, Ta, V$), avec 25% d'atomes X non magnétiques.

Figure IV.2 : Aimantations totales (a) et susceptibilités totales (b) du composé Heusler Ru_2MnTa pour : $H=0$, $D=0$, $J_{Ru-Mn}=1$ et $J_{Ru-Ta}=-1$.

Figure IV.3 : Aimantations totales (a) et susceptibilités totales (b) en fonction de la température pour le composé Heusler Ru_2MnV pour des valeurs de paramètres fixes : $H=0$, $D=0$, $J_{Ru-Mn}=1$ et $J_{Ru-V}=-1$.

Figure IV.4 : Aimantations totales (a) et susceptibilités totales (b) en fonction de la température du composé Heusler Ru_2MnNb pour: $H=0$, $D=0$, $J_{Ru-Mn}=1$ et $J_{Ru-Nb}=-1$.

Figure IV.5 : Température de blocage pour différents composés nano-Heusler.

Figure IV.6 : Cycles d'hystérésis pour différents composés de nano-Heusler pour $D=0$, $T=1K$ et $J_{Ru-Mn}=1$. (a) $J_{Ru-Ta}=-1$, (b) $J_{Ru-V}=-1$ et (c) $J_{Ru-Nb}=-1$.

Figure IV.7 : Champ coercitif pour différents composés nano-Heusler.

Figure V.1 : Représentation schématique de l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$ avec $x=0,2$.

Figure V.2 : Diagrammes de phase à l'état fondamental : (a) dans le plan (H, D) pour $J_{Sq} = 1$; (b) dans le plan (H, D) pour $J_{S\sigma} = 1$; (c) dans le plan (H, J_{Sq}) pour $D = 0$; (d) dans le plan $(H, J_{S\sigma})$ pour $D = 0$.

Figure V.3 : Aimantations du FeNi (a) et du FeCo (c). Susceptibilités pour FeNi (b) et FeCo (d). Les valeurs des paramètres fixes sont : $H = 0, D = 0, J_{Sq} = 1$ et $J_{S\sigma} = 1$.

Figure V.4 : Aimantation totale (a) et susceptibilité totale (b) du composé $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$ avec la température pour plusieurs valeurs de x . $H = 0, D = 0, J_{Sq} = 1$ et $J_{S\sigma} = 1$.

Figure V.5 : Température de transition en fonction du rapport x pour $H=0, D=0, J_{Sq}=1$ et $J_{S\sigma} = 1$.

Figure V.6 : Aimantation totale en fonction des paramètres $J_{S\sigma}$ et D pour $T = 0,5$. (a) $H = 0$ et $D = 0$, (b) $J_{S\sigma} = 1$ et $H = 0$.

Figure V.7 : Cycles d'hystérésis pour différents valeurs du rapport de concentration x pour $D = 0, J_{S\sigma} = 1$ et $T = 0,5$.

Figure V.8: Champ coercitif (a) et aimantation rémanente (b) en fonction du rapport de concentration x des atomes de Co de l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$.

Figure VI.1: Représentation schématique des deux plans électriques de type ovalène séparés par des couches non électriques.

Figure VI.2: Polarisation partielle (a), polarisation totale (b), susceptibilité diélectrique totale (c) en fonction de la température et température de transition en fonction des couches non électriques (d). Ces figures sont tracées pour : $E_Z=1, J_{SS}=1, J_{S\sigma}=-0,1$

Figure VI.3: Polarisation partielle (a), polarisation totale (b), susceptibilité diélectrique totale (c) en fonction de la température et (d) température de transition en fonction du champ électrique longitudinal externe. Ces figures sont tracées pour des paramètres fixes : $J_{SS}=1, NEL=1$ et $J_{S\sigma} = -0,1$.

Figure VI.4: (a) Polarisation partielle, (b) polarisation totale, (c) susceptibilité diélectrique totale en fonction de la température et (d) température de transition en fonction du paramètre de couplage d'échange. Ces figures sont tracées pour : $E_Z=1, NEL=1$ et $J_{S\sigma} = -0,1$.

Figure VI.5: (a) Polarisation partielle, (b) polarisation totale, (c) susceptibilité diélectrique totale versus la température et (d) température de transition en fonction du paramètre ferriélectrique. Ces figures sont tracées pour les paramètres fixes suivants : $NEL=1, J_{SS}=1$ et $E_Z=1$.

Table des matières

Dédicace	i
Remerciements	ii
Résumé	iv
Abstract	v
Liste des publications	vi
Liste des figures	viii
Table des matières	xi
Introduction générale	1
Chapitre I : Généralités sur le magnétisme, modèles et méthodes de Monte Carlo	5
I.1. Introduction.....	6
I.2. Origine du magnétisme	6
I.3. Différentes manifestations de magnétisme	8
I.4. Différents types de températures de transition et températures de compensation.	8
I.4.1. Température de Curie T_C	8
I.4.2. Température de Néel T_N	8
I.4.3. Température de Blocage T_B	9
I.4.4. Température de Compensation	10
I.5. Classification des transitions de phases	11
I.5.1. Classification d'Ehrenfest	11
I.5.2. Classification de Landau	11
I.6. Processus d'interaction d'échange magnétique	12
I.7. Matériaux magnétiques doux et durs	13
I.8. Principe de la réfrigération magnétique	15
I.9. Principe de dilution	16
I.10. Modèles magnétiques de Spin.....	17
I.10.1. Modèle d'Ising	17
I.10.2. Modèle Blume-Emery-Griffiths (BEG)	19
I.10.3. Modèle Blume-Capel	20
I.11. Conditions aux bords	20
I.11.1. Conditions aux limites périodiques	21
I.11.2. Conditions aux limites de bords libres	21
I.12. Approches numériques pour la simulation.....	22
I.12.1. Simulations de Monte Carlo.....	22

I.12.2. Équation Maître et Estimation.....	23
I.12.3. Fondements de la simulation Monte Carlo	25
I.12.4. Algorithmes de simulation : l'algorithme Metropolis.....	30
I.12.5. Implémentation de l'algorithme Metropolis	31
Chapitre II : Températures de compensation et de transition dans les structures de type Rubrène, Kesterite et Stannite simulations de Monte Carlo	33
II.1 Étude la température de compensation de la structure de type Rubrène	34
II.1.1. Introduction.....	34
II.1.2. Présentation du système et de l'hamiltonien.....	35
II.1.3. Résultats numériques et discussion.....	36
II.1.3.1 Diagrammes de phases à l'état fondamental.....	36
II.1.3.2. Résultats Simulations Monte Carlo	40
II.1.3.3. Détermination des cycles d'hystérésis.....	47
II.1.4. Conclusion	50
II.2 Température de transition d'une structure de type Kesterite et Stannite par la méthode Monte Carlo	50
II.2.1. Introduction.....	50
II.2.2. Modèle et méthode de calcul	51
II.2.3. Étude de Monte Carlo	53
II.2 .4. Conclusion	63
Chapitre III : Propriétés magnétiques et magnétocaloriques d'une nanostructure 4-(Mg₄C₆₀) type Graphullerène : Étude par méthode Monte Carlo.....	64
III.1. Introduction	65
III.2. Modèle et la méthode de calcul	65
III.3. Résultats numériques et discussions.....	69
III.3.1. Diagramme de phase à l'état fondamental ($T=0$).....	69
III.3.2. Simulations de Monte Carlo.....	75
III.3.2.1. Propriétés magnétiques.....	75
III.3.2.2. Propriétés magnétocaloriques.....	80
III.4. Conclusion.....	83
Chapitre IV : Effet de la de dilution sur les propriétés magnétiques de composés nano Heusler Ru₂MnX(X= Nb, Ta, V)	85
IV.1. Introduction	86
IV.2. Modèle et méthode de calcul.....	86
IV.3. Résultats numériques et discussion.....	88
IV.3.1. Effet de la concentration de dilution P sur le comportement des aimantations, des susceptibilités thermiques et sur la température de blocage de trois composés nano-Heusler.....	89

IV.3.2. Effet de la dilution sur les Cycles d’hystérésis de trois composés nano-Heusler.....	94
IV.4. Conclusion	97
Chapitre V :Effet de la concentration des atomes (Co) sur les propriétés magnétiques de l'alliage ternaire FeCo_xNi_{1-x}	99
V.1. Introduction	100
V.2 Modèle et Méthode de calcul	100
V.3. Résultats numériques et discussion	102
V.3.1. Diagrammes de phase à l'état fondamental.....	103
V.3.2.Résultats des simulations de Monte Carlo (MCS).....	106
V.3.3. Effets du champ cristallin et du rapport de concentration x des atomes de Co sur l'aimantation totale du système	109
V.3.4.Effet du rapport de concentration x des atomes de Co sur les cycles d’hystérésis magnétiques.....	110
V.4. Conclusion.....	113
Chapitre VI : Propriétés diélectriques de la structure de type Ovalène avec interactions RKKY : simulations méthode Monte Carlo	114
VI.1. Introduction	115
VI.2. Présentation du système et de son hamiltonien	116
VI.3. Résultats numériques et discussion.....	118
V.4. Conclusion.....	129
Conclusions générales et perspectives	130
Annexes	133
❑ Modèle de Potts	133
❑ Modèle XY	133
❑ Modèle Heisenberg	134
Références	136

Introduction générale

Ces dernières années, la recherche sur les nanomatériaux a connu un essor marqué en sciences des matériaux. L'exploration de ces structures à l'échelle nanométrique est motivée par la quête de performances supérieures, étant donné que plusieurs phénomènes physico-chimiques se manifestent de manière caractéristique à cette échelle. Ainsi, en réduisant la taille d'un matériau à quelques nanomètres, on peut altérer et réguler de nombreuses propriétés, que les matériaux soient sous forme de particules, de couches minces ou des matériaux massifs. La recherche sur les propriétés magnétiques des nanostructures et des nanomatériaux ouvre de nombreuses perspectives d'applications dans divers domaines tels que les machines électriques, le stockage de l'information, le magnétisme terrestre, la physique des matériaux, l'électronique, ainsi que les dispositifs médicaux et industriels. Le domaine du magnétisme dans la physique de la matière condensée reste fascinant grâce à la diversité des phénomènes qui y sont associés, souvent liés à l'émergence de matériaux novateurs. La recherche dans ce domaine a connu une croissance remarquable depuis la découverte de l'électron en 1899, marquant le début d'une ère de progrès scientifiques. Deux découvertes majeures sur le magnétisme ont eu un impact significatif sur notre compréhension de ce phénomène [1, 2]. En conséquence, l'investigation des caractéristiques des matériaux à l'échelle nanoparticules diffère de celle des matériaux massifs et offre donc des applications pertinentes, comme les récents nanotubes magnétiques à base de chaînes magnétiques, envisagés pour des applications médicales et catalytiques [3]. Grâce à l'émergence de nouvelles méthodes de production, une gamme diversifiée de matériaux, allant des couches minces aux nanostructures telles que les nanotubes, les nanofils, les nanorubans et les nanoparticules, a été développée au niveau nanométrique. Les propriétés magnétiques des matériaux ont considérablement évolué en réduisant leurs dimensions au cours du temps, affirmant l'importance de la dimensionnalité dans la détermination de leurs caractéristiques qui peuvent varier en 0, 1, 2 ou 3 dimensions [4]. Ces nanostructures ont suscité un intérêt croissant, notamment depuis la découverte du graphène en 2004. Le graphène, issu de l'exfoliation du graphite, a ouvert la voie à l'étude de divers matériaux bidimensionnels, malgré son caractère non magnétique et sa conductivité électrique [5]. Les matériaux à base de graphène ont suscité un vif intérêt pour le magnétisme et la spintronique. Dans le contexte du développement technologique de dispositifs de plus en plus miniaturisés, l'investigation des propriétés magnétiques, magnéto-caloriques et/ou diélectriques des nanostructures et nanomatériaux revêt une importance vitale. Dans le cadre de notre étude, nous avons étudié diverses nanostructures et nanomatériaux pour nos recherches. Parmi ceux-ci, on a le Rubrène et le Graphullerène qui présentent des propriétés magnétiques et magnéto-caloriques uniques ainsi que des matériaux à

savoir : les Kesterites et les Stannites qui présentent des propriétés magnétiques prometteuses. Nous avons également étudié les nanocomposés Heusler Ru_2MnX , qui sont connus pour leurs propriétés magnétiques intéressantes. Puis nous avons analysé l'alliage $FeCo_xNi_{1-x}$, qui montre l'effet des variations de concentration Co sur les propriétés magnétiques. Enfin, nous nous sommes intéressés à des nanostructures organiques telles que l'Ovalène, qui présente des propriétés diélectriques uniques par interaction RKKY.

Cette thèse vise à approfondir notre compréhension des propriétés magnétiques, magnétocaloriques et diélectriques des nanostructures, en utilisant l'approche Monte Carlo et les modèles Ising et Blume-Capel sous l'algorithme Métropolis. L'objectif est d'analyser en détail les variations de température de transition influencées par différents paramètres physiques tels que les champs électrique et magnétique, le champ cristallin, et les couplages d'interactions. Cette méthodologie permet la simulation et l'analyse des interactions entre les nanostructures et les nanomatériaux. L'application pratique de ces propriétés est envisagée dans des domaines tels que la spintronique, les nanotechnologies, l'énergie, et la réfrigération magnétique, soulignant ainsi la pertinence et la motivation de cette recherche pour des applications concrètes.

La structure de cette thèse est bien définie et comprend les chapitres suivants :

- ✓ Chapitre I offre un aperçu du magnétisme, en présentant les différentes températures de transition et la classification de Néel. Il expose également les interactions magnétiques dans les matériaux en introduisant les différents modèles de spin. De plus, il explore les concepts fondamentaux de la simulation statique Monte Carlo, en mettant en évidence l'algorithme Metropolis utilisé pour générer les configurations numériques du modèle d'Ising. Enfin, il aborde les principes de dilution et l'effet magnétocalorique.
- ✓ Chapitre II se concentre sur la présentation concise des travaux de recherche, en détaillant spécifiquement certaines nanostructures. La première partie porte sur l'étude de la température de compensation dans les structures à base de Rubrène. La seconde partie expose les conclusions obtenues concernant la température de transition des structures de type Kesterite et Stannite.
- ✓ Chapitre III examine en détail les propriétés magnétiques et magnétocaloriques d'une structure appelée Graphullerène, de formule $4-(Mg_4C_{60})$.

- ✓ Chapitre IV se penche sur le mécanisme de dilution et son impact sur les propriétés magnétiques des composés nano-Heusler.
- ✓ Chapitre V étudie l'effet de la concentration des atomes de cobalt (Co) sur les propriétés magnétiques de l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$.
- ✓ Chapitre VI se focalise sur les propriétés diélectriques de la structure de type Ovalène, en considérant les interactions de type RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida).
- ✓ En conclusion de la thèse, les principales idées développées tout au long de l'étude sont résumées. Des perspectives pour des recherches futures dans ce domaine sont également proposées.

Chapitre I

Généralités sur le
magnétisme, modèles et
méthodes de Monte Carlo

I.1. Introduction

Dans certains matériaux, les propriétés magnétiques sont attribuées au moment magnétique des atomes qui les constituent. Les atomes, composés de noyaux et d'électrons en orbite, réagissent de manière amplifiée en présence d'un champ magnétique externe, ce qui entraîne la génération de moments magnétiques. Bien que tous les matériaux soient plus ou moins influencés par la présence d'un champ magnétique externe [6], leur réponse diffère d'un matériau à l'autre. Par conséquent, l'état magnétique d'un matériau dépend non seulement du champ magnétique appliqué, mais également d'autres paramètres tels que la pression, la température et les interactions interatomiques. De plus, l'ordre magnétique des matériaux est le résultat des interactions magnétiques existant entre les atomes du système.

Ce chapitre vise l'étude des généralités sur le magnétisme. Dans un premier temps, nous allons expliquer brièvement l'origine du magnétisme, puis nous passerons en revue les différents types de matériaux classés en fonction de leur comportement magnétique. Nous allons également aborder les différentes températures de transition et la classification des transitions de phase. On détaillera les processus d'interactions d'échange magnétique. Nous présentons aussi le principe de la réfrigération magnétique et la dilution. Tandis que la dernière partie de ce chapitre évoquera quelques modèles magnétiques de spins et les approches numériques pour la simulation.

I.2. Origine du magnétisme

Afin de mieux appréhender l'évolution de la structure magnétique d'un matériau, il convient de se pencher sur l'échelle atomique, puis au niveau cristallin. Le magnétisme atomique trouve son origine dans le moment magnétique atomique, qui est le résultat de l'occupation partielle des orbitales par les électrons non appariés. Ce moment magnétique est établi par le moment orbital, qui est associé au mouvement orbital de chaque électron individuel, ainsi que par le moment intrinsèque ou de spin, qui est associé au mouvement de rotation des électrons sur eux-mêmes (**voir figure I.1**). Ainsi, Il est possible d'obtenir un moment magnétique atomique en considérant à la fois le mouvement des électrons dans une orbite autour du noyau et le mouvement de spin des électrons sur eux-mêmes.

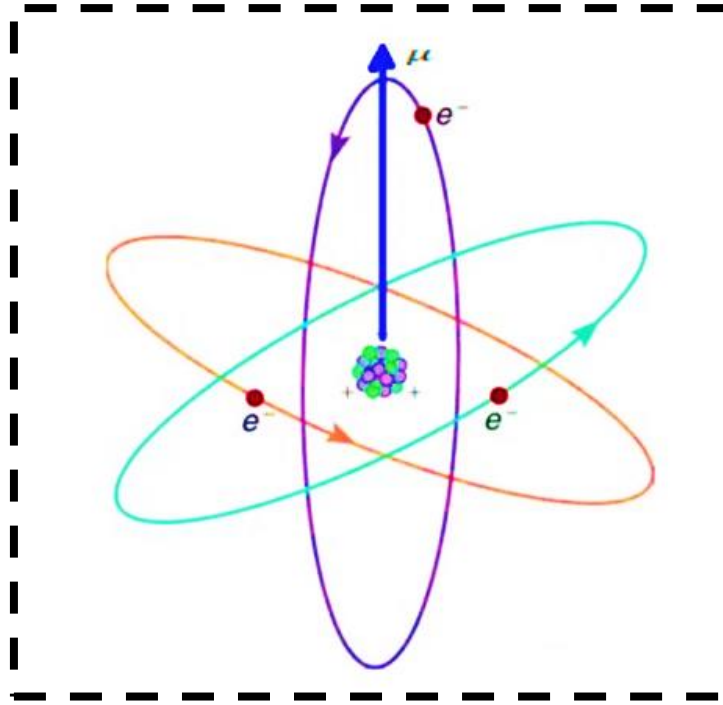


Figure I.1 : Trajectoire des électrons autour du noyau [7]

La combinaison de ces deux types de mouvements entraîne la création d'un moment magnétique atomique qui varie en fonction de la substance. Dans certaines substances magnétiques, les moments magnétiques des électrons se regroupent pour générer un champ magnétique uniforme. En réalité, la caractéristique de spin du moment magnétique est une propriété inhérente de l'électron, étroitement liée au moment angulaire de spin (S) selon l'équation (I.1) [8].

$$\mu_s = S \frac{e}{m} \quad (I.1)$$

Avec :

- ✓ e et m : représentent respectivement la charge et la masse de l'électron
- ✓ S : moment magnétique quantifié qui peut prendre deux valeurs : $+1/2$ ou $-1/2$

Puisque seule la composante z de S peut être mesurée, on peut déduire la composante z de μ_s de l'équation (I.2) [8].

$$\mu_{s,z} = \pm \frac{eh}{4\pi m} \quad (I.2)$$

Dans le contexte du magnétisme, la constante de Planck h donne naissance au magnéton de Bohr μ_B .

La nature du magnétisme inhérent à chaque élément est fortement influencée par la nature du moment magnétique de spin et d'orbital. La classification des matériaux se fait en fonction de leur réaction à un champ appliqué en utilisant l'aimantation, qui décrit leur sensibilité magnétique. L'étude des moments magnétiques dans les matériaux englobe diverses formes de magnétisme observées dans la nature. Lorsque les électrons sont appariés, leurs spins opposés annulent leurs moments magnétiques respectifs. En revanche, des matériaux contenant des électrons non appariés présentent un moment magnétique qui réagit au champ externe.

I.3. Différentes manifestations de magnétisme

En fonction de leur réponse à un champ magnétique externe, les matériaux peuvent être classés en deux catégories distinctes :

- ◆ Les matériaux magnétiques non ordonnés, également connus sous le nom de **matériaux magnétiques non coopératifs**, comprennent le diamagnétisme, le paramagnétisme et le super-paramagnétisme [7,9].
- ◆ Les matériaux magnétiques ordonnés, qui présentent **un magnétisme coopératif**, sont les matériaux ferromagnétiques, anti-ferromagnétiques, ferrimagnétiques et anti-ferrimagnétiques [7,9].

I.4. Différents types de températures de transition et de températures de compensation

I.4.1. Température de Curie T_C

On l'appelle aussi le point de Curie. C'est un concept en physique et en science des matériaux. Elle représente la température à laquelle les matériaux magnétiques perdent leurs propriétés ferromagnétiques et deviennent paramagnétiques. Ce terme est attribué à Pierre Curie (**1859-1906**), qui a démontré que le magnétisme disparaît à une température critique.

I.4.2. Température de Néel T_N

C'est le point à partir duquel un matériau antiferromagnétique perd son caractère magnétique et devient paramagnétique en raison de l'agitation thermique qui perturbe l'ordre magnétique global du matériau. Cette caractéristique est similaire à (T_C) observée dans les matériaux ferromagnétiques. Il convient de noter que cette terminologie est un hommage à Louis Néel (1904-2000). Il a été récompensé par le prix Nobel de physique en 1970 en reconnaissance de ses importantes contributions dans ce domaine.

I.4.3. Température de Blocage T_B

C'est une caractéristique essentielle qui influence les propriétés magnétiques des nanoparticules à l'échelle nanométrique et qui dépend du matériau utilisé. Pour déterminer cette température, il suffit d'observer le pic de la susceptibilité magnétique en fonction de la température. Au-dessus de T_B , un matériau ferromagnétique, anti-ferromagnétique ou ferrimagnétique passe à un comportement super-paramagnétique.

La relation suivante permet d'exprimer la température de blocage [10] :

$$T_B = \frac{KV}{K_B \ln\left(\frac{\tau}{\tau_0}\right)} \quad (I.3)$$

Avec :

- **K** : Anisotropie magnétique de la nanoparticule
- **V** : Volume de la nanoparticule
- **K_B** : Constante de Boltzmann
- **τ** : Temps de mesure de l'aimantation de la nanoparticule
- **τ₀** : Temps de mesure d'une valeur comprise entre 10^{-9} et 10^{-10} secondes.

Pour calculer la température de blocage expérimentalement, il est courant d'utiliser des courbes de refroidissement de l'aimantation pour un champ externe appliqué FC (Field Cooling) non nul et sans champ appliqué ZFC (Zero Field Cooling) pour les matériaux super-paramagnétiques. Les mesures ZFC sont effectuées à basse température sans champ magnétique externe, tandis que les mesures FC sont initiées à haute température en présence d'un champ magnétique externe. La température est le point maximum de la valeur de pic dans la courbe ZFC [11,12]. Cette température caractérise la transition entre les états bloquant et paramagnétique.

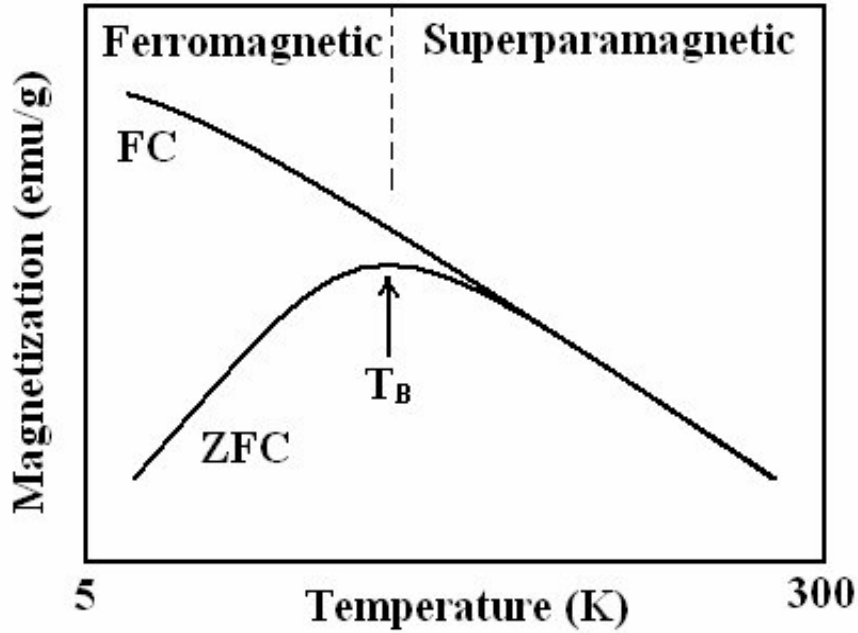


Figure I.2 : Diagramme schématique des courbes aimantations ZFC et FC sous un champ appliqué H . La flèche indique la température de blocage, T_B [13].

I.4.4. Température de Compensation

Les matériaux ferrimagnétiques sont capables de présenter une température de compensation sous certaines conditions spécifiques. Cette température (T_{comp}) indique le point où les aimantations partielles (M_S et M_σ) se compensent afin d'obtenir une aimantation totale nulle (M_{tot}) au-dessous de la température critique. En réalité, à cette température, les moments magnétiques des deux sous-réseaux S- σ s'alignent de manière antiparallèle tout en possédant une valeur absolue identique.

Par conséquent :

$$|M_S(T_{comp})| = |M_\sigma(T_{comp})| \quad (I.4)$$

$$sign|M_S(T_{comp})| = -sign|M_\sigma(T_{comp})| \quad (I.5)$$

La présence d'un point de compensation accroît les perspectives d'utilisation du matériau dans des applications technologiques intéressantes, notamment dans l'enregistrement thermomagnétique [14] et magnéto-optique [15].

I.5. Classification des transitions de phases

La transformation de phase d'un système survient lorsque celui-ci évolue d'un état à un autre, présentant des variations spécifiques dans ses propriétés physiques.

I.5.1. Classification d'Ehrenfest

D'après les travaux du physicien P. Ehrenfest, les diverses transitions de phase sont regroupées en deux classifications : les transitions du premier ordre et celles du second ordre [16].

❖ Transitions du premier ordre :

Elles se caractérisent par une discontinuité dans les dérivées premières des fonctions thermodynamiques. À titre d'exemple, les passages entre les trois états, solide, liquide et gazeux, sont du 1^{ère} ordre lorsque la dérivée première de l'énergie libre en fonction du potentiel chimique connaît une rupture [17].

❖ Transitions du second ordre :

Ce genre de transition se caractérise par la continuité des fonctions thermodynamiques et de leurs dérivées premières, mais également par la discontinuité des dérivées d'ordre supérieur. En conséquence, la transition d'une phase à une autre devient réalisable. C'est notamment le cas de la transition ferromagnétique-paramagnétique. La classification d'Ehrenfest perd en précision à proximité d'une transition de phase, car elle ne prend pas en compte la possibilité de divergence lorsque la limite thermodynamique est approchée [18].

I.5.2. Classification de Landau

En 1937, Léonide Landau a avancé une classification plus appropriée aux transitions continues. Cette classification revient essentiellement sur le concept de brisure de symétrie, lequel est généralement inhérent à ces types de transitions. Dans ce contexte de brisure de symétrie, il devient primordial de définir le paramètre d'ordre, qui sert à déterminer l'ordre de la transition de phase (comme indiqué dans le Tableau I.1). Par ailleurs, les systèmes physiques sont caractérisés différemment en fonction du paramètre d'ordre associé.

Nature de transition	Paramètre d'ordre
Para-Ferromagnétique	Aimantation M
Para-Antiferromagnétique	Aimantation sous réseaux $M1$ et $M2$
Para-électrique	Polarisation
Supraconductivité	Gap supraconducteur Δ
Gaz-liquide	Masse volumique ρ
Superfluidité	Fonction d'onde superfluide

Tableau I.1 : Certains exemples des paramètres d'ordre [19]

De cette manière, Landau a introduit deux classifications distinctes pour les transitions de phase :

◆ **Transitions avec paramètre d'ordre :**

Une discontinuité se produit lorsqu'une la transition du première ordre évolue vers le second-ordre. On assiste à brisure de symétrie, ce qui signifie que le paramètre d'ordre change de manière significative et observable.

◆ **Transitions sans paramètre d'ordre :**

Le paramètre d'ordre subit une discontinuité, ce qui implique que ces transitions sont systématiquement de premier ordre selon la définition d'Ehrenfest.

I.6. Processus d'interaction d'échange magnétique

Cet effet se manifeste au niveau quantique entre particules et joue un rôle fondamental dans la détermination des caractéristiques magnétiques d'un matériau. On peut classer cette interaction en deux catégories principales: l'échange "**direct**" et l'échange "**indirect**".

⇒ **Interaction d'échange direct**

Cette interaction se déclenche lorsque les moments magnétiques sont positionnés à proximité, permettant ainsi un chevauchement de leurs fonctions d'onde. Cette dernière présente une grande intensité, mais sa portée est limitée et diminue rapidement avec l'accroissement de la distance.

⇒ Interaction d'échange indirect

Cette interaction englobe trois interactions majeures, à savoir :

❖ Interaction double échange

Ce type de mécanisme se manifeste entre les ions ayant des états ioniques différents. Il se produit spécifiquement entre les ions 3d qui ont à la fois des électrons localisés et délocalisés. Cependant, un alignement soit ferromagnétique ou antiferromagnétique, survient entre deux particules possédant un nombre d'électrons de valence identiques. En revanche, ce type d'interaction intervient exclusivement lorsque l'un des atomes possède un électron de valence supplémentaire par rapport à l'autre [20].

❖ Interaction super-échange

Il s'agit d'une interaction qui décrit les échanges entre les moments magnétiques des ions qui ne peuvent pas interagir directement en raison de leur éloignement, mais qui interagissent plutôt par le biais d'un ion non magnétique. Ce concept a été d'abord introduit par Hendrik Kramers en 1934 [21] et a ensuite été développé par les travaux de Philip Anderson en 1950 [22].

❖ Interaction RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida)

C'est un mécanisme d'interaction magnétique qui se produit entre les moments magnétiques localisés dans un matériau cristallin. Elle constitue une interaction d'échange indirecte entre les spins de deux impuretés magnétiques, qui est facilitée par les électrons de conduction présents dans le cristal où ces impuretés sont intégrées [10, 23]. Elle se caractérise par sa puissante intensité et son étendue dans l'espace sur de longues distances. Cette interaction tire son nom des physiciens qui ont contribué à sa compréhension : Malvin Ruderman, Claude Kittel, Tadao Kasuya et Kazuo Yosida. La théorie RKKY trouve sa principale utilité dans l'explication de la magnétorésistance géante (GMR) [24], qui en constitue son application majeure.

1.7. Matériaux magnétiques doux et durs

En fonction de la largeur de boucle d'hystérésis et la facilité avec laquelle ils peuvent être aimantés, on peut catégoriser les matériaux ferromagnétiques et ferrimagnétiques en deux groupes distincts : les matériaux magnétiques doux et les matériaux magnétiques durs [25].

❖ Matériaux magnétiques doux

Parmi les propriétés cruciales de ce type de matériaux se trouve leur capacité à réagir à un champ magnétique extérieur de faible intensité. Ces matériaux présentent de faibles valeurs de champ coercitif, ce qui se traduit par un cycle d'hystérésis étroit ($H_C < 12,5$ Oe dans les matériaux les plus performants), une perméabilité très élevée ($\mu > 10^3$) et une résistivité électrique élevée. Pour être considérés comme de bons matériaux magnétiques doux, ils doivent également permettre un déplacement facile des parois de domaine sous l'effet d'un champ magnétique appliqué, ce qui nécessite une faible quantité d'impuretés et de défauts. Ces matériaux sont utilisés dans diverses applications, notamment les transformateurs, les moteurs électriques et les capteurs

❖ Matériaux magnétiques durs

Ce type de matériaux se caractérise par un champ coercitif élevé, ce qui signifie qu'ils ont des cycles d'hystérésis extrêmement larges (supérieurs à 10 KA/m), une aimantation rémanente difficile à désaimanter et une faible perméabilité. Récemment, les efforts de recherche se focalisent sur la fabrication des matériaux nanostructures qui combinent une phase assurant la coercivité et l'aimantation, afin d'obtenir des matériaux à haute rémanence. Ils sont utilisés pour fabriquer des aimants permanents, tels que ceux utilisés dans les haut-parleurs, les moteurs électriques et les générateurs.

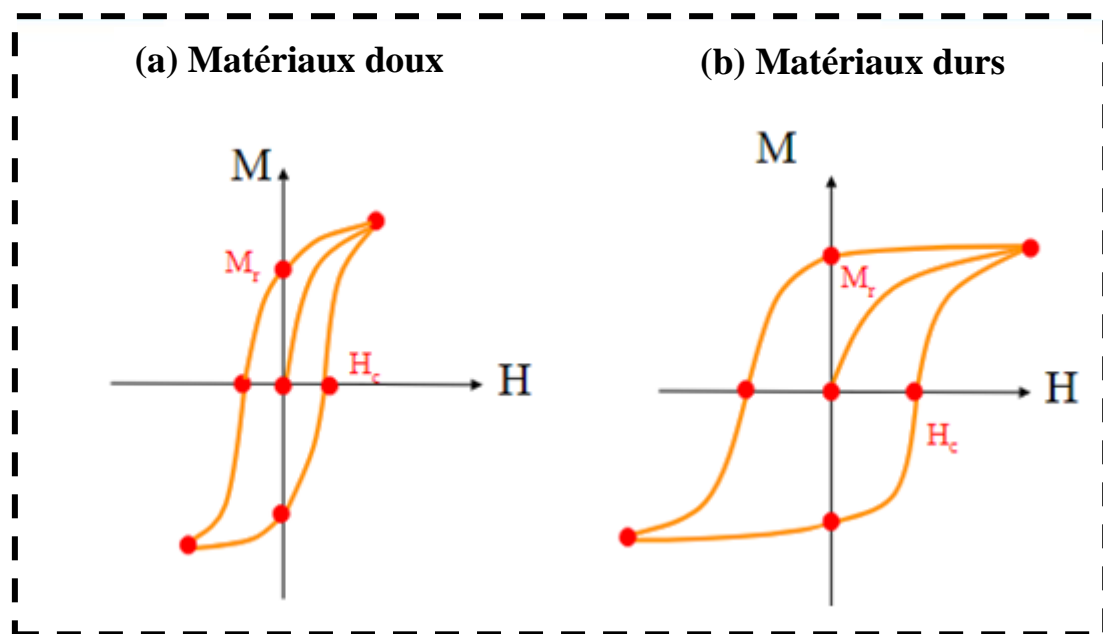


Figure I.3 : Boucles d'hystérésis pour les matériaux magnétiques doux (a) et dur (b)

I.8. Principe de la réfrigération magnétique

Le principe de la réfrigération magnétique est basé sur l'exploitation des propriétés magnétiques des matériaux pour produire un réchauffement ou un refroidissement. Il repose sur l'effet magnétocalorique (EMC), qui est la capacité d'un matériau à changer de température lorsqu'il est soumis ou non à un champ magnétique (Figure I.4). Lorsqu'un matériau magnétocalorique est placé dans un champ magnétique, les moments magnétiques des atomes ou des spins s'alignent avec le champ, ce qui peut entraîner une augmentation ou une diminution de l'entropie magnétique du système. Cette variation d'entropie magnétique est accompagnée d'un changement de température du matériau.

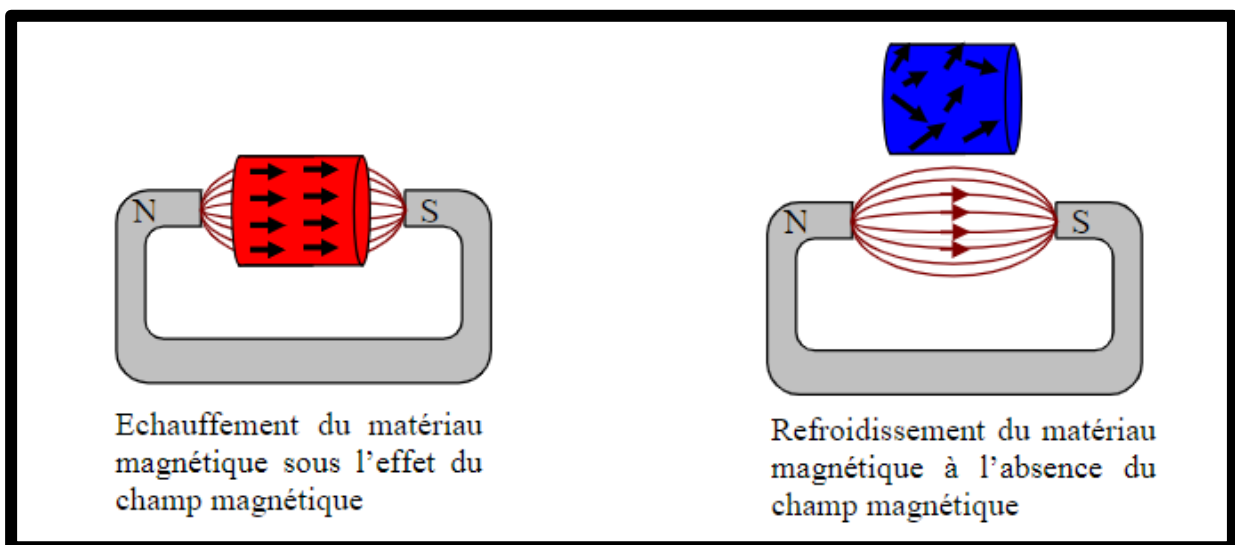


Figure I.4 : Principe l'effet magnétocalorique

L'effet magnétocalorique (EMC) est le résultat direct du couplage magnétothermique entre les différentes contributions du matériau magnétocalorique à l'entropie totale S [26]. Les contributions impliquées dans l'effet magnétocalorique sont d'ordre magnétique (S_M), électronique (S_E) et de réseau (S_R)

$$S(T, B) = S_M(T, B) + S_E(T) + S_R(T) \quad (I.6)$$

Lorsqu'un matériau magnétocalorique est soumis à un champ magnétique, le processus qui se produit est généralement rapide, et aucun échange de chaleur ne se produit avec l'environnement. Dans ce scénario adiabatique, l'entropie totale S , qui est normalement la somme des entropies magnétique, électronique et de réseau, reste constante, tandis que l'aimantation du matériau augmente. Cela signifie que l'entropie magnétique S_M diminue, tandis que les entropies électronique S_E et de réseau S_R doivent augmenter en compensation.

Dans ce cas, l'effet magnétocalorique généré se manifeste par un changement de température adiabatique.

$$\Delta T_{ad} = - \int_0^B \left(\frac{T}{C_p} \right) \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_B dB \quad (I.7)$$

Si le champ magnétique est appliqué de manière isotherme, l'effet magnétocalorique résultant sera caractérisé par le changement d'entropie magnétique

$$\Delta S = \int_0^B - \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_B dB \quad (I.8)$$

Où B représente le champ magnétique appliqué, T est la température du matériau et M(B,T) correspond à la magnétisation.

I.9. Principe de dilution

La dilution s'avère être le moyen optimal pour simuler la présence d'impuretés en petites proportions au sein d'un matériau. En outre, l'importance du procédé de dilution (ou du désordre en général) ne peut être sous-estimée, étant donné que les systèmes purs ne sont pas présents dans la nature. La croissance contrôlée de matériaux non homogènes peut permettre de sélectionner le comportement physique souhaité [27]. Dans l'analyse des propriétés magnétiques des nanomatériaux, l'acte de dilution ou d'introduction de désordre consiste essentiellement à incorporer des atomes non magnétiques qui viennent se substituer à certains atomes d'origine, comme illustré dans la figure I-9. La concentration de ces atomes non magnétiques doit demeurer négligeable en comparaison avec celle des atomes constituant le matériau initial.

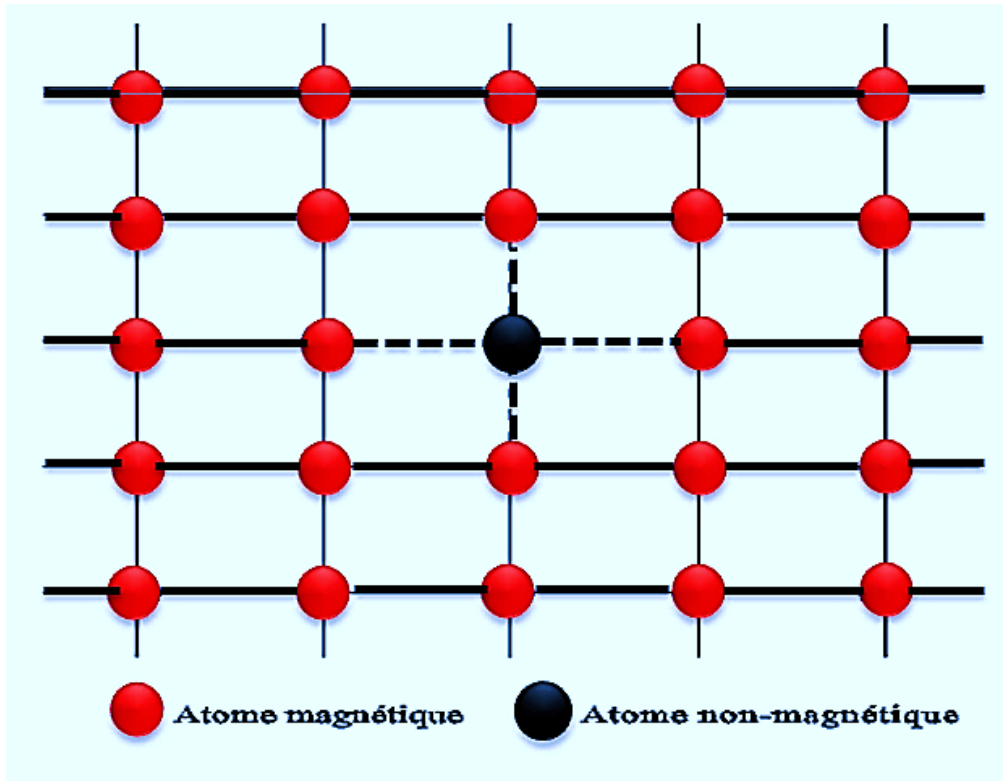


Figure I.5 : Principe de la dilution dans un nanomatériau

I.10. Modèles magnétiques de Spin

Un modèle de spin est une construction mathématique qui peut être formulée dans un contexte classique ou quantique. Il est couramment employé en physique afin d'expliquer les phénomènes magnétiques. Ces modèles de spin sont divers et varient en fonction du nombre de degrés de liberté ainsi que des termes d'interaction inclus dans leur Hamiltonien. Différents types de modèles classiques de spin sont utilisés en physique. Ces modèles peuvent être classés en modèles discrets et modèles continus. Parmi les modèles discrets, on trouve le modèle d'Ising et le modèle de Potts. Les modèles continus, quant à eux, font intervenir des vecteurs unitaires bidimensionnels, comme dans le modèle XY, ou des vecteurs unitaires tridimensionnels, comme dans le modèle classique de Heisenberg. De plus, d'autres modèles tels que les modèles de Blume-Capel et Blume-Emery Griffiths [28, 29].

I.10.1. Modèle d'Ising

Ce modèle mathématique est utilisé en mécanique statistique pour décrire le phénomène du ferromagnétisme [30]. Il repose sur des variables discrètes qui représentent les moments magnétiques dipolaires des spins atomiques. Les spins dans ces modèles sont caractérisés par des valeurs discrètes, généralement +1 ou -1. Ces spins sont organisés dans un réseau, ce qui

leur permet d'interagir les uns avec les autres en fonction de leur voisinage. Ce modèle simplifié offre une approche analytique permettant d'étudier et de détecter les transitions de phase.

Le modèle unidimensionnel d'Ising, résolu par Ising dans sa thèse en 1924 [31], ne présentait pas de transition de phase. En revanche, c'est le modèle d'Ising sur un réseau carré bidimensionnel qui est l'un des modèles statistiques les plus simples pour observer une transition de phase [32]. Toutefois, ce modèle est beaucoup plus complexe, et il a fallu attendre l'analyse de Lars Onsager en 1944 pour obtenir une description détaillée [33]. Il est largement utilisé comme modèle de référence pour tester les concepts d'échelle et d'universalité [34]. Il sert de base pour évaluer comment les propriétés macroscopiques d'un système peuvent émerger à partir des interactions microscopiques entre les spins.

Dans le modèle d'Ising, les spins interagissent selon l'Hamiltonien suivant :

$$\mathcal{H} = -J_{ij} \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j - H \sum_{\langle i,j \rangle} S_i \quad (I.8)$$

Où le paramètre J_{ij} symbolise l'interaction d'échange entre les spins $S_i = \pm 1$ qui sont en interaction en tant que premiers voisins, indiqués par $\langle i, j \rangle$. Les signes négatifs présents dans cet Hamiltonien indiquent simplement la convention adoptée pour le signe du paramètre d'interaction J_{ij} et du champ magnétique extérieur H .

Ainsi, on peut identifier trois catégories différentes d'interactions :

- $\Rightarrow J_{ij} > 0$: L'interaction entre les spins S_i et S_j est ferromagnétique, ce qui favorise l'alignement parallèle des spins.
- $\Rightarrow J_{ij} < 0$: L'interaction entre les spins S_i et S_j est antiferromagnétique, ce qui favorise l'alignement antiparallèle des spins.
- $\Rightarrow J_{ij} = 0$: Il n'y a pas d'interaction entre les spins S_i et S_j , ce qui signifie qu'ils n'interagissent pas magnétiquement entre eux.

En outre, comme nous le découvrirons dans la partie suivante de ce chapitre, l'utilisation de l'approche Monte Carlo à la simulation d'un système Ising de dimensions finies offre la possibilité de calculer les valeurs de diverses propriétés physiques, notamment l'aimantation,

la susceptibilité, la polarisation, l'énergie, la capacité calorifique et l'entropie magnétique à une température donnée.

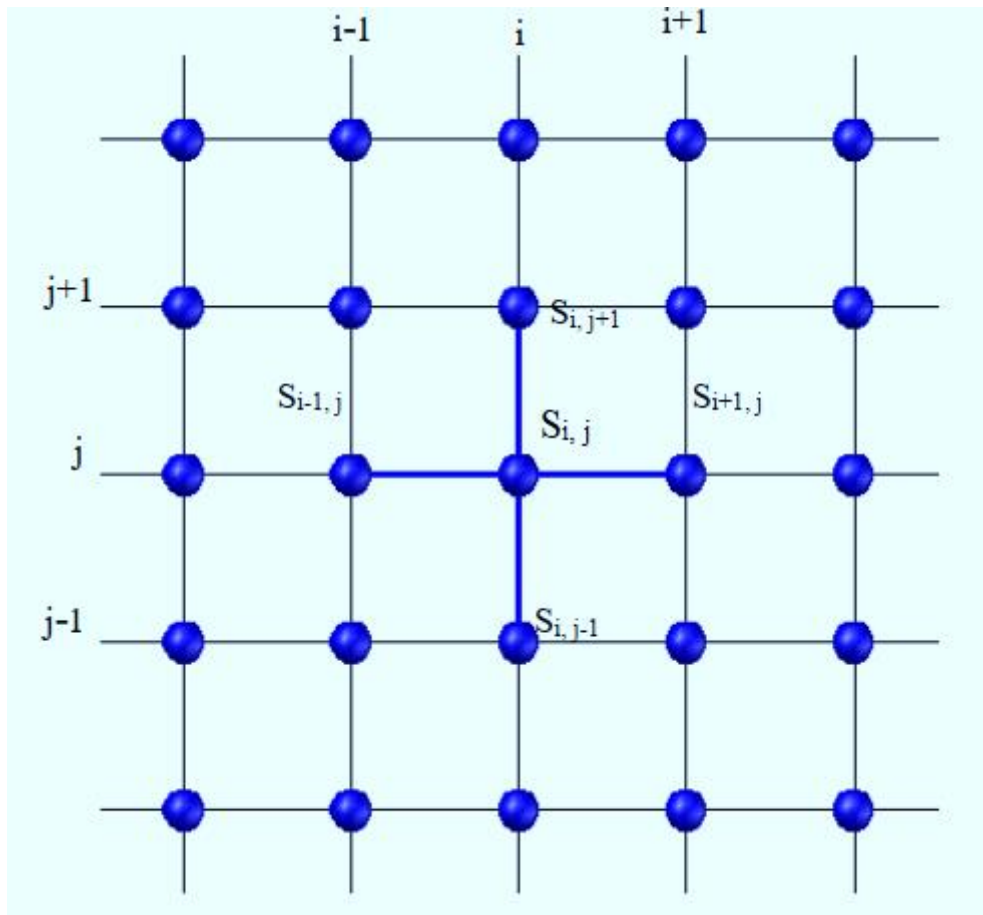


Figure I.6 : Modèle d'Ising pour un réseau bidimensionnel montrant l'interaction avec les proches voisins $S_{i,j+1}$, $S_{i,j-1}$, $S_{i+1,j}$ et $S_{i-1,j}$.

I.10.2. Modèle Blume-Emery-Griffiths (BEG)

Ce modèle de spin développé en 1971, est une approche qui englobe une vaste gamme de phénomènes critiques et multi-critiques. [29, 30]. Initialement, il a été développé pour décrire la séparation de phase et la superfluidité dans les mélanges de ^3He - ^4He [31]. Par la suite, il a été appliqué aux systèmes caractérisés par la présence de trois états de spin distincts. Il se distingue parmi les rares modèles simples capables de représenter à la fois des transitions de phase premier ordre et second ordre.

L'Hamiltonien qui caractérise le modèle (BEG) est exprimé de la manière suivante :

$$\mathcal{H} = -J_{ij} \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j - K \sum_{\langle i,j \rangle} S_i^2 S_j^2 - D \sum_{\langle i \rangle} S_i^2 - H \sum_{\langle i \rangle} S_i \quad (I.9)$$

Les deux premières sommes se rapportent aux interactions entre les spins voisins notés $\langle i,j \rangle$. J_{ij} représente l'interaction bilinéaire tandis que K désigne l'interaction biquadratique. D et H correspondent au champ cristallin et au champ magnétique externe respectivement.

I.10.3. Modèle Blume-Capel

Le modèle de spin de Blume-Capel est largement étudié en physique statistique [37, 36]. Il est considéré comme une version particulière du modèle BEG mentionné précédemment et se distingue par une caractéristique spéciale : une valeur de K égale à zéro. Ce modèle représente essentiellement un système d'Ising ferromagnétique où les spins ont une valeur de 1. Blume l'a introduit en 1966 afin d'expliquer la transition de phase magnétique de premier ordre observée dans le dioxyde d'uranium (UO_2) [38]. Par la suite, Capel a étendu ce dernier pour en faire un outil théorique plus général permettant d'étudier les transitions de phase magnétiques de premier ordre [39].

L'expression mathématique qui définit l'Hamiltonien de ce modèle est la suivante :

$$\mathcal{H} = -J_{ij} \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j - D \sum_{\langle i \rangle} S_i^2 \quad (I.10)$$

Les positions i et j sont les plus proches voisins et D symbolise l'effet du champ cristallin. Ce modèle de spin sera utilisé dans les prochains chapitres pour examiner les propriétés magnétiques de certaines nanostructures.

I.11. Conditions aux bords

Afin de réaliser une extrapolation vers la limite thermodynamique de manière fiable, il est essentiel de définir précisément certaines conditions aux bords. Ce sont des paramètres essentiels dans nombreux secteurs scientifiques et techniques tels que la physique, les mathématiques et l'ingénierie. Elles définissent les limites ou les contraintes imposées à un système ou à un phénomène aux extrémités de son domaine d'étude. Ainsi ils sont des éléments clés dans la modélisation de systèmes complexes. Leur utilisation appropriée permet

de mieux comprendre et prédire le comportement d'un système en tenant compte de ses interactions avec son environnement extérieur.

I.11.1. Conditions aux limites périodiques

L'objectif de cette méthode est éliminer les limitations aux bords du système. En pratique, cela implique de joindre la première ligne de spins du réseau avec la dernière ligne, ainsi que la première colonne du réseau avec la dernière colonne. Ce processus est schématisé dans la Figure I.7.

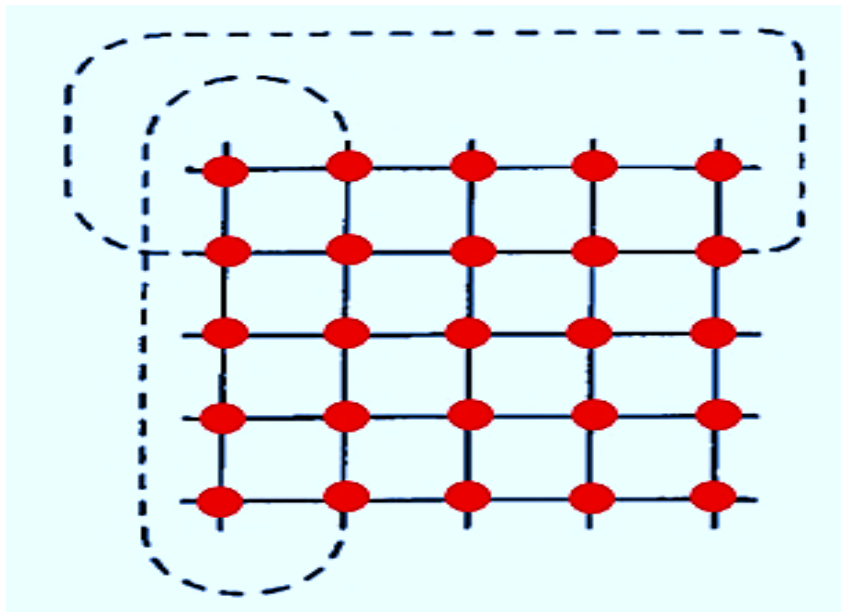


Figure I.7 : Conditions aux limites périodiques pour le modèle d'Ising à deux dimensions [40]

I.11.2. Conditions aux limites de bords libres

Dans ce cas, les atomes situés à l'extrémité d'une rangée ne sont pas en contact avec d'autres atomes dans cette direction (comme illustré dans la Figure I.8). Il convient de souligner que les limites extérieures sont particulièrement adaptées à certaines situations, comme la modélisation du comportement des particules ou des nanoparticules super-paramagnétiques.

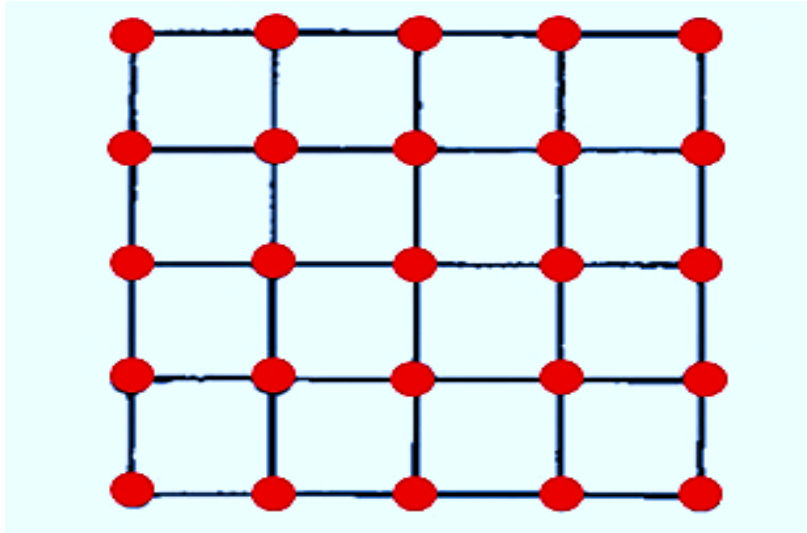


Figure I.8 : Conditions aux limites de bords libres pour le modèle d’Ising bidimensionnel [40]

I.12. Approches numériques pour la simulation

Dernièrement, la modélisation et la simulation informatique ont connu des avancées considérables dans différents domaines, particulièrement dans l’étude des caractéristiques physiques. La modélisation regroupe des techniques qui permettent d’étudier des problèmes physiques et mathématiques en utilisant des ordinateurs. Les simulations numériques sont utilisées pour interpréter les données expérimentales et anticiper le comportement de substances dans des conditions extrêmes. Elles sont également utiles pour concevoir de nouveaux systèmes, tels que les nanomatériaux. Parmi les approches de simulation numérique, nous nous sommes concentrés sur les simulations de Monte Carlo.

I.12.1. Simulations de Monte Carlo

C’est une méthode puissante pour explorer les propriétés magnétiques des matériaux. Elle permet de simuler les interactions entre les particules magnétiques et d’obtenir des résultats précis sur le comportement magnétique d’un matériau donné. Cette approche présente plusieurs avantages. Elle offre la possibilité d’explorer un large éventail de paramètres et de conditions expérimentales difficile à réaliser au laboratoire. Cette méthode permet ainsi d’obtenir des résultats statistiquement fiables en effectuant un grand nombre de simulations. Cette méthode trouve également son application dans plusieurs domaines tels que la physique des matériaux, l’électronique et la nanotechnologie. Elle permet notamment de prédire les propriétés magnétiques des matériaux à l’échelle atomique et moléculaire, ce qui est essentiel

pour le développement de nouveaux dispositifs électroniques et technologies avancées. La méthode Monte Carlo (MC) est un ensemble étendu d'algorithmes de calcul qui se basent sur la répétition d'échantillonnages aléatoires afin d'obtenir des résultats numériques [41]. Cette méthode est fréquemment employée pour résoudre des défis complexes en physique et en mathématiques, surtout lorsque l'application d'autres méthodes devient ardue, voire impossible. Dans le contexte de la physique, elle se révèle particulièrement pertinente pour modéliser des systèmes qui présentent de multiples degrés de liberté à couplages multiples. Cela inclut des domaines tels que la dynamique des fluides, l'étude des matériaux désordonnés, la simulation des propriétés des solides, ainsi que la modélisation de structures cellulaires fortement couplées.

Nous examinons en détail toutes les étapes de cette simulation. Pour commencer, nous analysons le processus physique qui conduit à la formulation de l'équation maîtresse :

I.12.2. Équation Maîtresse et Estimation

L'approche de Monte Carlo repose sur la simulation de transitions aléatoires entre différents états d'un système. Son objectif est d'estimer la probabilité de trouver le système dans un état donné lors de la simulation, ce qui correspond au poids de cet état dans le système réel. Pour cela, il est nécessaire de définir une règle qui régit les transitions entre les états pendant la simulation [42-44]. Les processus physiques sous-jacents qui conduisent à l'élaboration de l'équation maîtresse s'écrivent :

$$\frac{dP_a}{dt} = \sum_b (P_b(t) \cdot W_{ba} - P_a(t) \cdot W_{ab}) \quad (I.11)$$

Où :

- ❖ $P_b(t)$ la probabilité de trouver le système dans la configuration 'a' à l'instant t connaissant la distribution des probabilités à l'instant initial.
- ❖ W_{ab} : La probabilité de passage de la configuration de 'a' à 'b' par unité de temps.

Les probabilités W_{ab} sont sélectionnées de manière à ce que la solution à l'état d'équilibre de l'équation maîtresse corresponde à la distribution de Boltzmann P_a fournie par :

$$P_a = \frac{e^{-\frac{E_a}{kT}}}{Z} \quad (I.12)$$

Où :

- ❖ E_a l'énergie de l'état 'a'.
- ❖ T est la température.
- ❖ k est la constante de Boltzmann.
- ❖ Z est la fonction de partition du système.

Pour obtenir une estimation des quantités observables, nous réalisons une sommation sur l'ensemble des états 'a' du système, en prenant en compte leurs probabilités respectives.

$$\langle Q \rangle = \frac{\sum_a Q_a e^{-\beta E_a}}{\sum_a e^{-\beta E_a}} \quad (I.13)$$

Où

- ❖ $\beta = 1/kT$
- ❖ T : Température absolue,
- ❖ K : Constante de Boltzmann.
- ❖ E : L'énergie interne prend en compte les interactions qui influencent le comportement du système et est calculée en sommant les contributions de tous les états de spin.

Pour les systèmes de grande taille, il est plus efficace d'effectuer une moyenne sur un sous-ensemble d'états, même si cela peut introduire une certaine imprécision dans les calculs. La méthode Monte Carlo consiste à sélectionner de manière aléatoire un sous-ensemble d'états, noté $\{a_1 \dots a_M\}$, en utilisant une distribution de probabilité P_a définie par l'utilisateur. En utilisant cette approche, nous obtenons une estimation précise de la quantité Q .

$$Q_M = \frac{\sum_{i=1}^M Q_{ai} p_{ai}^{-1} e^{-\beta E_{ai}}}{\sum_{j=1}^M p_{aj}^{-1} e^{-\beta E_{aj}}} \quad (I.14)$$

La précision de l'estimation de Q sur un modèle réduit s'améliore à mesure que le nombre M d'états dans l'échantillon augmente, se rapprochant ainsi de la vraie valeur de Q . On peut formuler cela de la manière suivante :

$$\langle Q \rangle = \lim_{M \rightarrow \infty} Q_M = Q_M \quad (I.15)$$

La nécessité de déterminer M est donc requise pour améliorer la précision de l'expression de Q . Pour ce faire, il suffit de considérer une répartition équitable entre les états du système, c'est-à-dire que toutes les probabilités p_a sont identiques [45-47]. En d'autres termes :

$$Q_M = \frac{\sum_{i=1}^M Q_{ai} p_{ai}^{-1} e^{-\beta E_{ai}}}{\sum_{j=1}^M p_{aj}^{-1} e^{-\beta E_{aj}}} = \frac{\sum_{i=1}^M Q_{ai} e^{-\beta E_{ai}}}{\sum_{j=1}^M e^{-\beta E_{aj}}} \quad (I.16)$$

I.12.3. Fondements de la simulation Monte Carlo

Les fondements essentiels de la simulation Monte Carlo reposent sur :

1. Échantillon important

La méthode Monte Carlo utilise une stratégie de réduction de la variance, basée sur l'observation que certaines valeurs des variables aléatoires utilisées dans la simulation ont un impact plus significatif sur le paramètre estimé que d'autres. En accordant une importance accrue à ces valeurs "essentielles", il est possible de réduire la variance de l'estimateur. Ainsi, la simulation Monte Carlo repose sur la sélection d'un échantillon comprenant les états prédominants, connu sous le nom d'échantillonnage important [48]. En analysant l'équation maîtresse, on constate que la moyenne est calculée au cours du temps en prenant en compte les états traversés par le système pendant la mesure. Il n'est pas nécessaire de supposer que le système traverse tous les états lors de la mesure.

Les systèmes réels fonctionnent de manière similaire à une méthode de Monte Carlo pour estimer leurs propriétés. Les états de l'échantillon ne sont pas tous équiprobables, mais ils suivent la distribution de probabilité de Boltzmann, ce qui permet d'améliorer la précision de l'estimation. Ainsi, l'estimation Q_M peut être formulée de la manière suivante :

$$Q_M = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M Q_{ai} \quad (I.17)$$

Ainsi, ce concept consiste à construire une chaîne de Markov adaptée, où les configurations sont sélectionnées en fonction de leurs poids, conformément à la distribution de probabilité de Boltzmann [49, 50].

2. Chaîne de Markov

Un aspect crucial de la simulation Monte Carlo est la génération aléatoire d'états conformément à la distribution de probabilité de Boltzmann. Généralement, les simulations Monte Carlo utilisent le processus de Markov [51] pour créer ces états. Le processus de Markov est un modèle stochastique qui représente une séquence d'événements successifs. Dans ce modèle, la probabilité de chaque événement dépend uniquement de l'état actuel et non des états passés [52, 53]. Dans notre contexte, le processus de Markov génère un état b à partir d'un état a , ce qui implique que la probabilité de transition $\omega(a \rightarrow b)$ doit satisfaire les critères suivants :

⇒ Il est constant dans le temps.

⇒ Il dépend des propriétés du système que des états a et b .

Cela indique que la probabilité de transition $\omega(a \rightarrow b)$ entre un état « a » et un autre état « b » dans le Markov reste invariable et doit répondre à la relation de fermeture [18].

$$\sum_b \omega(a \rightarrow b) = 1 \quad (I.18)$$

La probabilité de transition $\omega(a \rightarrow a)$ n'est pas obligatoirement nulle.

En outre, pour mettre en œuvre efficacement un processus de Markov, deux conditions supplémentaires s'avèrent essentielles : l'ergodicité et la balance détaillé.

3. Ergodicité

C'est est une condition essentielle au cours du processus de Markov permettant le passage de n'importe quel état initial du système vers un nouvel état. Cette condition est cruciale afin de générer les états avec leurs probabilités de Boltzmann. En d'autres termes, chaque état " b " a une probabilité non nulle " P_b " de se produire dans la distribution de Boltzmann, ce qui signifie que cet état peut être atteint à partir d'un état " a " distinct sans aucune restriction. Cette propriété permet de reprendre le processus à partir de l'état initial pour atteindre de nouveaux états [54].

4. Balance détaillé

La balance détaillée assure que la distribution obtenue lorsque le système atteint l'équilibre correspond à une distribution de probabilité de Boltzmann. En état d'équilibre, les taux de transition entre un état et lui-même sont identiques [55]. En d'autres termes, la probabilité de

passer d'un état à lui-même est égale à la probabilité de rester dans cet état. Cette condition assure que la distribution résultante est en accord avec la distribution de probabilité de Boltzmann, ce qui est crucial pour comprendre le comportement des particules dans un système en équilibre thermodynamique. Ainsi, on peut formuler cela de la manière suivante :

$$\sum_b P_a \omega(a \rightarrow b) = \sum_b P_b \omega(b \rightarrow a) \quad (I.19)$$

A partir de :

$$\sum_b \omega(a \rightarrow b) = 1 \quad (I.20)$$

On a :

$$P_a = \sum_b P_b \omega(b \rightarrow a) \quad (I.21)$$

Lorsque les ensembles de probabilités de transition respectent l'équation (I.21), la distribution de probabilité P_a devient un état stable résultant de la dynamique du processus de Markov.

Cependant, Il est essentiel de noter que même si cette équation est respectée, cela ne garantit pas que l'on puisse atteindre la distribution « P_a » à partir de n'importe quel état initial du système. Pour cela, on suppose que les probabilités de transition $\omega(a \rightarrow b)$ correspondent aux éléments de la matrice W , qui est la matrice de transition de Markov.

Si l'on considère $q_a(t)$ comme la probabilité à un moment donné dans chaque état le long de la chaîne de Markov, alors la probabilité d'être dans l'état b à l'instant $t+1$ peut être exprimée de la manière suivante :

$$q_b(t+1) = \sum_a \omega(a \rightarrow b) q_a(t) \quad (I.22)$$

La formule I.22 peut exprimer comme suit en utilisant la notation matricielle :

$$\mathbf{Q}(t+1) = \mathbf{W} \cdot \mathbf{Q}(t) \quad (I.23)$$

En utilisant la notation $Q(t)$ pour représenter le vecteur contenant les poids statistiques $q_a(t)$.

À l'état d'équilibre, le processus de Markov suivra les conditions suivantes :

$$Q(\infty) = W \cdot Q(\infty) \quad (I.24)$$

Néanmoins, le processus peut également atteindre l'équilibre dynamique en faisant pivoter Q le long de toute la chaîne, ce qui fait que $Q(\infty)$ s'exprime comme suit :

$$Q(\infty) = W^n \cdot Q(\infty) \quad (I.25)$$

Où : n est le nombre de cycle limite.

En réalité, l'équation (I.21) n'assure pas nécessairement l'équilibre défini par la distribution. Lorsque l'on choisit une probabilité de transition pour satisfaire l'équation (I.21), la chaîne de Markov peut converger vers une seule probabilité d'équilibre de distribution, notée p_a . Cependant, il est important de noter qu'un nombre quelconque de cycles limites de la forme (I.25) peut également se former. Afin de résoudre cette problématique, nous introduisons la condition de balance détaillée, qui est formulée comme suit :

$$p_a W(a \rightarrow b) = p_b W(b \rightarrow a) \quad (I.26)$$

Cette condition permet d'éliminer la limitation des cycles limites. À mesure que le temps s'étend vers l'infini, $Q(t)$ converge de manière exponentielle vers le vecteur propre associé à la plus grande valeur propre. En conséquence, nous pouvons reformuler l'équation (I.26) de la manière suivante :

$$P = W \cdot P \quad (I.27)$$

En état d'équilibre, puisque le temps tend vers l'infini ($t \rightarrow \infty$), la matrice $Q(t)$ converge vers la matrice P . Les systèmes du monde réel se conforment à la condition de la balance détaillée.

Afin que la distribution à l'équilibre corresponde à la distribution de Boltzmann, une condition supplémentaire doit être établie :

$$\frac{\omega(a \rightarrow b)}{\omega(b \rightarrow a)} = \frac{P_b}{P_a} = e^{-\beta(E_b - E_a)} \quad (I.28)$$

L'objectif est de créer un programme basé sur les contraintes de l'équation (I.28) et de la relation (I.20) qui génère une chaîne de Markov à partir des probabilités de transition. Ce programme sera laissé en exécution pendant une période suffisamment longue pour permettre à $q_a(t)$ de converger vers l'état d'équilibre, correspondant à la distribution de Boltzmann P_a .

5. Taux d'acceptation

Face à l'inadaptation parfois des méthodes standards pour répondre aux besoins spécifiques de quelques problèmes, de nouveaux algorithmes sont développés, proposant ainsi plusieurs processus de Markov. Il est essentiel de noter que lorsque la prédiction du processus de Markov optimal pour une transition précise devient complexe, le taux d'acceptation est utilisé pour déterminer des probabilités de transition efficaces pour l'ensemble des processus de Markov [55, 56]. De cette manière, la probabilité de transition peut être définie de manière appropriée :

$$\omega(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b}) = \mathbf{g}(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b}) \quad (I.29)$$

- $\mathbf{g}(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})$: représente la probabilité de sélection, selon laquelle l'algorithme produit l'état final \mathbf{b} à partir de l'état initial \mathbf{a} .
- $A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})$: Le taux d'acceptation, également appelé probabilité d'acceptation, $A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})$, indique la probabilité qu'une transition de l'état initial \mathbf{a} à l'état final \mathbf{b} soit acceptée par l'algorithme. Lorsque nous passons de l'état \mathbf{a} à l'état \mathbf{b} , l'algorithme génère cet état \mathbf{b} et nous devons décider de l'accepter et de modifier l'état du système en conséquence. Cette décision d'acceptation est associée à une fraction de temps $A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})$, tandis que le temps reste dans l'état \mathbf{a} . Le taux d'acceptation est un nombre compris entre zéro et un, ce qui signifie que $0 < A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b}) < 1$, et il représente la probabilité d'acceptation de la transition de l'état \mathbf{a} à l'état \mathbf{b} .

Opter pour $A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})=0$ revient à fixer $\omega(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b}) = 1$ pour chaque transition. Cela se traduit par une complète flexibilité dans le choix de la probabilité de sélection :

$$\frac{\omega(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})}{\omega(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})} = \frac{\mathbf{g}(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})}{\mathbf{g}(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})A(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})} \quad (I.30)$$

Le rapport entre $A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})$ et $A(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})$ peut varier dans une plage de valeurs allant de 0 à l'infini, ce qui implique que les probabilités de sélection $\mathbf{g}(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})$ et $\mathbf{g}(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})$ sont flexibles et peuvent prendre n'importe quelle valeur.

Afin de garantir une exécution efficace de l'algorithme et d'éviter qu'il prenne beaucoup de temps, nous optons pour une acceptation proche de 1. Étant donné que le rapport $\frac{A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})}{A(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})}$ est fixé, on prend l'une des deux probabilités, soit $A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})$ ou $A(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})$, égal à 1, tandis que l'autre est déterminée de manière à maintenir à la balance. En conséquence, le meilleur algorithme

ajuste de manière appropriée la probabilité $g(a \rightarrow b)$ et établit approximativement $A(a \rightarrow b) \approx 1$.

I.12.4. Algorithmes de simulation : l'algorithme Metropolis

L'algorithme Metropolis, introduit par Nicolas Metropolis et ses collaborateurs en **1953** dans un article sur les simulations de gaz dans les sphères dures [57], est largement reconnu comme l'un des algorithmes de Monte-Carlo les plus célèbres et utilisés [58]. Il implique la sélection d'un ensemble de probabilités de transition $g(a \rightarrow b)$ pour chaque transition possible entre les états, ainsi que la détermination d'un ensemble de probabilités d'acceptation $A(a \rightarrow b)$ qui respecte la condition d'équilibre détaillé. Le fonctionnement de l'algorithme consiste à choisir de manière répétée un nouvel état $\{b\}$ et à l'accepter ou à le rejeter de manière aléatoire en fonction des probabilités d'acceptation définies. Si l'état est accepté, le système est modifié, sinon il reste inchangé, et ce processus se répète. Les probabilités de transition $f(a \rightarrow b)$ sont choisies de manière à garantir la condition d'ergodicité, assurant que tous les états sont accessibles les uns aux autres en un nombre fini d'étapes. Dans le contexte du modèle d'Ising, une approche courante pour maintenir une plage étroite d'énergies des systèmes en équilibre thermique est de considérer uniquement les états qui diffèrent de l'état en cours par le retournement d'un seul spin, ce qui est souvent appelé une "dynamique de retournement de spin unique".

Dans l'algorithme de Metropolis, toutes les probabilités de sélection $g(a \rightarrow b)$ pour chaque état possible $\{b\}$ sont uniformément égales. En d'autres termes, chaque transition potentielle a la même probabilité d'être sélectionnée à partir de l'état $\{a\}$. Cependant, toutes les autres probabilités de sélection, celles qui ne correspondent pas à une transition vers un état possible $\{b\}$, sont définies comme étant égales à zéro, ce qui signifie qu'elles ne sont pas prises en compte.

Imaginons que le système comporte N spins. Avec une dynamique de retournement simple, il existe N spins distincts que nous pourrions inverser, créant ainsi N états possibles $\{b\}$ que nous pourrions atteindre à partir de l'état initial $\{a\}$. Dans cette configuration, il existe donc N probabilités de sélection $g(a \rightarrow b)$ qui sont non nulles, et chaque probabilité de sélection individuelle a la même valeur, car elles sont uniformément réparties entre les transitions possibles. Chacune prend la valeur :

$$g(a \rightarrow b) = \frac{1}{N} \quad (I.31)$$

où N est le nombre de spins du système.

Avec ces probabilités de sélection, la condition d'équilibre détaillé s'écrit comme suit :

$$\frac{\omega(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})}{\omega(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})} = \frac{g(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})}{g(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})A(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})} = \frac{A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b})}{A(\mathbf{b} \rightarrow \mathbf{a})} = e^{-\beta(E_b - E_a)} \quad (I.32)$$

On choisit :

$$A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b}) = A_0 e^{-\frac{1}{2}\beta(E_b - E_a)} \quad (I.33)$$

L'algorithme devient plus efficace à mesure que les valeurs d'acceptance ($\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b}$) augmentent, avec A_0 est choisi de manière aléatoire lorsqu'il utilise la dynamique de retournement d'un seul spin, l'algorithme de Metropolis est caractérisé par l'acceptance suivante :

$$A(\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{b}) = \begin{cases} e^{-\beta(E_b - E_a)} & \text{Si } E_b - E_a > 0 \\ 1 & \text{ailleurs} \end{cases} \quad (I.34)$$

I.12.5. Implémentation de l'algorithme Metropolis

L'algorithme Metropolis est largement utilisé et peut être appliqué à tous les modèles capables de générer des nombres aléatoires et d'incorporer des variations d'énergie, tels que le modèle d'Ising. Leur implémentation suit un processus bien défini, comprenant les étapes suivantes :

1. Choix d'une configuration initiale : tous les spins alignés ou spins aléatoirement distribués.
2. Choix aléatoire d'un spin.
3. Tentative de mouvement en le retournant.
4. Calcul de la différence d'énergie ΔE entre la nouvelle configuration avec un spin retourné et la configuration de départ.
5. Si $\Delta E \leq 0$, ce qui signifie que le retournement du spin diminue ou maintient l'énergie, la nouvelle configuration est acceptée.
6. Si $\Delta E > 0$: Génération d'un nombre aléatoire η , selon une distribution uniforme sur l'intervalle $[0,1[$. Si $\eta < \exp(-\Delta E/k_B T)$, où k_B est la constante de Boltzmann et T est la température absolue, la configuration avec le spin inversé est adoptée comme nouvelle configuration.
7. Calcul des grandeurs thermodynamiques.

8. Retour à l'étape 2 et répétition du processus.

(Pour l'organigramme de la méthode Monte Carlo sous l'algorithme de Métropolis : Voir annexe 2)

Chapitre II

Températures de compensation et de transition dans les structures de type Rubrène, Kesterite et Stannite

II.1 Étude la température de compensation de la structure de type Rubrène

II.1.1. Introduction

Récemment, les semi-conducteurs organiques ont attiré une attention considérable vue leur grand potentiel d'applications dans les dispositifs optoélectroniques, les transistors à effet de champ organiques (OFET), les diodes électroluminescentes organiques (OLED), les cellules solaires organiques (OSC) et les transistors organiques [60-64]. De plus, le Rubrène de formule ($C_{42}H_{28}$, 5, 6, 11, 12-tétraphénylnaphtacène) est l'un des matériaux semi-conducteurs organiques les plus étudiés pour leur remarquable mobilité des charges et leur efficacité lumineuse [65-69]. En fait, plusieurs études ont été menées pour montrer toutes les propriétés de la structure du Rubrène expérimentalement et théoriquement.

Expérimentalement, les chercheurs ont mené de nombreuses études intéressantes sur la synthèse du Rubrène en utilisant différentes techniques [70-72]. Les chercheurs ont également examiné théoriquement en détail les propriétés photoélectriques, électroniques, optiques, de transports, élastiques et mécaniques du Rubrène en utilisant des calculs basés sur la théorie fonctionnelle de la densité (DFT) [73-78]. Notre but est d'étudier les propriétés magnétiques de l'îlot nanostructure de type Rubrène formé par des spins mixtes ($S = 1$ et $\sigma = 7/2$), en utilisant les simulations de Monte Carlo sous l'algorithme de Metropolis. Nous avons notamment obtenu la température de compensation entre les spins S - σ et discuté les comportements du cycle d'hystérésis. Dans ce système, nous avons remplacé les atomes de carbone par des spins $S = 1$ et les atomes d'hydrogène par des spins $\sigma = 7/2$. En fait, le spin $S = 1$ correspond aux ions Ni (II) [79], tandis que le spin $\sigma = 7/2$ correspond aux ions Gd (III) [80].

La partie I de ce chapitre est organisée comme suit : Dans la section 2, nous présentons le formalisme dans le cadre des simulations Monte Carlo. Nous élaborons les expressions utilisées pour les paramètres physiques étudiés lors des simulations. Nos résultats sont illustrés dans la section 3, où nous présentons les diagrammes de phase à l'état fondamental. Dans la sous-section 3.1, les propriétés magnétiques et les comportements d'hystérésis sont discutés dans la sous-section 3.2. Enfin, dans la section 4, nous présentons nos conclusions.

II.1.2. Présentation du système et de l'hamiltonien

Nous avons étudié le comportement magnétique d'une structure de type nano-Rubène [81-85, 57], qui est générée par des spins mixtes S et σ dans le cadre du modèle de Blume Capel, en utilisant la méthode Monte Carlo sous l'algorithme Metropolis. Dans cette étude, les conditions de bords libres sont prises en compte.

D'après la Figure II.1, la structure est composée d'un nombre total de spins $N_T = N_S + N_\sigma$, avec N_S est égal à 48 atomes et N_σ vaut 28 atomes. Afin d'atteindre l'état d'équilibre dans nos simulations, les 10^5 premières itérations de l'étape de Monte Carlo ont été exclues et nous avons généré les données jusqu'à 10^6 configurations.

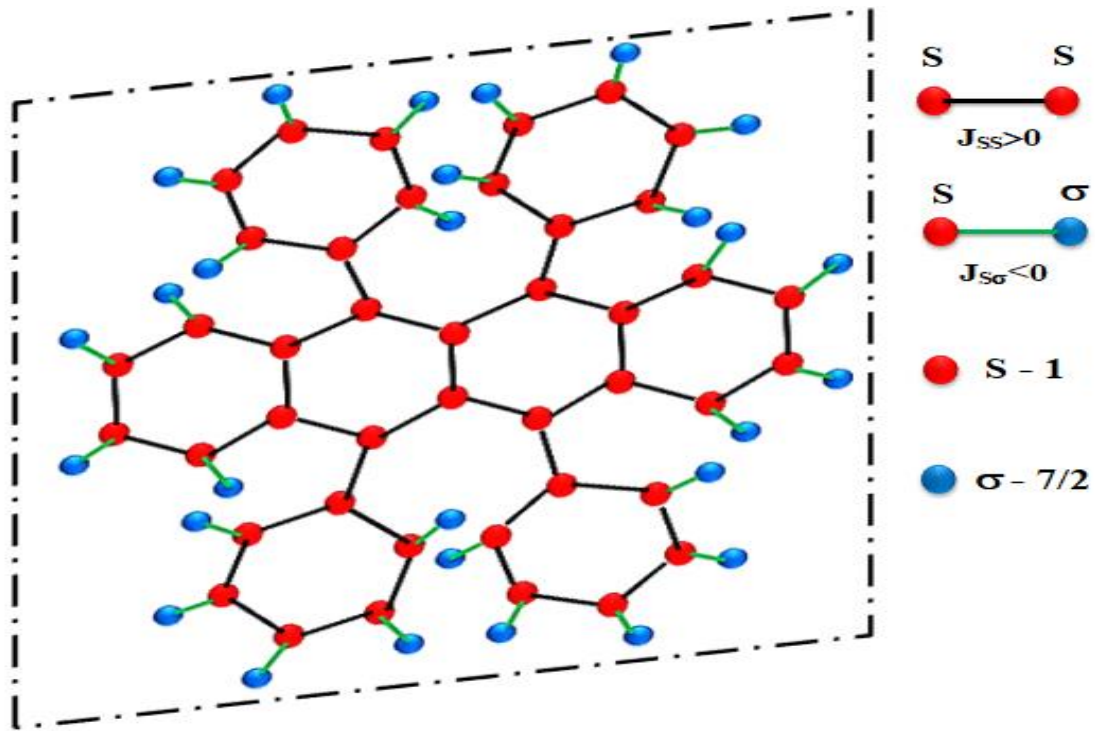


Figure II.1 : Illustration schématique d'une structure de type Rubène avec des spins S (atomes rouges) et σ (atomes bleus) et différents paramètres de couplage d'échange (ligne en couleur).

L'hamiltonien de ce nano-système, avec différents spins comprend l'interaction du plus proche voisin, les champs magnétique externe H et cristallin D , s'écrit comme suit :

$$\mathcal{H} = -J_{SS} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j - J_{S\sigma} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \boldsymbol{\sigma}_j - H \left(\sum_i \mathbf{S}_i + \sum_j \boldsymbol{\sigma}_j \right) - D \left(\sum_i \mathbf{S}_i^2 + \sum_j \boldsymbol{\sigma}_j^2 \right) \quad (\text{II. 1})$$

La notation $\langle i, j \rangle$ représente la sommation sur les spins des plus proches voisins. J_{SS} et $J_{S\sigma}$ correspondent aux interactions d'échange entre les atomes voisins ayant des spins S - S et S - σ respectivement. H désigne le champ magnétique externe, tandis que D représente le champ cristallin qui agit sur tous les spins du système. On suppose que le champ cristallin est le même sur les spins S et σ . Les moments de spin sont caractérisés par S ($\pm 1, 0$) et σ ($\pm 7/2, \pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2$).

II.1.3. Résultats numériques et discussion

Nous avons commencé par l'étude des diagrammes de phase à température nulle (état fondamental) dans la sous-section II.3.1. Ensuite, dans la sous-section II.3.2, nous avons examiné le comportement des aimantations et des susceptibilités thermiques, ainsi que l'aimantation totale en fonction du champ cristallin (D) et du champ magnétique extérieur (H) pour des températures non nulles.

II.1.3.1 Diagrammes de phases à l'état fondamental

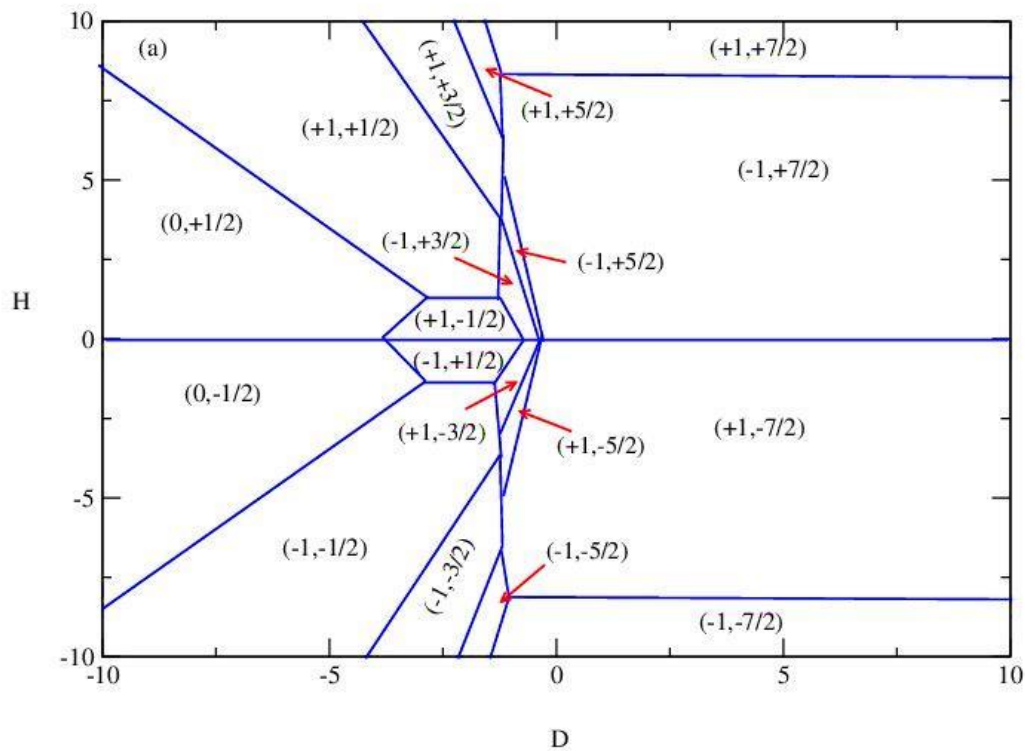
Dans cette partie, nous examinons les diagrammes de phase à l'état fondamental d'un nano-îlot de Rubrène utilisant le modèle de Blume-Capel. Nous utilisons l'hamiltonien de l'équation (II.1) pour simuler l'énergie des 24 configurations possibles, correspondant à $(2S+1) \times (2\sigma+1) = 3 \times 8 = 24$, afin d'étudier l'état fondamental.

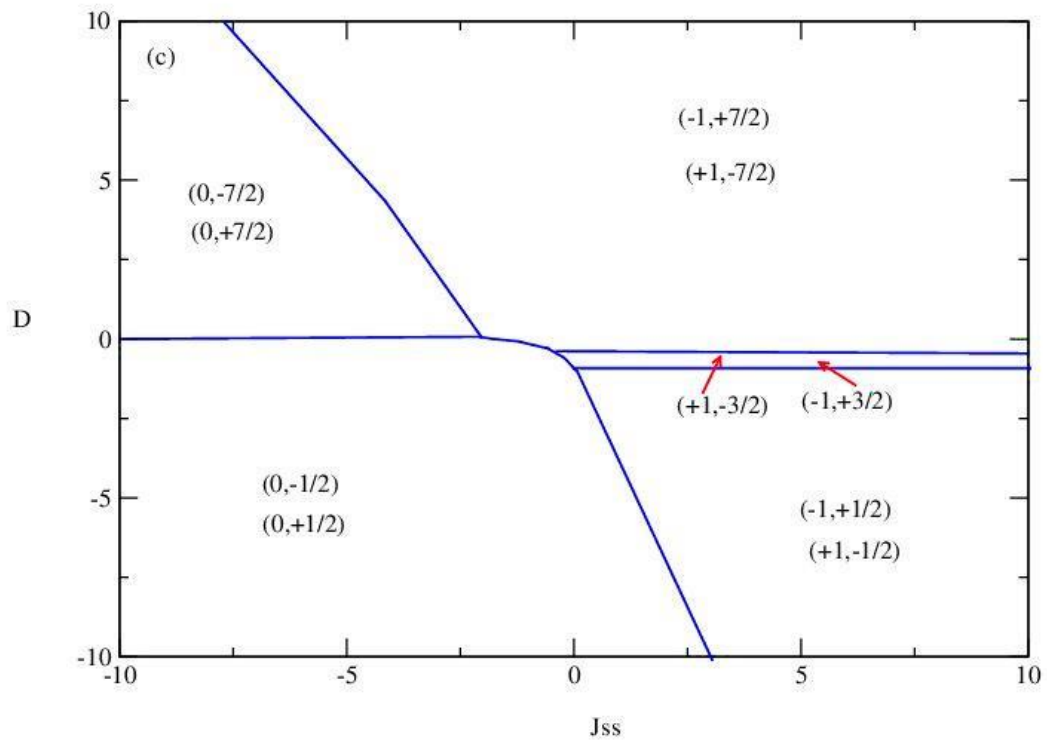
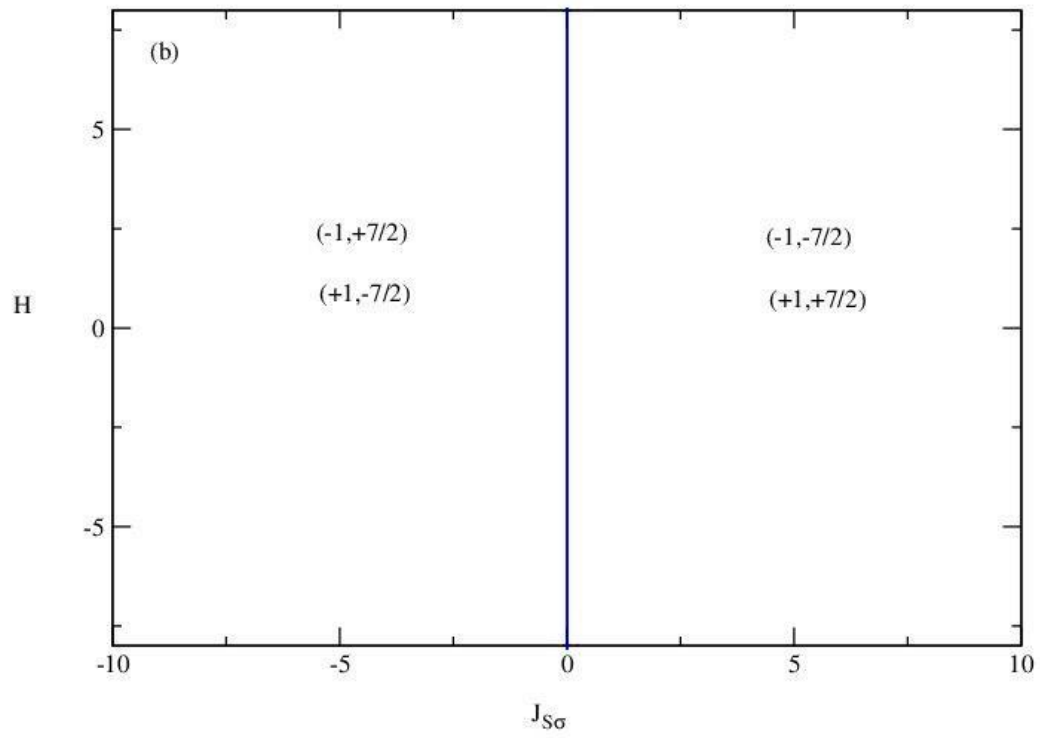
La figure II.2a est présentée dans le plan (H, D) , pour $J_{SS} = 1$ et $J_{S\sigma} = -1$. On constate que seules 18 configurations sur 24 possibles sont stables. Dans ce diagramme, les configurations présentent une symétrie par rapport à l'axe $H = 0$. Les configurations stables correspondant à des valeurs positives de H sont : $(0, +1/2)$; $(+1, -1/2)$; $(-1, +3/2)$; $(+1, +1/2)$; $(+1, +3/2)$; $(+1, +5/2)$; $(-1, +5/2)$; $(-1/2, +7/2)$ et $(+1, +7/2)$. En revanche, les configurations stables obtenues pour des valeurs négatives de H sont : $(0, -1/2)$; $(-1, +1/2)$; $(+1, -3/2)$; $(-1, -1/2)$; $(-1, -3/2)$; $(+1, -5/2)$; $(-1, -5/2)$; $(+1, +7/2)$ et $(-1, -7/2)$.

La figure II.2b est présentée dans le plan $(H, J_{S\sigma})$, en l'absence de champ magnétique externe ($D = 0$) et pour une valeur fixe de l'interaction de couplage d'échange, $J_{SS} = 1$. Dans ce plan, seules 4 configurations sont stables, à savoir : $(-1, +7/2)$, $(+1, -7/2)$, $(-1, -7/2)$ et $(+1, +7/2)$ correspondant aux valeurs maximales des spins.

La Figure II.2c est établie dans le plan (D, J_{SS}) pour $J_{S\sigma} = -1$ et $H = 0$. Cette figure présente seulement 10 configurations stables, à savoir : $(0, -7/2)$; $(0, +7/2)$; $(0, +1/2)$; $(0, -1/2)$; $(+1, -3/2)$; $(-1, +3/2)$; $(-1, +1/2)$; $(+1, -1/2)$; $(-1, +7/2)$; et $(+1, -7/2)$.

La Figure IV.2d est obtenue dans le plan $(D, J_{S\sigma})$ pour les paramètres suivants : $J_{SS} = 1$ et $H = 0$. Cette figure montre 18 configurations stables. Enfin, la Figure IV.2e présente le plan $(J_{SS}, J_{S\sigma})$ pour $D = 0$ et $H = 0$. Cette figure montre 12 configurations stables : $(-1, -7/2)$, $(+1, -1/2)$, $(-1, +7/2)$, $(+1, +7/2)$, $(0, -1/2)$, $(0, +1/2)$, $(0, -3/2)$, $(0, +3/2)$, $(0, -5/2)$, $(0, +5/2)$, $(0, -7/2)$ et $(0, +7/2)$. Les phases antiferromagnétique et ferrimagnétique coïncident au point $(J_{SS} = 0, J_{S\sigma} = 0)$.





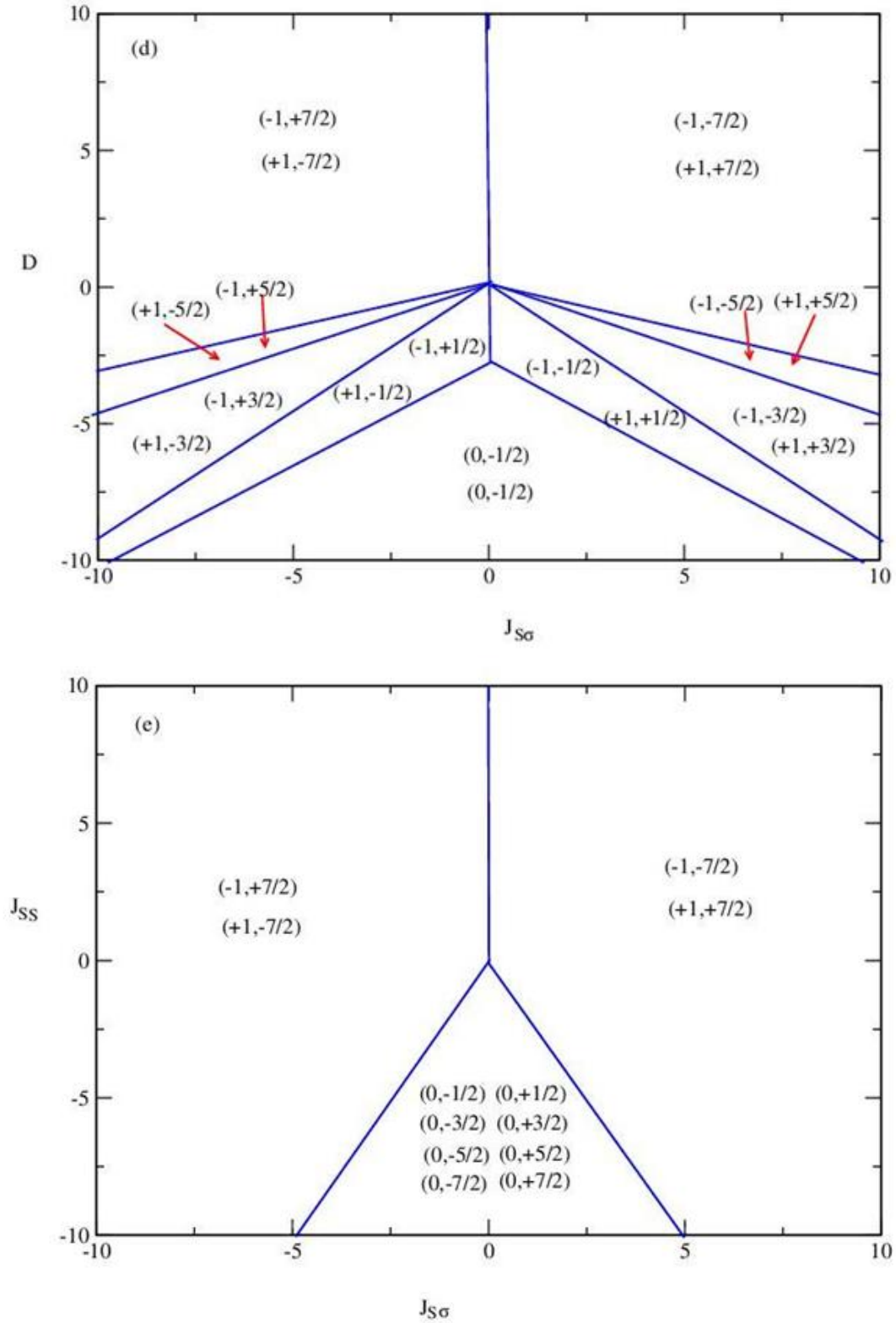


Figure II.2 : Diagrammes de phase à l'état fondamental : (a) $J_{SS} = 1$ et $J_{S\sigma} = -1$, (b) $J_{SS} = 1$ et $D = 0$, (c) $J_{S\sigma} = -1$ et $H = 0$, (d) $J_{SS} = 1$ et $H = 0$, (e) $D = 0$ et $H = 0$.

II.1.3.2. Résultats des Simulations Monte Carlo

Dans cette étude, nous utilisons la technique de Metropolis pour évaluer l'effet des couplages d'échanges d'interactions J_{SS} et $J_{S\sigma}$, ainsi que celui des champs magnétiques externes et cristallins, sur les propriétés magnétiques de la nanostructure de type Rubrène.

Dans le présent travail, nous déterminons l'énergie interne par site comme suit :

$$E = \frac{1}{N_T} \langle \mathcal{H} \rangle \quad (II.2)$$

Où $N_T = 42+28 = 70 =$ le nombre total de spins dans le système étudié.

Les aimantations partielles seront calculées comme suit :

$$M_S = \left\langle \frac{1}{N_S} \sum_{i=1}^{N_S} S_i \right\rangle \quad (II.3)$$

$$M_\sigma = \left\langle \frac{1}{N_\sigma} \sum_{j=1}^{N_\sigma} \sigma_j \right\rangle \quad (II.4)$$

L'aimantation totale correspondante est :

$$M_{\text{tot}} = \frac{N_S M_S + N_\sigma M_\sigma}{N_S + N_\sigma} \quad (II.5)$$

Les susceptibilités magnétiques partielles et totale du système sont données par :

$$\chi_S = \beta (\langle M_S^2 \rangle - \langle M_S \rangle^2) \quad (II.6)$$

$$\chi_\sigma = \beta (\langle M_\sigma^2 \rangle - \langle M_\sigma \rangle^2) \quad (II.7)$$

$$\chi_{\text{tot}} = \frac{N_S \chi_S + N_\sigma \chi_\sigma}{N_S + N_\sigma} \quad (II.8)$$

Où $\beta = 1/(k_B T)$, k_B est la constante de Boltzmann. Pour des raisons de simplicité, k_B est égal à 1. T est la température absolue.

La température de compensation T_{comp} est définie comme la température pour laquelle l'aimantation totale des deux sous-réseaux s'annule, comme indiqué dans l'Eq. II.5. T_{comp} vérifie les équations :

$$|M_{\sigma}(T_{comp})| = |M_s(T_{comp})| \quad (II.9)$$

$$Sign(M_{\sigma}(T_{comp})) = -Sign(M_s(T_{comp})) \quad (II.10)$$

Avec la condition : $T_{comp} < T_C$.

T_C désigne la température critique du système à partir de laquelle les aimantations partielle et totale tendent vers zéro. Le système est dans sa phase paramagnétique.

Le comportement des aimantations partielles et totales pour $J_{SS} = 1$, $J_{S\sigma} = -0,02$, $D = 0$ et $H = 0$ est établi dans la figure II.3a. Les aimantations partielles et totale à très basses températures sont: $M_S = +1$, $M_{\sigma} = -7/2$ et $M_{tot} = (1 \times 42) + (-7/2 \times 28) / (28+42) = -0,8$. Ainsi, les diagrammes de phase à l'état fondamental représentés dans la section 3.1 montrent que ces aimantations sont compatibles avec les valeurs de spin ($S = \pm 1, 0$ et $= \pm 7/2$). En outre, le système présente une température de compensation dû à la compétition entre plusieurs paramètres physiques ($J_{S\sigma}$ et J_{SS}). Cette température de compensation vaut $T_{comp} \approx 0,11$. De plus, la figure II.3b qui présente les susceptibilités magnétiques totale (χ_{tot}) et les partielles (χ_s , χ_{σ}) est obtenue pour des valeurs des paramètres identiques à ceux de la figure II.3a. La susceptibilité totale présente deux pics. Le premier pic correspond à la température de compensation, tandis que le deuxième pic est associé à la température critique $T_c = 1,30$.

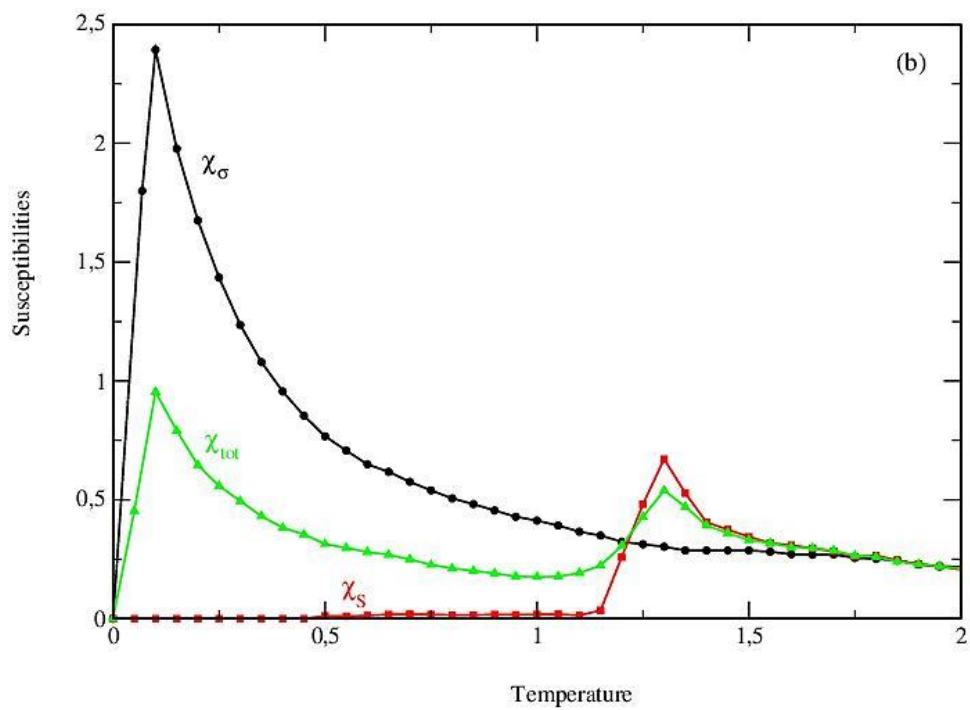
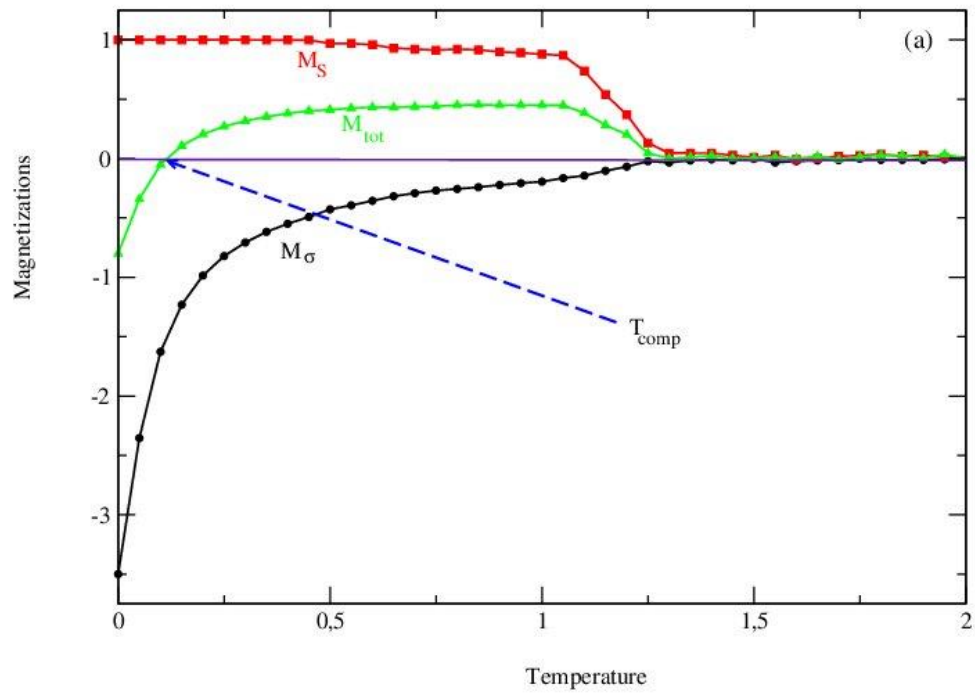
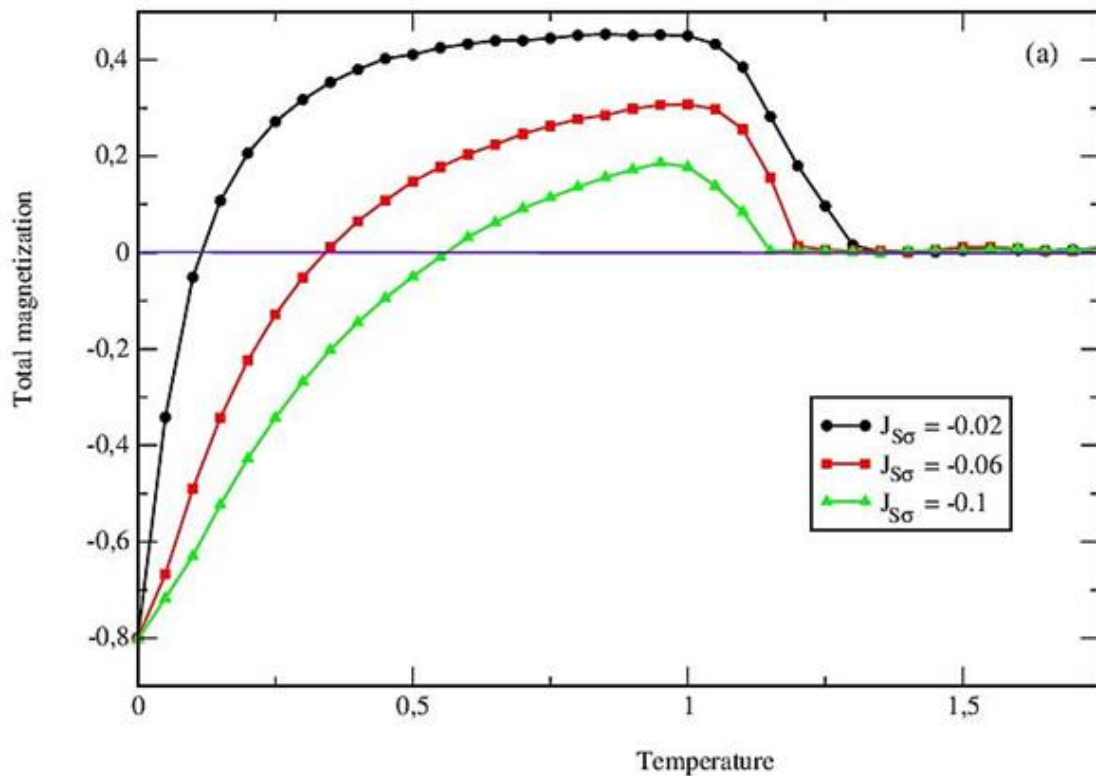


Figure II.3 : (a) Aimantations et (b) susceptibilités en fonction de la température pour $D=0$, $H=0$, $J_{SS} = 1$ et $J_{S\sigma} = -0.02$

La figure II.4 montre l'effet du paramètre de couplage d'échange ferrimagnétique $J_{S\sigma}$ sur les températures de compensation et critique. Le comportement thermique de l'aimantation totale pour différentes valeurs de $J_{S\sigma}$ ($J_{S\sigma} = -0,02, -0,06$ et $-0,1$) est illustré dans la figure II.4a. Cette figure est obtenue pour $J_{SS} = 1$ et en l'absence de champs cristallins et externes ($D = 0, H = 0$). L'augmentation du paramètre $|J_{S\sigma}|$ a pour effet d'accroître la température de compensation T_{comp} , comme le montre la Figure II.4a. La Figure II.4b illustre la susceptibilité totale pour les mêmes paramètres que dans la Figure II.4a, et présente le même comportement que la Figure II.3b. Les pics de susceptibilité se déplacent vers des températures plus élevées, confirmant les résultats de la Figure II.4a. Pour les cas ferrimagnétiques, les valeurs de température de compensation obtenues sont $T_{comp} \approx 0,11, 0,34$ et $0,55$ pour $J_{S\sigma} = -0,02, -0,06$ et $-0,1$, respectivement. Les températures critiques obtenues pour ces mêmes systèmes sont $T_c \approx 1,30$ pour $J_{S\sigma} = -0,02, T_c \approx 1,20$ pour $J_{S\sigma} = -0,06$ et $T_c \approx 1,15$ pour $J_{S\sigma} = -0,1$.



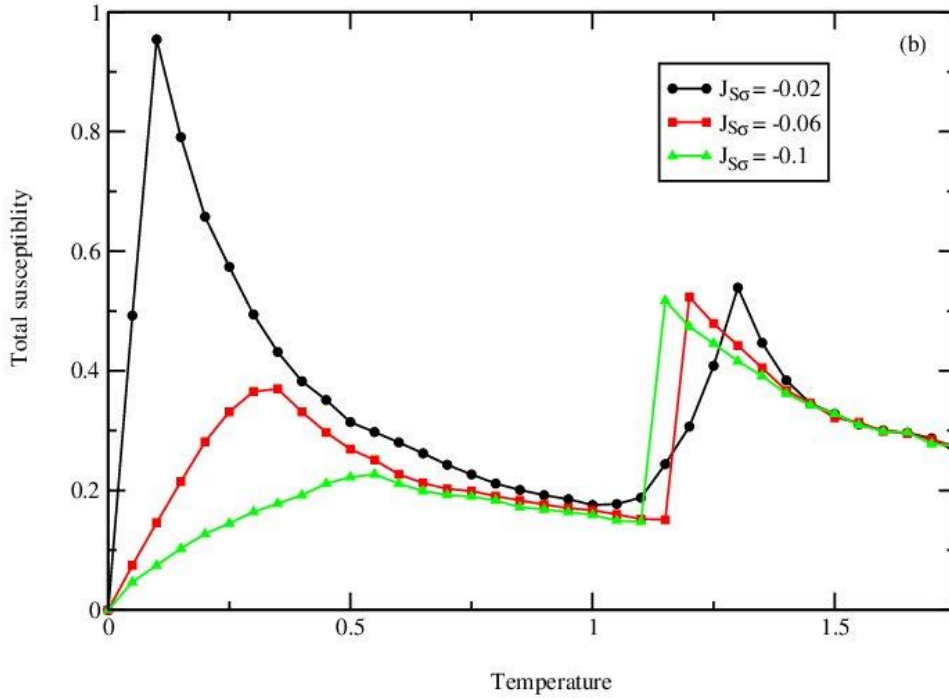
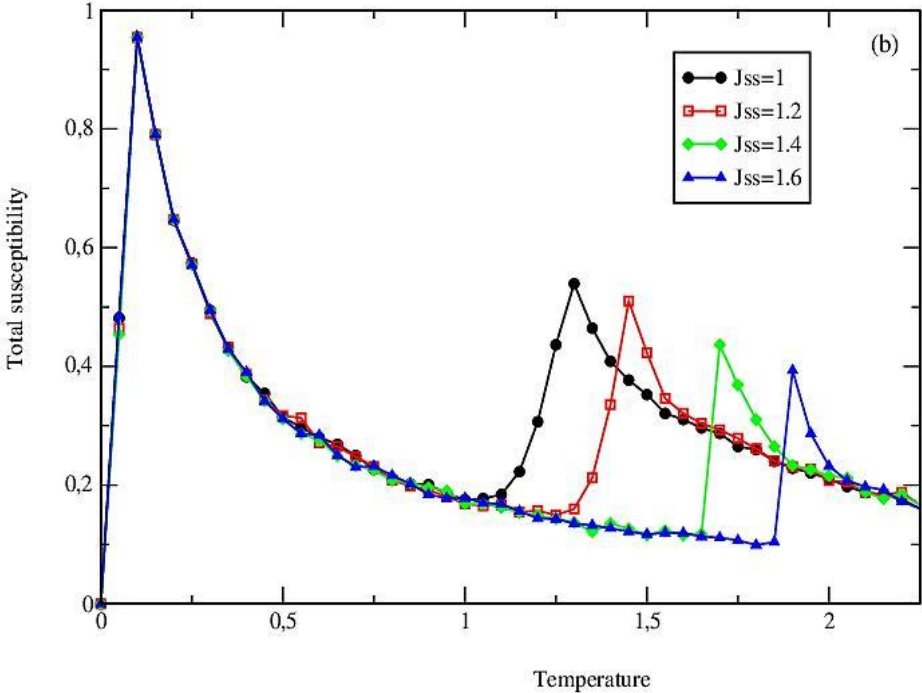
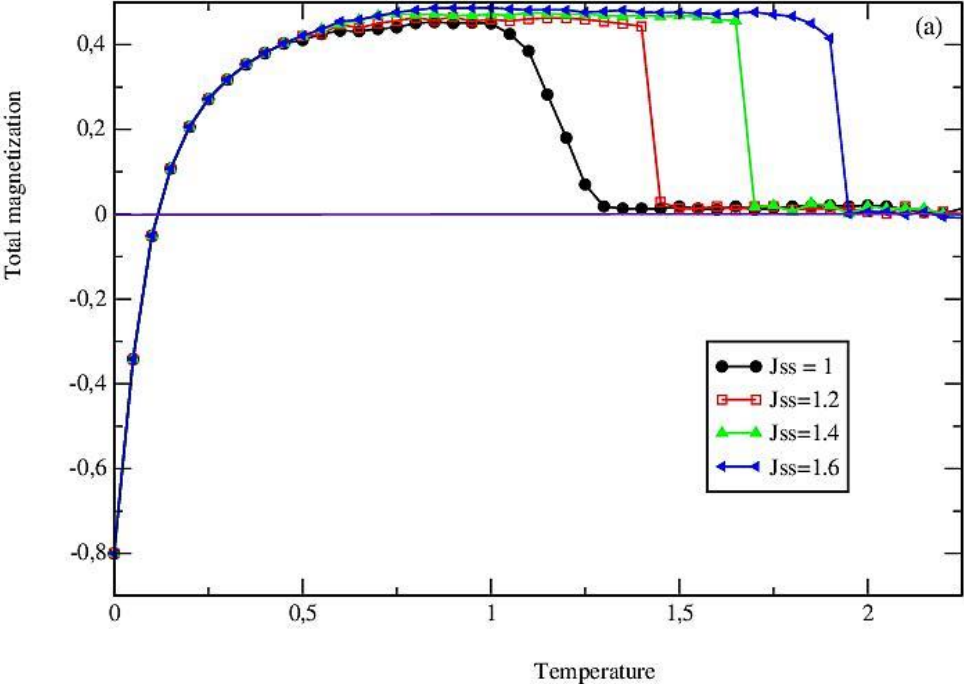


Figure II.4 : Magnétisation totale (a) susceptibilité totale (b) pour différentes valeurs de $J_{S\sigma}$ $J_{SS}=1$, $H=0$ et $D=0$.

En outre, dans les figures II.5a et 5b, nous examinons l'aimantation totale en faisant varier le paramètre de couplage d'échange J_{SS} . Ces figures sont présentées pour des valeurs sélectionnées du paramètre J_{SS} ($J_{SS} = 1, 1.2, 1.4$ et 1.6) pour $J_{S\sigma} = -0.02$ et en l'absence de champs cristallin et externe ($D = 0, H = 0$). La température de compensation T_{comp} n'est pas influencée par la variation du paramètre J_{SS} , alors que la température critique T_c augmente avec l'augmentation du paramètre J_{SS} . Cela est dû aux valeurs sélectionnées des paramètres physiques. La température de compensation obtenue pour différentes valeurs du paramètre de couplage d'échange J_{SS} est $T_{comp} \approx 0.11$. De plus, les températures critiques obtenues pour les mêmes valeurs de paramètre $J_{SS} = 1, 1.2, 1.4$ et 1.6 sont respectivement $T_c \approx 1.3, 1.45, 1.7$ et 1.9 . Par ailleurs, en regroupant les résultats obtenus dans la Figure II.5a, nous illustrons les effets du paramètre d'interaction de couplage d'échange J_{SS} sur les températures de compensation et critique dans la Figure II.5c. En effet, Nous constatons que la température de compensation (T_{comp}) demeure constante lorsqu'on augmente le paramètre J_{SS} . D'autre part, la température critique augmente presque linéairement en fonction du paramètre J_{SS} . Ce

comportement résulte de la compétition entre les différents paramètres physiques agissant sur le système.



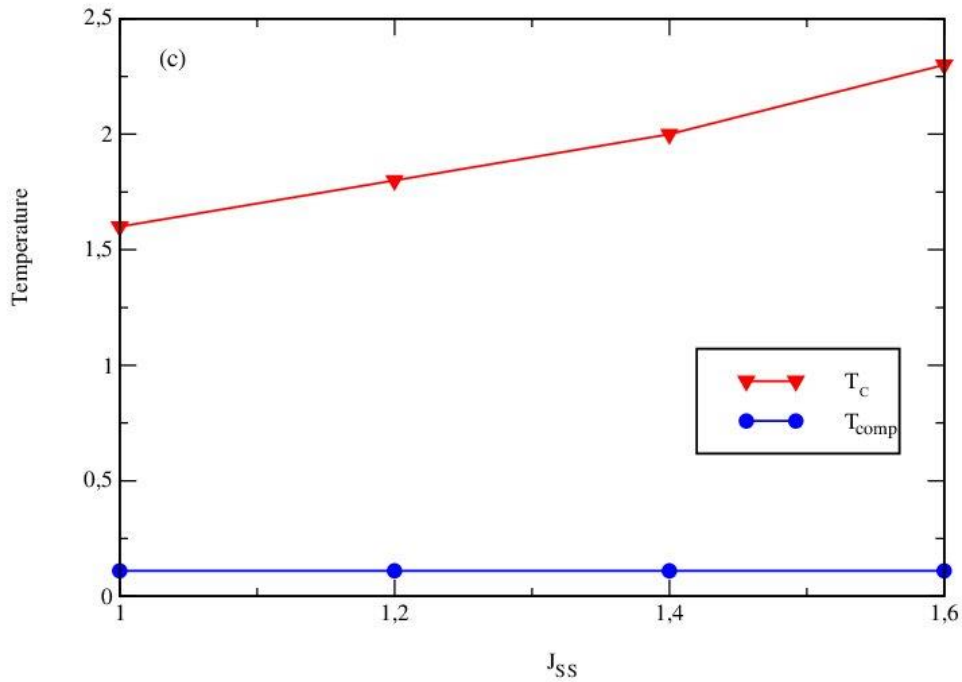


Figure II.5 : (a) Magnétisation totale, (b) susceptibilité totale pour des paramètres fixes : $D=0$, $H=0$ et $J_{S\sigma}=-0.02$, et températures en fonction du paramètre J_{SS} (c).

Pour étudier le comportement de l'aimantation totale en fonction du champ cristallin, nous avons tracé la figure II.6 pour plusieurs valeurs de $J_{S\sigma}$ ($J_{S\sigma} = -0.1, -0.2, -0.4$ et -0.8) et pour des valeurs fixes des autres paramètres : $J_{SS} = 1$, $T = 0.1$ et $H = 0$. Sur cette figure, nous observons trois régions différentes, à savoir :

❖ **Région (i) : $D < -2.65$**

Dans cette région, indépendamment des valeurs des paramètres ferrimagnétiques ($J_{S\sigma}$), le système est dans sa phase paramagnétique.

❖ **Région (ii) : $-2.65 < D < 0.17$**

Dans ce domaine, les aimantations totales subissent une transition du 1^{ère} ordre pour toutes les valeurs du paramètre ferrimagnétique.

❖ **Région (iii) : $D > 0.17$**

Dans cette région, l'aimantation totale diminue légèrement pour converger vers l'aimantation totale de saturation $M_{sat} = -0.8$. Ce résultat est en accord avec le diagramme de phase à l'état fondamental, illustré sur la figure II.2e.

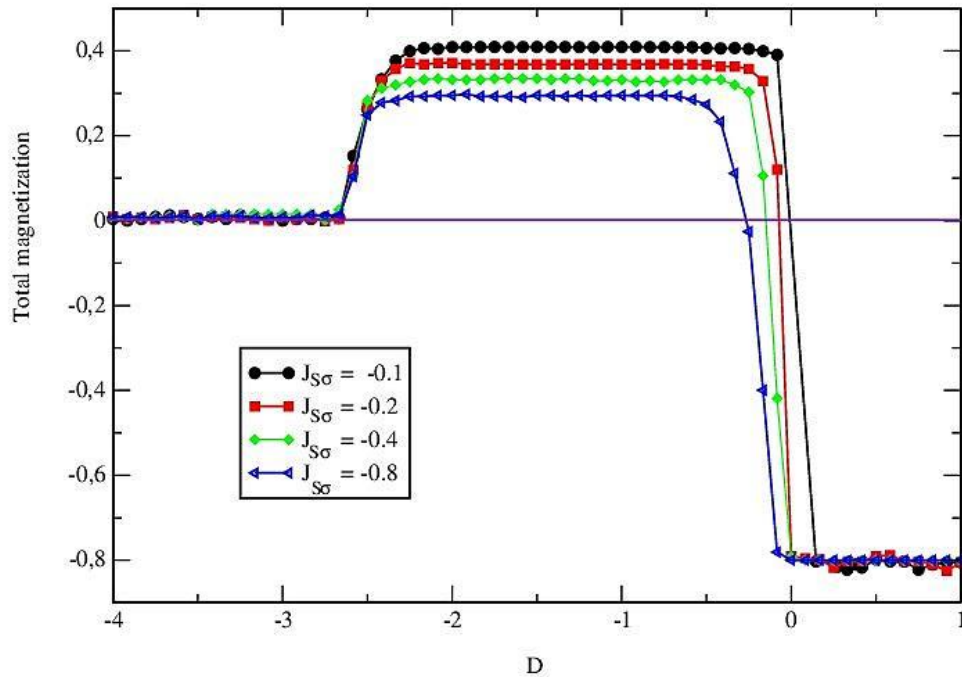


Figure II.6 : Aimantation totale en fonction du champ cristallin pour $T=0.1$, $H=0$ et $J_{SS}=1$.

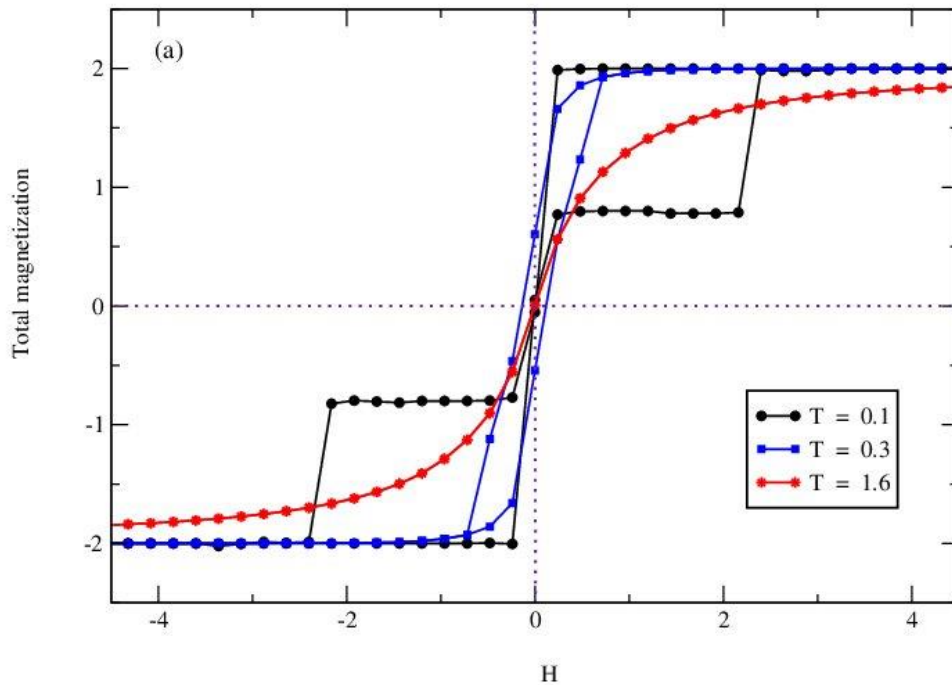
II.1.3.3. Détermination des cycles d'hystérésis

Pour compléter ce chapitre, nous illustrons sur les figures II.7 (a-c) l'effet des paramètres physiques, tels que la température, les interactions d'échange J_{SS} et $J_{S\sigma}$ sur le comportement des cycles d'hystérésis. Ces figures sont tracées en l'absence du champ cristallin ($D = 0$).

Les boucles d'hystérésis sont représentées sur la Figure II.7a pour différentes températures : $T = 0.1$, 0.3 et 3 avec les paramètres fixes $J_{SS}=1$ et $J_{S\sigma}=-0.02$. Les surfaces des boucles diminuent à mesure que la valeur de la température augmente et disparaissent complètement à $T = 1.6$. Nous soulignons que des résultats similaires ont été obtenus dans d'autres études [86,87]. De plus, la figure II.7b présente la variation de l'aimantation totale en fonction du champ magnétique externe pour différentes valeurs du paramètres de couplage ferrimagnétiques : $J_{S\sigma} = -0.02$, -0.1 et -0.8 , pour $J_{SS} = 1$ et $T = 0.1$. Cette figure montre que

l'augmentation du couplage d'échange $|J_{S\sigma}|$ accroît le champ coercitif, donc augmente la surface des boucles. La présence des boucles est due au comportement ferrimagnétique du système étudié ($J_{S\sigma} < 0$).

Enfin, la figure II.7c est tracée pour différentes valeurs des paramètres d'interactions d'échange $J_{SS} = 1, 1.4$ et 1.6 , pour une valeur fixe du paramètre ferrimagnétique $J_{S\sigma} = -0.02$ et une température $T = 0.1$. Cette figure présente des cycles d'hystérésis avec une augmentation de la surface des boucles lorsque la valeur du paramètre J_{SS} augmente.



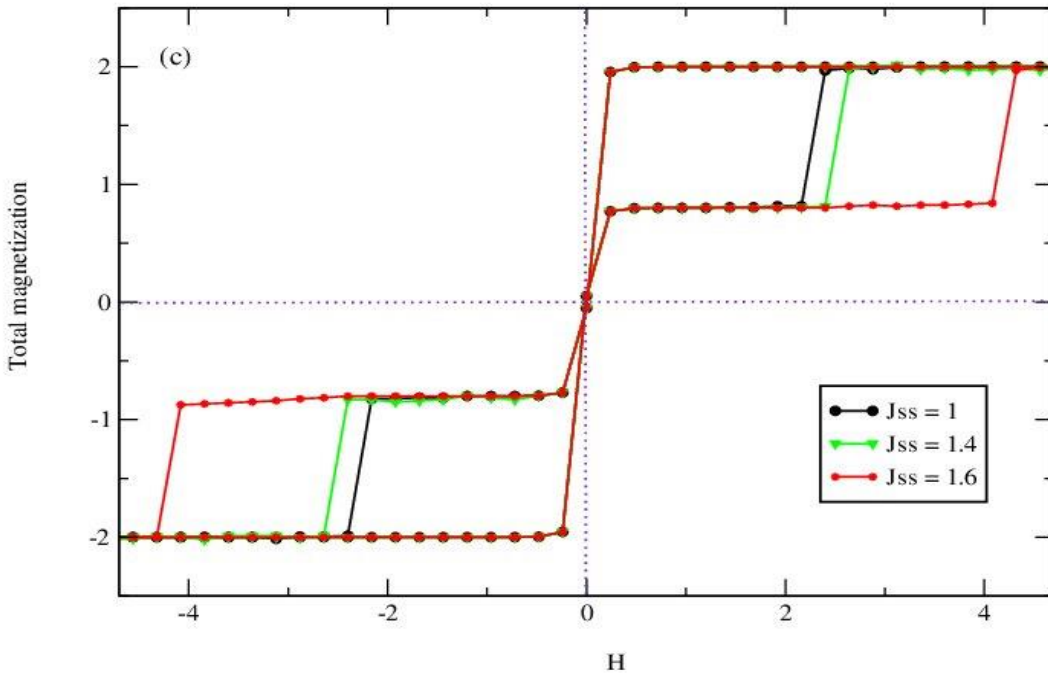
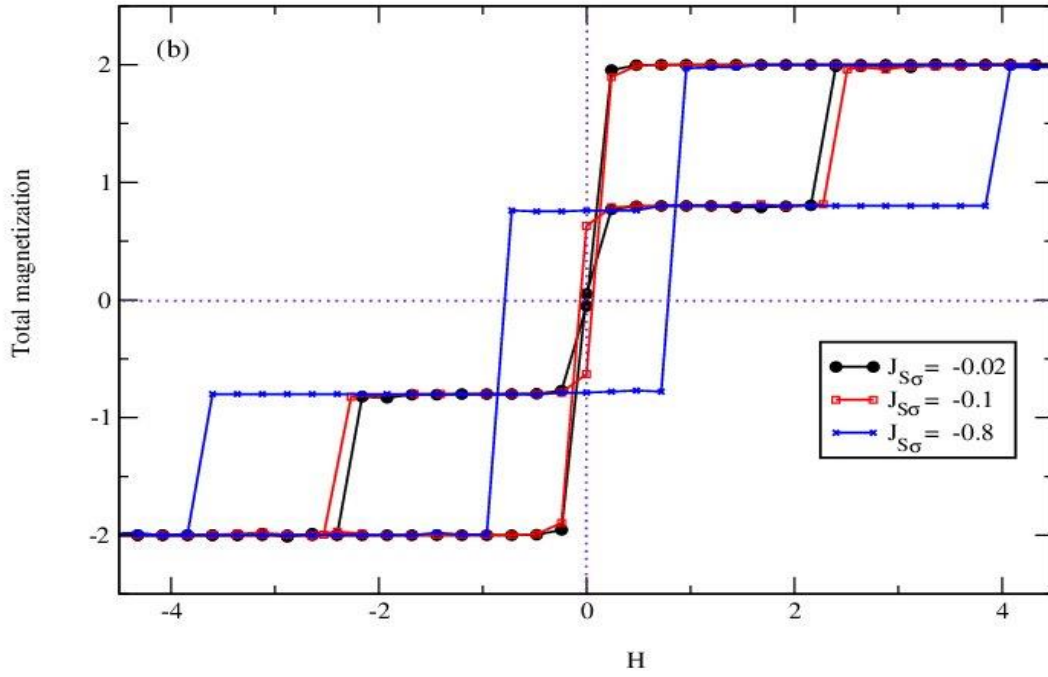


Figure II.7 : Cycles d'hystérésis du nano-fîlot de type Rubrène pour $D=0$: (a) $J_{SS}=1$ et $J_{S\sigma}=-0.02$, (b) $J_{SS}=1$ et $T=0.1$. (c) $J_{S\sigma}=-0.02$ et $T=0.1$

II.1.4. Conclusion

En se basant sur les simulations Monte Carlo sous l'algorithme Metropolis, nous avons étudié les diagrammes de phase à l'état fondamental et les propriétés magnétiques d'un nano-îlot de type Rubrène en considérant des spins mixtes ($S = 1$ et $\sigma = 7/2$) de Blume Capel. Nous avons constaté que les diagrammes ne présentent que dix-huit configurations stables parmi les 24 possibles. De plus, les effets des couplages d'échange d'interactions sur les températures de compensation et critiques, sont représentés sur les figures d'aimantation et de susceptibilité. Nous avons observé que la valeur de la température de compensation n'est pas affectée par l'augmentation du paramètre J_{SS} , alors que la température de transition est affectée. Enfin, les cycles d'hystérésis ont montré que l'augmentation du paramètre $|J_{S\sigma}|$ conduit à l'augmentation du champ coercitif et de la surface des boucles. Ce résultat est utile pour de nombreuses applications dans les systèmes de mémoire multi-états. La présence des boucles est due au comportement ferrimagnétique du système étudié ($J_{S\sigma} < 0$).

II.2 Température de transition d'une structure de type Kesterite et Stannite par la méthode Monte Carlo.

II.2.1. Introduction.

Au cours de la dernière décennie, il y a eu beaucoup d'intérêt pour les composés quaternaires de chalcogénures à base de cuivre, en particulier pour les composés à base de $\text{Cu}_2\text{-II-IV-(S,Se)}_4$ (CZTSSe). Ces composés ont une structure similaire à celle du CIGS ($\text{Cu(In, Ga)(S, Se)}_2$) et sont composés d'éléments non toxiques et abondants dans la terre, tels que Cu, Zn et Sn [88-90]. Les composés CZTSSe présentent deux structures cristallines tétraogonales, la Kesterite et la Stannite, dérivées de la sphalérite ZnS [91,92]. Les noms des composés sont dérivés de la formule générale des minéraux naturels $\text{Cu}_2\text{ZnSn(S,Se)}_4$ [93]. Les structures ont les mêmes atomes dans les sites tétraédriques, tandis que la différence réside dans les positions des cations Cu et Zn dans chaque structure [88,92,94,95]. Plusieurs techniques ont été utilisées pour synthétiser les matériaux CZTSe, telles que la pulvérisation magnétron, l'évaporation thermique, l'évaporation par faisceau d'électrons, le sol-gel, la solution d'hydrazine, la pyrolyse par pulvérisation, la réaction à l'état solide et la couche de CdS évaporée [96-103]. Les composés CZTSSe ont une bande interdite optimale ($E_g \sim 1-1.5$ eV) et un coefficient d'absorption élevé dans le domaine visible du spectre électromagnétique, ce qui les rend adaptés pour les applications d'énergie solaire [104,105]. Des études récentes ont également examiné les propriétés élastiques, vibrationnelles, mécaniques, thermoélectriques,

structurelles, électroniques, électriques et optiques de $\text{Cu}_2\text{ZnSn}(\text{S},\text{Se})_4$ à l'aide DFT [106-114]. Notre objectif dans ce travail est l'étude des propriétés magnétiques des nanostructures de Kesterite et de Stannite, avec différents spins ($\sigma = 3/2$ pour le Cu), ($S = 1$ pour le Sn), ($r = 5/2$ pour le Zn) et ($q = 1/2$ pour le Se).

La partie II de ce chapitre est organisée de la manière suivante : la section 2 présente le modèle et la méthode utilisés, la section 3 rapporte les résultats des simulations Monte Carlo, et enfin la section 4 est réservée à la conclusion.

II.2.2. Modèle et méthode de calcul

Dans cette étude, nous comparons les propriétés magnétiques des nanostructures Kesterite et Stannite en utilisant le modèle de Blume-Capel avec des conditions aux frontières libres. Les nanostructures sont constituées d'un nombre total de 31 atomes. Pour le Kesterite : 13 atomes de Cu (N_σ), 6 atomes de Sn (N_S), 4 atomes de Zn (N_r) et 8 atomes de Se (N_q), et pour le Stannite : 8 atomes de Cu (N_σ), 6 atomes de Sn (N_S), 9 atomes de Zn (N_r) et 8 atomes de Se (N_q) (voir Figure II.8). Les spins correspondants sont ($\sigma = \pm 3/2, \pm 1/2$), ($S = \pm 1, 0$), ($r = \pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2$) et ($q = \pm 1/2$).

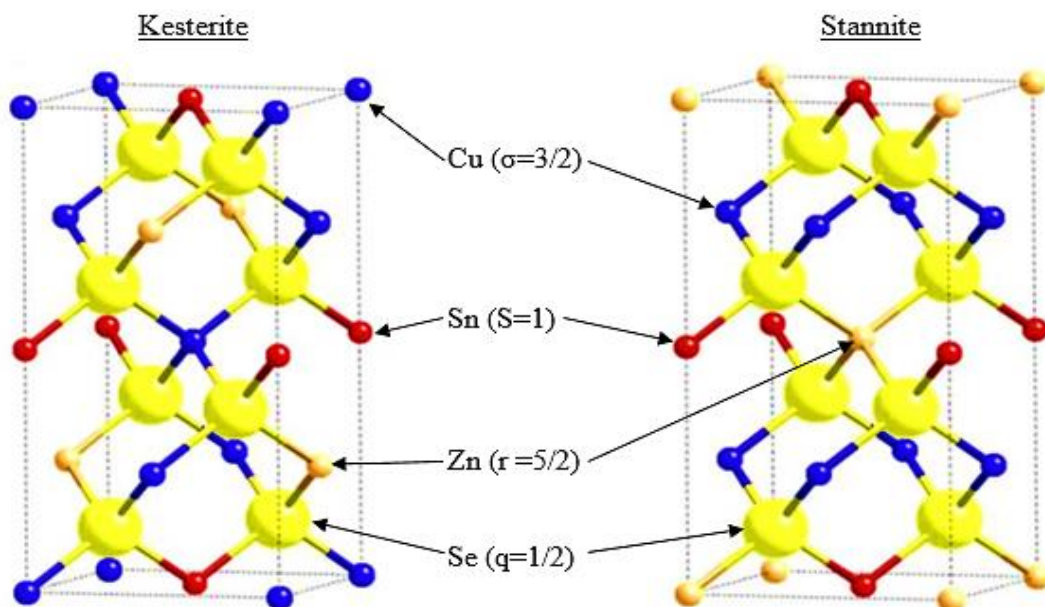


Figure II.8 : Illustration schématique des nanostructures de Kesterite (a) et de Stannite (b).

L'hamiltonien des nanostructures de Kesterite et de Stannite est donné par :

$$\mathcal{H} = -J_{\sigma q} \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i q_j - J_{sq} \sum_{\langle k,l \rangle} S_k q_l - J_{rq} \sum_{\langle m,n \rangle} r_m q_n - D_{\sigma} \sum_i \sigma_i^2 - D_S \sum_k S_k^2 - D_r \sum_m r_m^2 \quad (\text{II.11})$$

Les paramètres $J_{\sigma q}$, J_{sq} et J_{rq} représentent les couplages d'échange d'interactions entre les atomes premiers voisins avec les spins σ - q , s - q et r - q , respectivement. Les indices de sommation $\langle i,j \rangle$, $\langle k,l \rangle$ et $\langle m,n \rangle$ correspondent aux spins des atomes de premier voisinage. Les champs cristallins D_{σ} , D_S et D_r agissent respectivement sur les spins σ_i , S_k et r_m . Nous nous limitons à l'étude du cas où les champs cristallins sont égaux, c'est-à-dire $D = D_{\sigma} = D_S = D_r$, pour toutes nos simulations numériques. Afin de simplifier les calculs, nous utilisons les paramètres réduits suivants : $R_1 = J_{sq} / J_{\sigma q}$, $R_2 = J_{rq} / J_{\sigma q}$, $d = D / J_{\sigma q}$ et la température $t = T / J_{\sigma q}$.

L'énergie interne par site est :

$$E_{tot} = \frac{\langle \mathcal{H} \rangle}{N_{tot}} \quad (\text{II.12})$$

Où N_{tot} est le nombre total de spins dans les nanostructures étudiées.

Les aimantations partielles et totales des nanostructures de Kesterite et de Stannite sont :

$$M_{\sigma} = \frac{1}{N_{\sigma}} \sum_i \sigma_i \quad (\text{II.13})$$

$$M_S = \frac{1}{N_S} \sum_j S_j \quad (\text{II.14})$$

$$M_r = \frac{1}{N_r} \sum_k r_k \quad (\text{II.15})$$

$$M_q = \frac{1}{N_q} \sum_l q_l \quad (\text{II.16})$$

$$M_{tot} = \frac{N_{\sigma} M_{\sigma} + N_S M_S + N_r M_r + N_q M_q}{N_{\sigma} + N_S + N_r + N_q} \quad (\text{II.17})$$

Les susceptibilités magnétiques partielles et totales des nanostructures de Kesterite et de Stannite sont les suivantes :

$$\chi_{\sigma} = \beta(\langle M_{\sigma}^2 \rangle - \langle M_{\sigma} \rangle^2) \quad (\text{II.18})$$

$$\chi_S = \beta(\langle M_S^2 \rangle - \langle M_S \rangle^2) \quad (\text{II.19})$$

$$\chi_r = \beta(\langle M_r^2 \rangle - \langle M_r \rangle^2) \quad (\text{II.20})$$

$$\chi_q = \beta(\langle M_q^2 \rangle - \langle M_q \rangle^2) \quad (\text{II.21})$$

$$\chi_{\text{tot}} = \frac{N_{\sigma}\chi_{\sigma} + N_S\chi_S + N_r\chi_r + N_q\chi_q}{N_{\sigma} + N_S + N_r + N_q} \quad (\text{II.22})$$

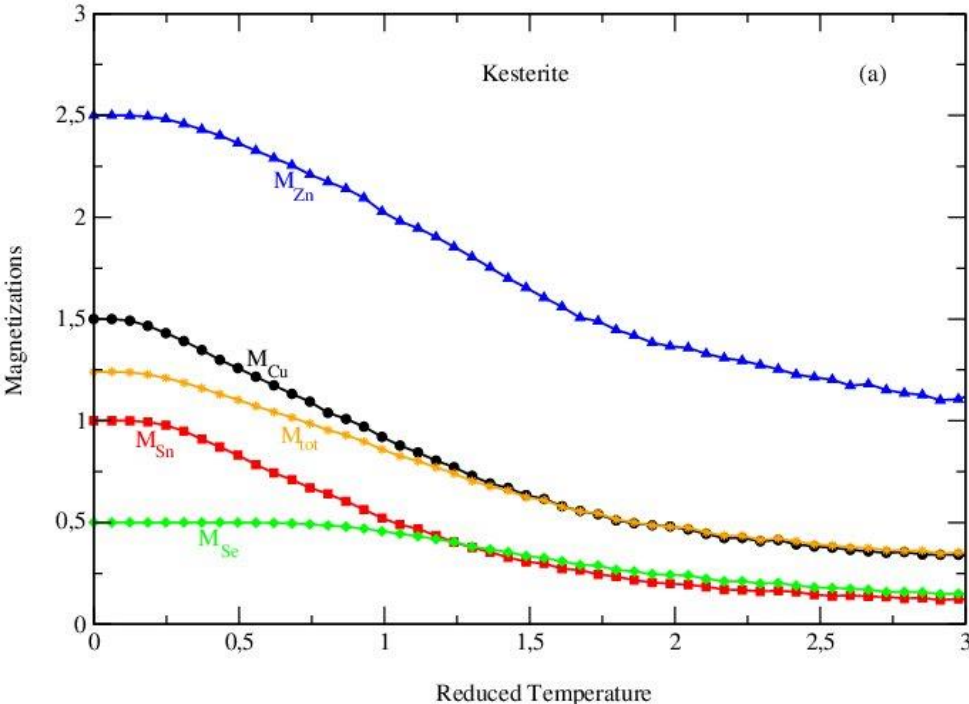
II.2.3. Étude de Monte Carlo

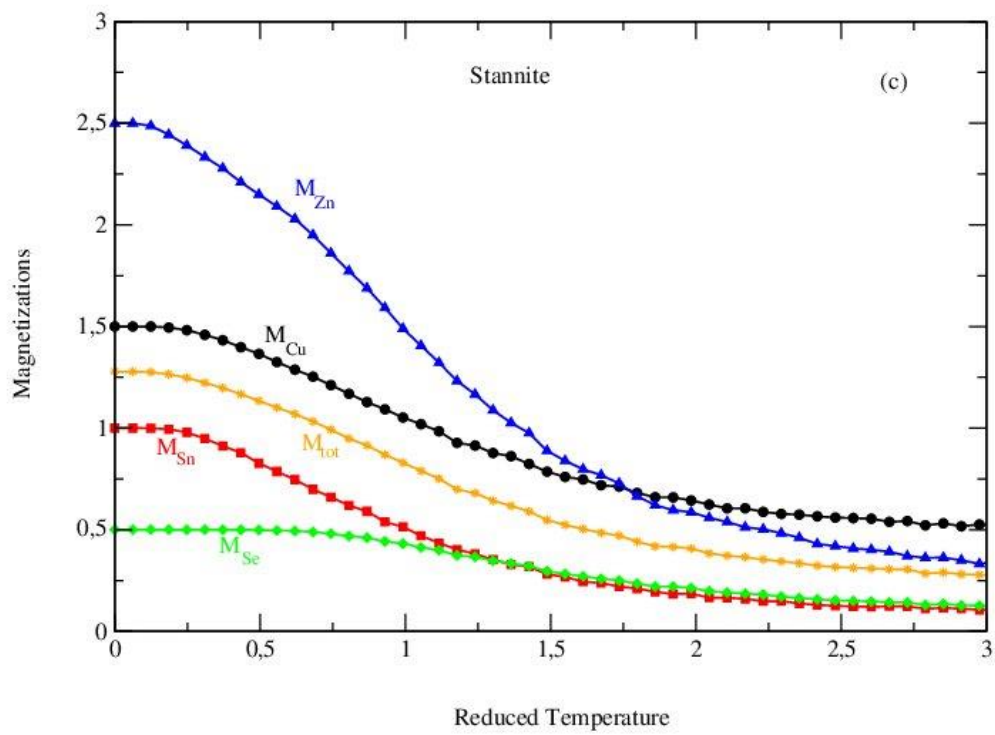
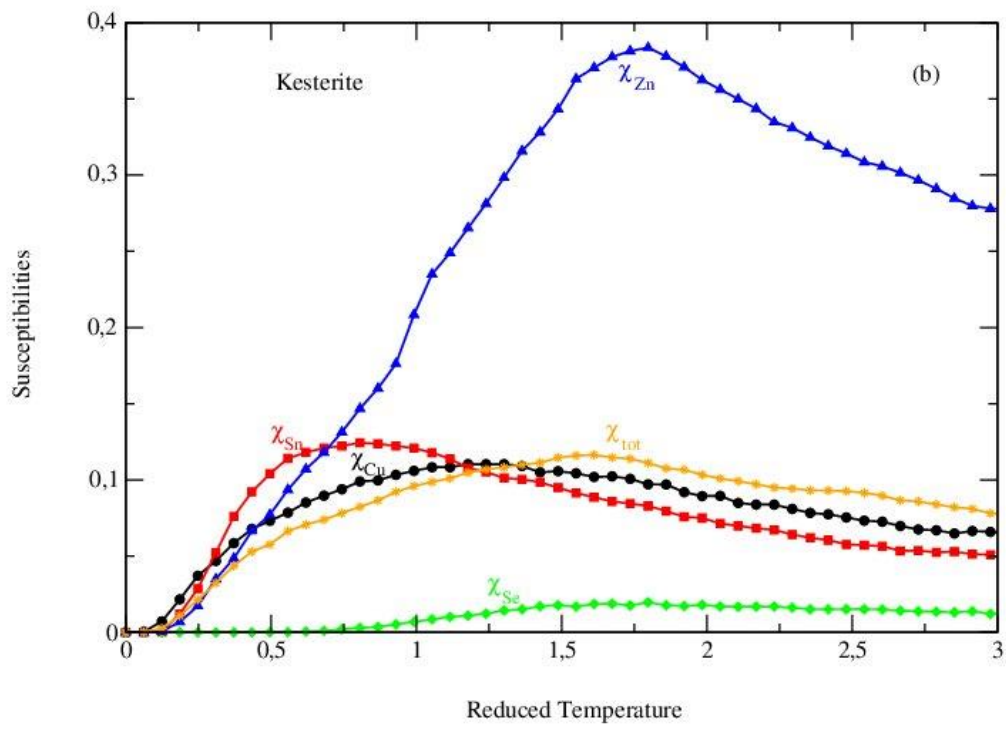
Dans cette section, nous examinons les propriétés magnétiques des nanostructures Kesterite et Stannite par simulations Monte Carlo selon l'algorithme Metropolis.

La figure II.9a montre le comportement des aimantations partielles (M_{σ} (Cu), M_S (Sn), M_r (Zn) et M_q (Se)) et totale (M_{tot}) en fonction de la température réduite de la nanostructure de Kesterite. Cette figure est obtenue pour des paramètres réduits fixes : $d=0$, $R_1=1$ et $R_2=1$. Pour une température réduite très faible ($t \approx 0,0001$), les aimantations partielles M_{σ} (Cu) = 3/2, M_S (Sn) = 1, M_r (Zn) = 5/2 et M_q (Se) = 1/2 conduisent à $M_{\text{tot}} = \frac{13 \times M_{\sigma} + 6 \times M_S + 4 \times M_r + 8 \times M_q}{13 + 6 + 4 + 8} = 1.25$. De plus, il est constaté que les aimantations diminuent vers la température de transition et que le système subit la phase super-paramagnétique. Cependant, pour trouver exactement la valeur de la température de transition, nous illustrons dans la figure II.9b les susceptibilités magnétiques partielles et totale en fonction de la température réduite, pour les mêmes valeurs des paramètres sur la figure II.9a. Nous notons que la valeur de la température de transition réduite indiquée par le maximum de la susceptibilité magnétique totale est d'environ $tr \approx 1.6$.

En adoptant les mêmes calculs pour la nanostructure Stannite, nous présentons dans la figure II.9c la variation des aimantations partielles et totale (M_{tot}) en fonction de la température réduite. Cette figure est tracée pour des paramètres réduits fixes : $d=0$, $R_1=1$ et $R_2=1$. À partir de cette figure, nous constatons que les aimantations de la nanostructure Stannite diminuent vers la température de transition et que le système passe plus rapidement à la phase super-paramagnétique que la nanostructure Kesterite. Cela est dû à la différence du nombre

d'atomes de cuivre et de zinc entre ces deux nanostructures et à leurs positions dans chaque système. De plus, on trace dans la figure II.9d les susceptibilités magnétiques partielles et totales en fonction de la température réduite pour les mêmes valeurs des paramètres utilisés dans la figure II.9c. La valeur de la température de transition est d'environ $tr \approx 1.25$.





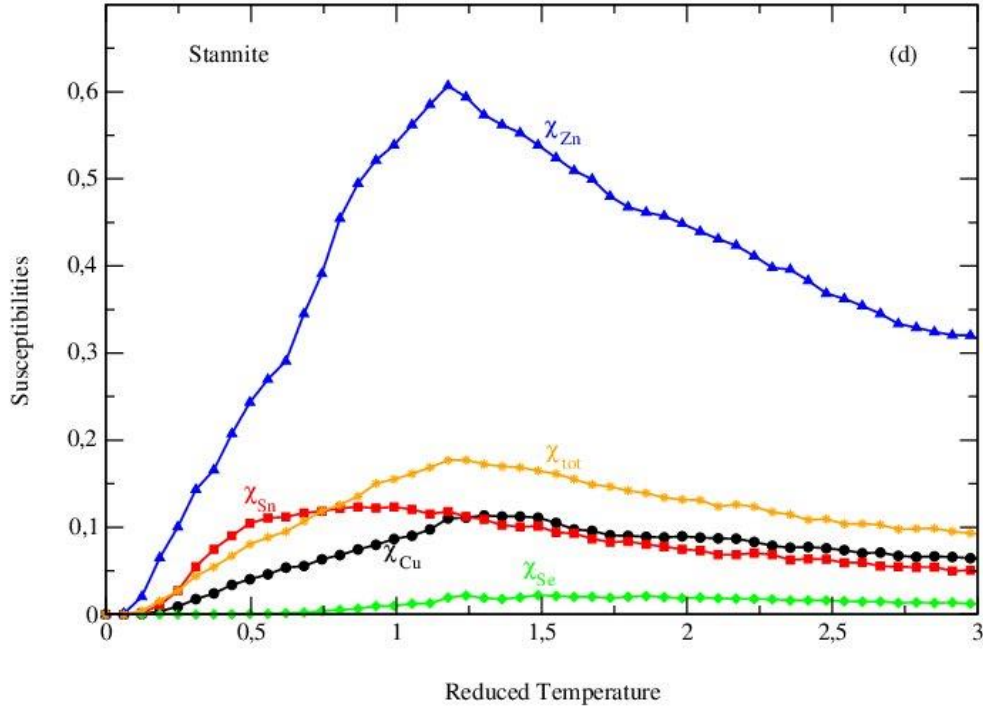
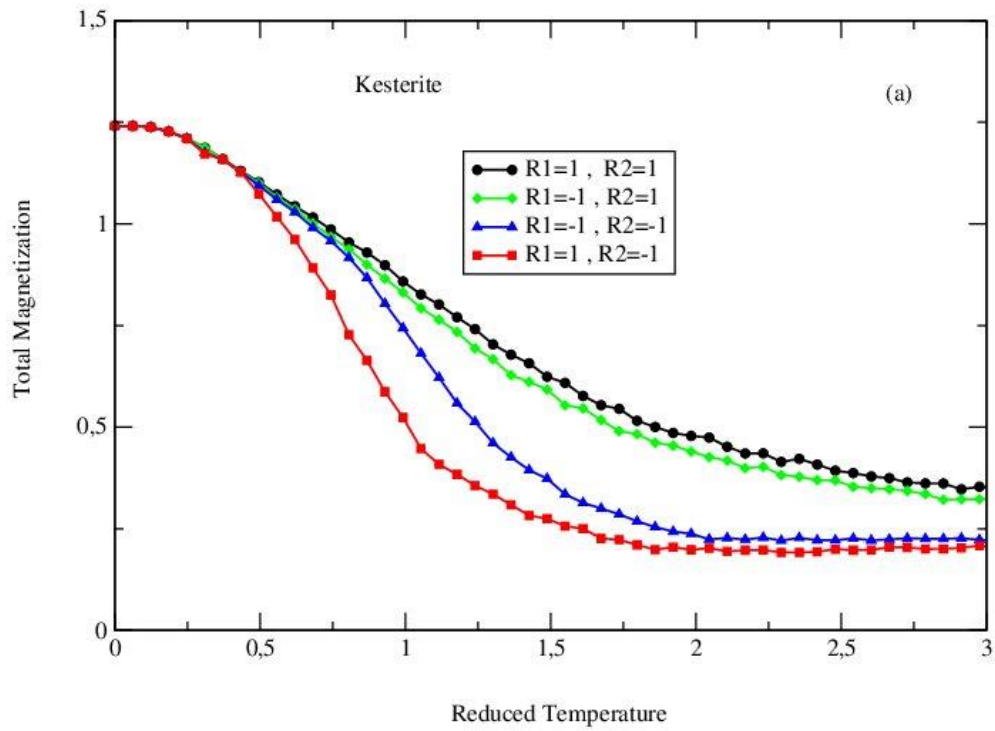
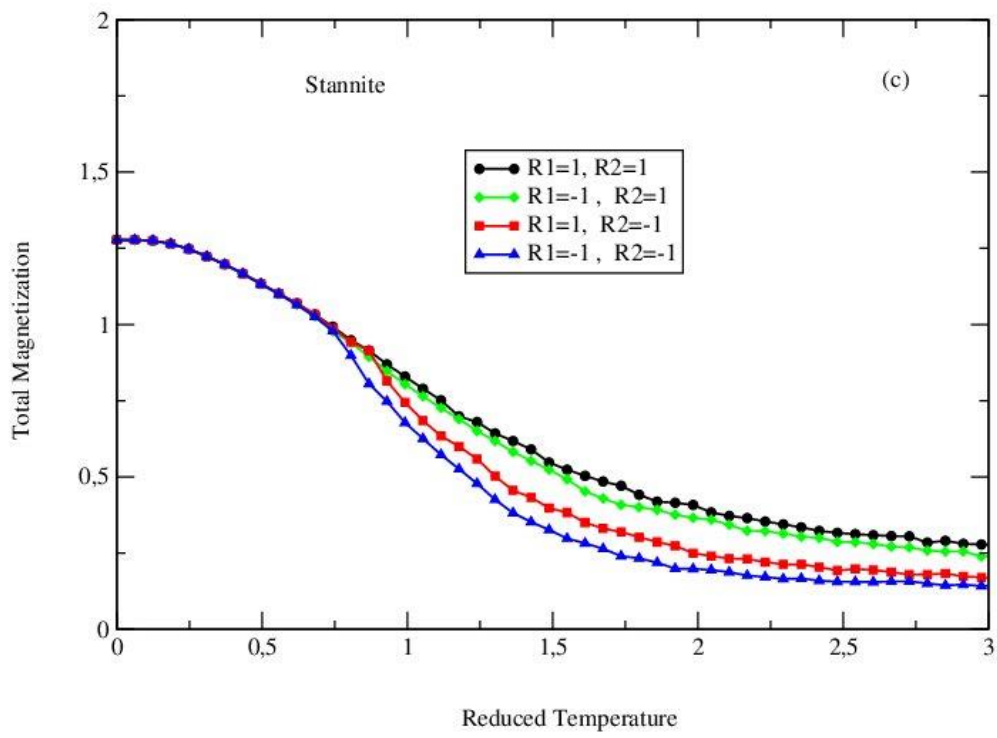
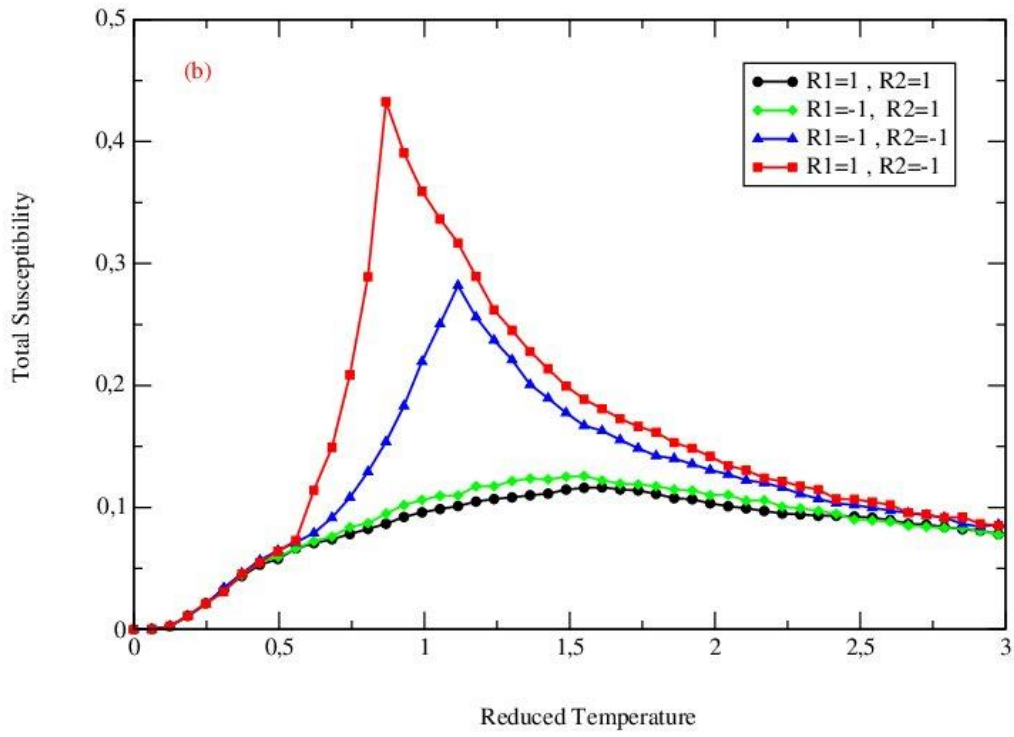


Figure II.9 : Aimantations (a, c) et susceptibilités (b, d) des nanostructures de Kesterite et de Stannite pour des paramètres fixes : $d=0$, $R_1=1$ et $R_2=1$.

La figure II.10a présente l'aimantation totale en fonction de la température réduite pour une nanostructure Kesterite, avec différentes valeurs de couplage réduit : R_1 (entre les atomes de Sn-Se) et R_2 (entre les atomes de Zn-Se) pour $d=0$. Nous remarquons que lorsque R_1 et R_2 sont ferrimagnétiques ($R_1=1$, $R_2=1$), l'aimantation totale atteint plus rapidement la phase super-paramagnétique que lorsque R_1 est anti-ferrimagnétique et R_2 est ferrimagnétique ($R_1=-1$, $R_2=1$), suivie des cas où R_1 et R_2 sont anti-ferrimagnétiques ($R_1=-1$, $R_2=-1$). Pour déduire la température de transition (tr) pour chaque interaction de couplage, nous traçons la susceptibilité totale dans la figure II.10b. Les températures de transition obtenues pour les différents cas sont respectivement $tr \approx 1.6$, 1.5 , 1.2 et 0.8 . De même, la figure II.10c montre l'aimantation totale pour une nanostructure Stannite, avec plusieurs valeurs de couplages d'échange réduits R_1 et R_2 et en l'absence de champ cristallin. Nous constatons que lorsque R_1 et R_2 sont égaux à 1, l'aimantation totale atteint plus rapidement la phase super-paramagnétique que lorsque R_1 est égal à -1 et R_2 à 1, suivie des cas où $R_1=1$ et $R_2=-1$, puis $R_1=-1$ et $R_2=-1$. Pour déduire les températures de transition pour différentes valeurs de R_1 et

R_2 , nous traçons la susceptibilité totale en fonction de la température réduite dans la figure II.10d. Les températures de transition obtenues pour les différents cas sont respectivement $tr \approx 1.25, 1.10, 1.00$ et 0.90 .





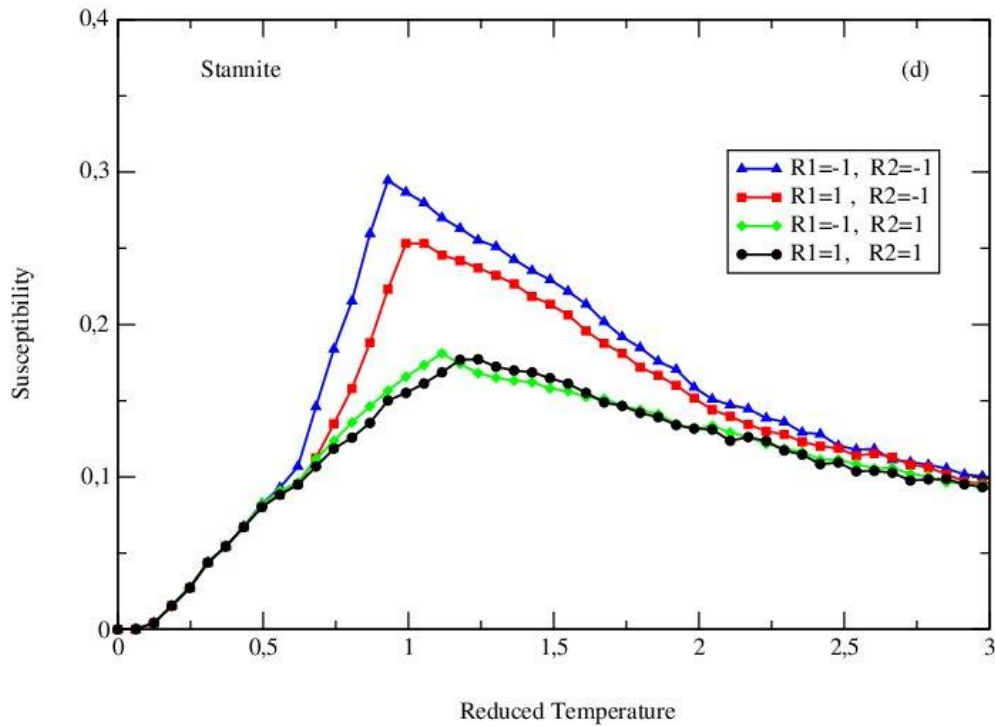


Figure II.10 : Aimantations totales (a, c) et susceptibilités totales (b, d) des nanostructures de Kesterite et de Stannite en fonction de la température réduite pour $d=0$.

Pour mieux cerner le comportement des aimantations totales et des susceptibilités avec la variation de la température réduite pour les deux nanostructures, nous présentons les figures II.11a et 11b avec des paramètres réduits fixes de $R_1=1$, $R_2=1$ et $d=0$. Les résultats indiquent que l'aimantation totale de la nanostructure Stannite atteint la phase super-paramagnétique plutôt que celle de la nanostructure Kesterite, mentionné précédemment. Les températures de transition obtenues pour les nanostructures Stannite et Kesterite sont d'environ $tr = 1.1$ et 1.5 , respectivement.

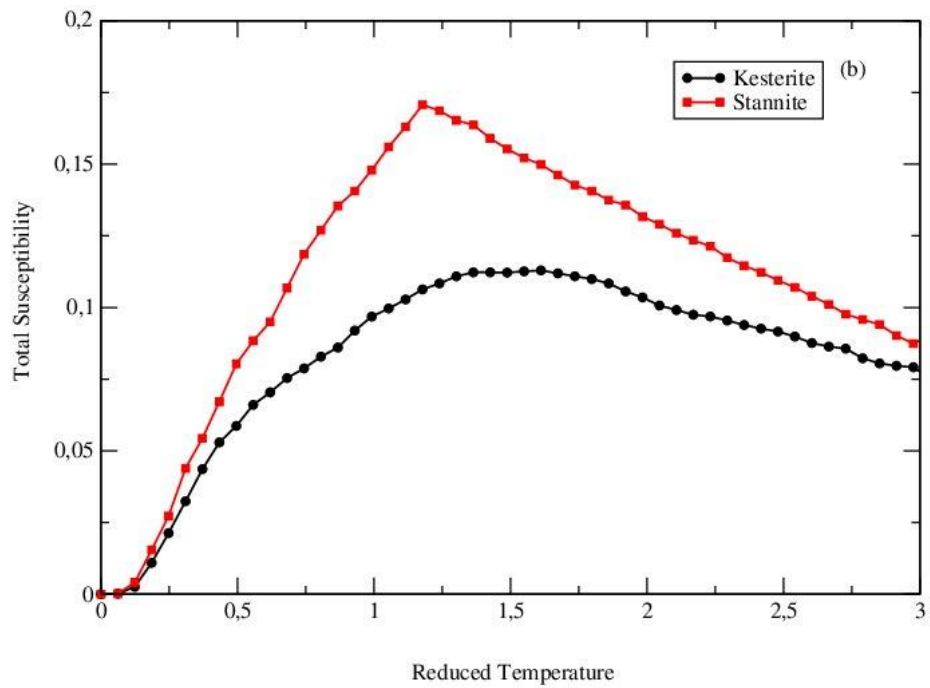
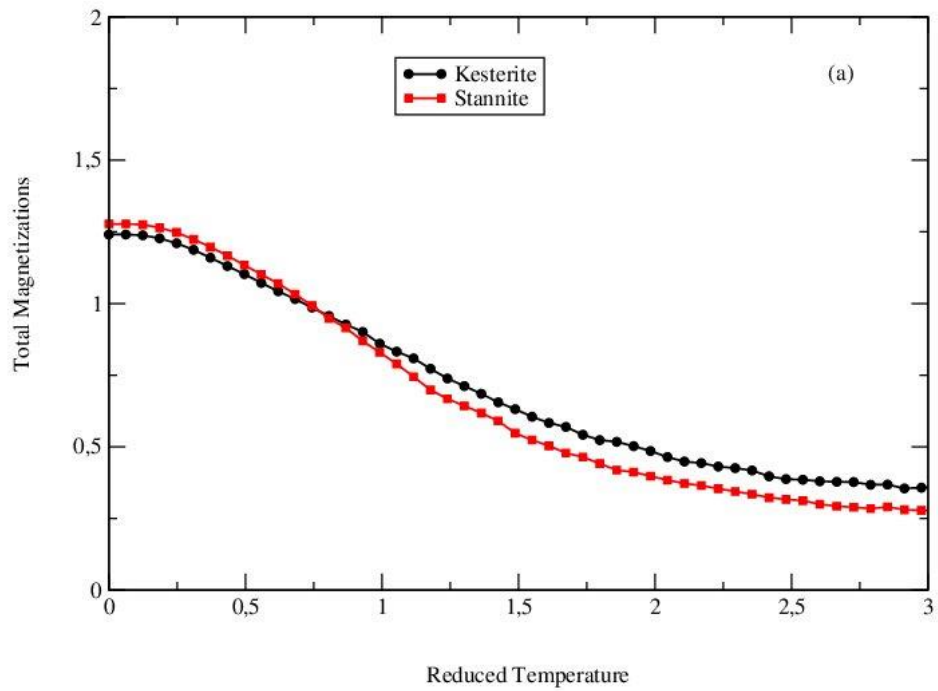


Figure II.11 : Aimantation totale (a) susceptibilité totale (b) des nanostructures Kesterite et Stannite pour: $R_1=1$, $R_2=1$ et $d=0$.

Les figures II.12a, 12b et 12c sont obtenues pour examiner l'aimantation totale en fonction des interactions réduites R_1 et R_2 , ainsi que du champ cristallin d réduit, pour les nanostructures Kesterite et Stannite à une température réduite fixe $t=0.2$.

La figure II.12a est tracée pour des paramètres réduits fixes de $R_2=1$ et $d=0$. À partir de cette figure, les nanostructures Kesterite et Stannite présentent trois régions différentes :

► $R_1 < -2$

Dans cette région, l'aimantation totale est de 0.70 pour les nanostructures Kesterite et de 0.73 pour les nanostructures Stannite.

► $-2 < R_1 < +2$

L'aimantation totale augmente à mesure que le paramètre R_1 augmente afin d'atteindre une valeur de saturation.

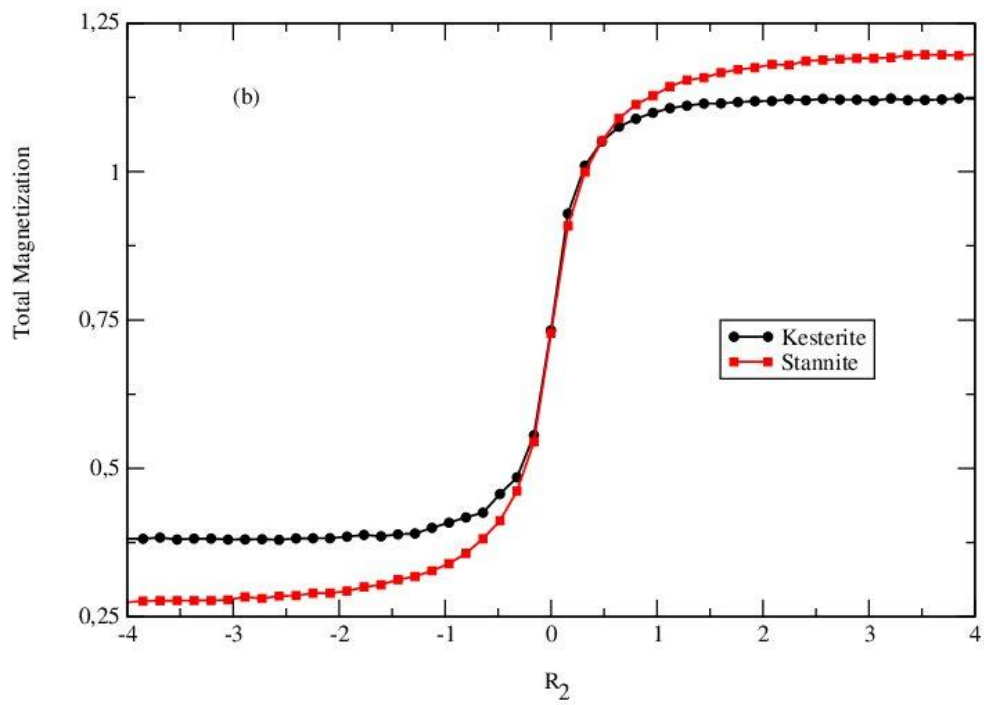
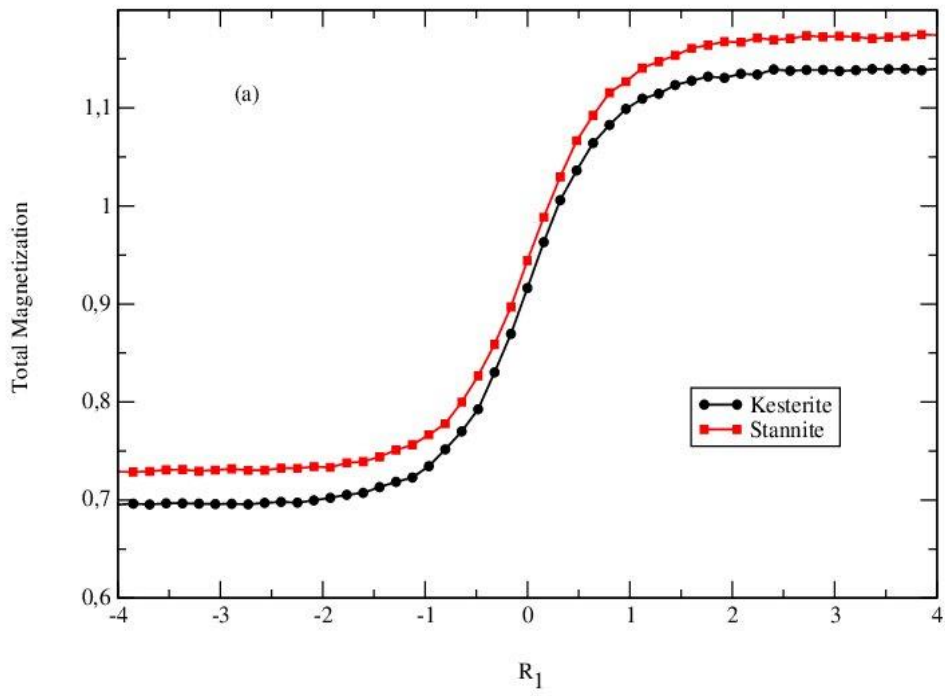
► $R_1 > +2$

Dans cette région, les valeurs des aimantations totales restent constantes (1.14 pour les Kesterite et 1.17 pour les Stannite).

Dans le même contexte, la Figure II.12b est tracée en fixant les paramètres réduits : $R_1=1$ et $d=0$. Cette figure montre que ces nano-systèmes présentent également trois régions distinctes :

Dans la première région (i), l'aimantation totale est de 0.37 pour la nanostructure Kesterite et de 0.26 pour la nanostructure Stannite. Toutefois, dans la deuxième région (ii), l'aimantation totale augmente. Finalement, dans la troisième région (iii), les aimantations totales atteignent leurs valeurs de saturation (1.12 pour la Kesterite et 1.19 pour la Stannite).

En outre, la Figure II.12c est obtenue en fixant les paramètres réduits à $R_1=1$ et $R_2=1$. À partir de cette figure, on peut aussi identifier trois régions différentes. La première région correspond à $-2.5 < d$, où les aimantations totales des nanostructures Kesterite et Stannite se trouvent en phase paramagnétique. Cette phase paramagnétique est due à la concurrence entre les interactions d'échange et le champ cristallin. En outre, dans la deuxième région, les nano-systèmes subissent une transition pour $-2.5 < d < 0$ avant d'atteindre leurs valeurs de saturation dans la troisième région correspondant à $d > 0$ (1.18 pour la Kesterite et 1.23 pour la Stannite).



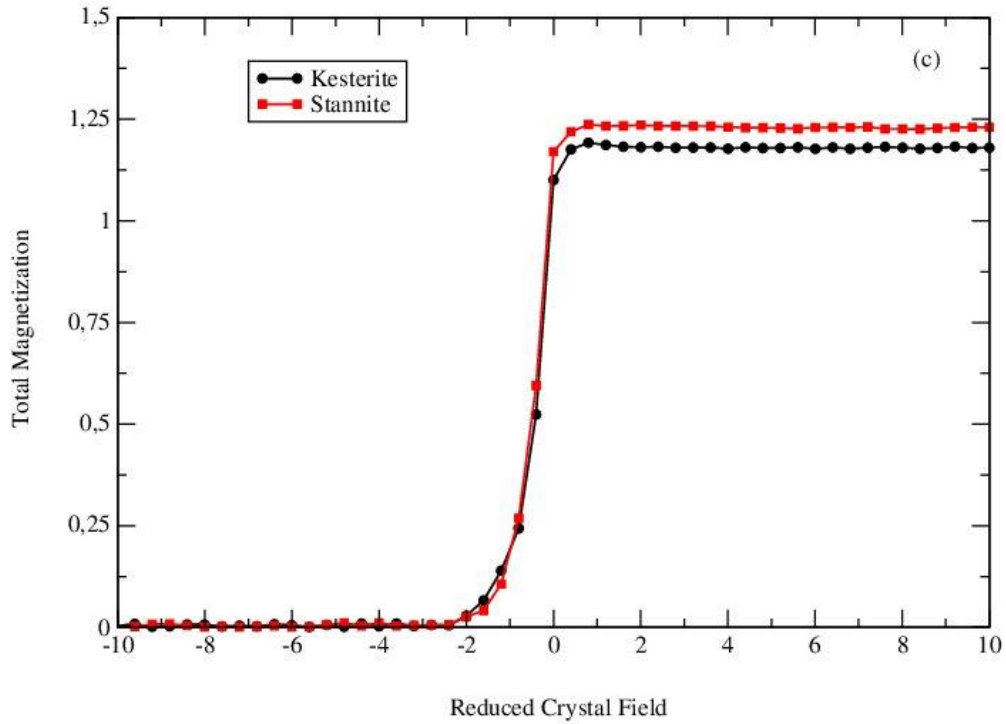


Figure II.12 : Aimantations totales en fonction des paramètres réduits R_1 , R_2 et d pour $t=0.5$.
 (a) : $R_2=1$ et $d=0$, (b) : $R_1=1$ et $d=0$ et (c) : $R_1=1$ et $R_2=1$.

II.2 .4. Conclusion

Pour conclure, nous avons comparé les propriétés magnétiques par application de la simulation Monte Carlo à nos systèmes. Puis, nous avons déterminé les températures de transitions et examiné leur comportement en faisant varier les interactions d'échange réduites et le champ cristallin réduit. De plus, nous avons constaté que les aimantations de la nanostructure Stannite augmentent lorsque les interactions d'échange varient. La disparité des résultats entre les nanostructures de Kesterite et de Stannite est due à la différence dans la composition atomique de zinc (Zn) et de cuivre (Cu) entre ces deux structures. En outre, les valeurs d'aimantation totale des nanostructures de Kesterite et de Stannite sont sensibles aux fluctuations du champ cristallin réduit.

Chapitre III

Propriétés magnétiques et
magnétocaloriques de la nanostructure
4-(Mg₄C₅₆) type Graphullerène : Étude
par méthode Monte Carlo

III.1. Introduction

Depuis la découverte du graphène, premier matériau bidimensionnel [115], les chercheurs se sont intéressés aux propriétés intrinsèques des matériaux à deux dimensions. La découverte d'autres matériaux 2D [116-120], dont certains présentent des propriétés magnétiques intéressantes, a suscité un intérêt croissant [121-123]. Notre recherche se focalise sur le type de polymère cristallin 2D à base de C_{60} , appelé Graphullerène, qui établit un lien entre les matériaux moléculaires et les matériaux à base de carbone étendu. Cette structure est composée de sous-unités de fullerène interconnectées et disposées de manière hexagonale, formant une feuille moléculaire. L'un des polymères fullerènes les plus étudiés est le fullerène de magnésium de formule Mg_4C_{60} . Les auteurs de cette étude ont mené de nombreuses expériences pour synthétiser cette structure et étudier ses propriétés [124-127].

Notre travail est présenté comme suit : La section 2 fournit une description brève du cadre de modélisation utilisé dans nos simulations, y compris les équations utilisées pour calculer les paramètres physiques fondamentaux. La section 3 présente les résultats de nos recherches. La sous-section 3.1 offre un aperçu des diagrammes de phase à l'état fondamental, tandis que la sous-section 3.2 traite les propriétés magnétiques et magnétocaloriques. Enfin, dans la section 4, nous résumons nos résultats et tirons des conclusions.

III.2. Modèle et méthode de calcul

Dans notre étude, nous avons examiné un système comprenant 240 spins, qui peuvent être divisés en deux types d'atomes : 224 atomes de spins (σ) et 16 atomes de spins (S) (comme illustré dans la Figure III.1. Nous notons $N_T = N_\sigma + N_S = 240$. Notre étude considère une interaction ferromagnétique entre deux atomes voisins identiques (σ - σ ou S - S), tandis qu'une interaction ferrimagnétique est prise en compte entre les différents types d'atomes (σ - S). Pour obtenir nos données, nous avons effectué 10^6 configurations par spin à chaque étape, en excluant les 10^5 premières itérations pour atteindre l'état d'équilibre.

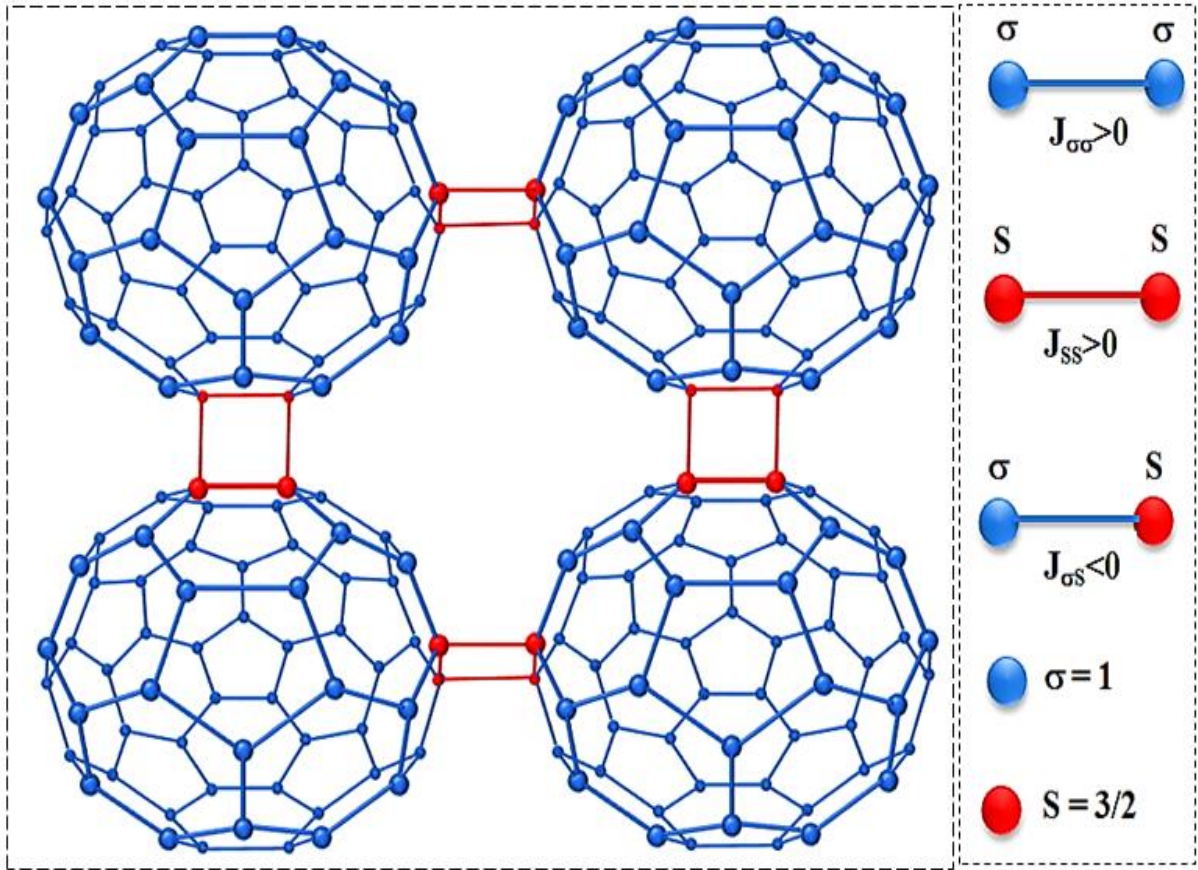


Figure III.1: Illustration schématique d'une nanostructure de type Graphullerène. Les boules bleues symbolisent les spins σ et les boules rouges les spins S . Ces spins sont interconnectés par plusieurs interactions de couplage d'échange.

L'expression suivante est celle de l'hamiltonien du système étudié :

$$\mathcal{H} = -J_{SS} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j - J_{\sigma S} \sum_{\langle k,l \rangle} \sigma_k \mathbf{S}_l - J_{\sigma\sigma} \sum_{\langle m,n \rangle} \sigma_m \sigma_n - H \sum_i (\mathbf{S}_i + \sigma_i) - D_S \sum_i \mathbf{S}_i^2 - D_\sigma \sum_i \sigma_i^2 \quad (\text{III.1})$$

Les notations $\langle i, j \rangle$, $\langle k, l \rangle$ et $\langle m, n \rangle$ indiquent que la sommation est effectuée uniquement sur les spins les plus proches. Les spins σ peuvent prendre les valeurs ± 1 et 0 , tandis que les spins S peuvent prendre les valeurs $\pm 3/2$ et $\pm 1/2$. Les interactions d'échange sont représentées par J_{SS} , $J_{\sigma S}$ et $J_{\sigma\sigma}$, qui correspondent respectivement aux interactions entre les atomes S - S , σ - S et σ - σ . H représente le champ magnétique externe, D_S et D_σ sont les champs cristallins qui affectent les spins S et σ , respectivement. Pour simplifier, nous supposons que $D = D_S = D_\sigma$ dans nos simulations.

Dans cette étude, plusieurs paramètres physiques sont calculés

L'énergie interne par site :

$$E = \frac{1}{N_T} \langle \mathcal{H} \rangle \quad (\text{III. 2})$$

Les aimantations partielles (M_S et M_σ) et totale (M_{tot}) de la nanostructure de type Graphullerène sont les suivantes :

$$M_S = \frac{1}{N_S} \sum_{i=1}^{N_S} \langle S_i \rangle \quad (\text{III. 3})$$

$$M_\sigma = \frac{1}{N_\sigma} \sum_{j=1}^{N_\sigma} \langle \sigma_j \rangle \quad (\text{III. 4})$$

L'aimantation totale est donnée par :

$$M_{tot} = \frac{N_S M_S + N_\sigma M_\sigma}{N_S + N_\sigma} \quad (\text{III. 5})$$

Les susceptibilités partielles (χ_S et χ_σ) et totale χ_{tot} de la nanostructure de type Graphullerène sont données par :

$$\chi_S = \beta (\langle M_S^2 \rangle - \langle M_S \rangle^2) \quad (\text{III. 6})$$

$$\chi_\sigma = \beta (\langle M_\sigma^2 \rangle - \langle M_\sigma \rangle^2) \quad (\text{III. 7})$$

$$\chi_{tot} = \frac{N_S \chi_S + N_\sigma \chi_\sigma}{N_S + N_\sigma} \quad (\text{III. 8})$$

Les chaleurs spécifiques magnétiques partielles $(C_m)_S$, $(C_m)_\sigma$ et totale $(C_m)_{tot}$ de la nanostructure sont exprimées comme suit :

$$(C_m)_S = \beta (\langle E_S^2 \rangle - \langle E_S \rangle^2) \quad (\text{III. 9})$$

$$(C_m)_\sigma = \beta(\langle E_\sigma^2 \rangle - \langle E_\sigma \rangle^2) \quad (III. 10)$$

$$(C_m)_{tot} = \frac{N_S(C_m)_S + N_\sigma(C_m)_\sigma}{N_S + N_\sigma} \quad (III. 11)$$

Le cumulante de Binder est une quantité sans dimension qui est souvent utilisée pour estimer la température de transition dans un changement de phase. Dans cette étude, il est défini comme suit [128] :

$$U_S = 1 - \frac{\langle M_S^4 \rangle}{3\langle M_S^2 \rangle^2} \quad (III. 12)$$

$$U_\sigma = 1 - \frac{\langle M_\sigma^4 \rangle}{3\langle M_\sigma^2 \rangle^2} \quad (III. 13)$$

$$U_{tot} = 1 - \frac{\langle M_{tot}^4 \rangle}{3\langle M_{tot}^2 \rangle^2} \quad (III. 14)$$

De nombreux paramètres physiques, tels que l'entropie magnétique (S), l'entropie magnétique de change ($-\Delta S_m$) et le pouvoir de refroidissement relatif (RCP) sont calculés pour examiner les propriétés magnéto-caloriques du nano-système étudié.

$$S_m(T, H) = \int_0^T \frac{(C_m)_{tot}}{T'} dT' \quad (III. 15)$$

Avec $(C_m)_{tot}$ la chaleur spécifique magnétique totale, comme indiqué dans l'équation (III.11)

$$\Delta S_m(T, H) = S_m(T, H) - S_m(T, 0) \quad (III. 16)$$

L'entropie magnétique totale est représentée par $S_m(T, H)$ et $S_m(T, 0)$ en présence et en l'absence d'un champ magnétique, respectivement.

Le pouvoir de refroidissement relatif est :

$$\text{RCP} = |\Delta S_m^{\text{Max}}(T, H)| \times \delta T_{\text{FWHM}} \quad (\text{III. 17})$$

Où δT_{FWHM} est la largeur totale à mi-maximum de $\Delta S_m(T, H)$.

III.3. Résultats numériques et discussions

Cette partie aborde les résultats de deux études distinctes menées sur le système : l'état fondamental dans la sous-partie 3.1 et les simulations de Monte Carlo dans la sous-partie 3.2.

III.3.1. Digramme de phase à l'état fondamental (T=0)

Dans cette sous-section, nous explorons les diagrammes de phase à la température de 0 Kelvin en utilisant l'hamiltonien décrit par l'Equation (III.1). Le système étudié présente 12 configurations possibles en combinant les valeurs de spin (σ) et de (S). Chaque valeur de σ ($\sigma=1$) conduit à $2\sigma + 1 = 3$ états possibles, et chaque valeur de S ($S=3/2$) donne $2S + 1 = 4$ états possibles. Nous identifions les configurations stables par les énergies minimales obtenues à partir de l'hamiltonien du système.

Dans la figure III.2a du plan (H, D), nous avons fixé les valeurs des interactions d'échange à $J_{SS} = 1, J_{\sigma\sigma} = 1$ et $J_{\sigma S} = -1$. Parmi les 12 configurations possibles, seules 10 sont stables. Ces configurations stables présentent une symétrie parfaite autour de l'axe $H = 0$. Pour H positif, les configurations stables sont $(0, +1/2), (+1/2, -1/2), (+1, +1/2), (+1, -3/2)$ et $(+1, +3/2)$. En revanche, pour H négatif, les configurations stables sont $(0, -1/2), (-1, +1/2), (-1, -1/2), (-1, +3/2)$ et $(-1, -3/2)$.

Dans la figure III.2b du plan (H, J_{SS}) avec $D = 0$ et des valeurs fixes pour les interactions de couplage d'échange ($J_{\sigma\sigma} = 1$ et $J_{\sigma S} = -1$), nous observons 10 configurations stables. Pour des valeurs positives de H , les configurations stables sont $(+1, -1/2), (+1, +1/2), (+1, -3/2)$ et $(+1, +3/2)$. Pour des valeurs négatives de H , les configurations stables sont $(-1, +1/2), (-1, -1/2), (-1, +3/2)$ et $(-1, -3/2)$. Ces configurations présentent une symétrie parfaite autour de l'axe $H = 0$.

De plus, dans la figure III.2c, avec $D = 0$ (absence du champ cristallin) pour les valeurs fixes ($J_{SS} = 1, J_{\sigma S} = -1$), nous observons seulement 6 configurations stables dans le plan ($H, J_{\sigma\sigma}$). Ces configurations stables sont : $(0, +3/2), (+1, -3/2), (+1, +3/2)$ pour des valeurs positives de H , et $(0, -3/2), (-1, +3/2), (-1, -3/2)$ pour des valeurs négatives de H . De plus, ces configurations présentent une symétrie parfaite autour de l'axe $H = 0$.

Dans la figure III.2d du plan $(H, J_{\sigma S})$ où $D=0$ et les interactions d'échange $J_{SS}=1$ et $J_{\sigma\sigma}=1$, nous observons une symétrie parfaite. Seules 4 configurations stables sont présentes : $(-1, +3/2)$ et $(-1, -3/2)$ pour des valeurs négatives de H , $(+1, -3/2)$ et $(+1, +3/2)$ pour des valeurs positives de H .

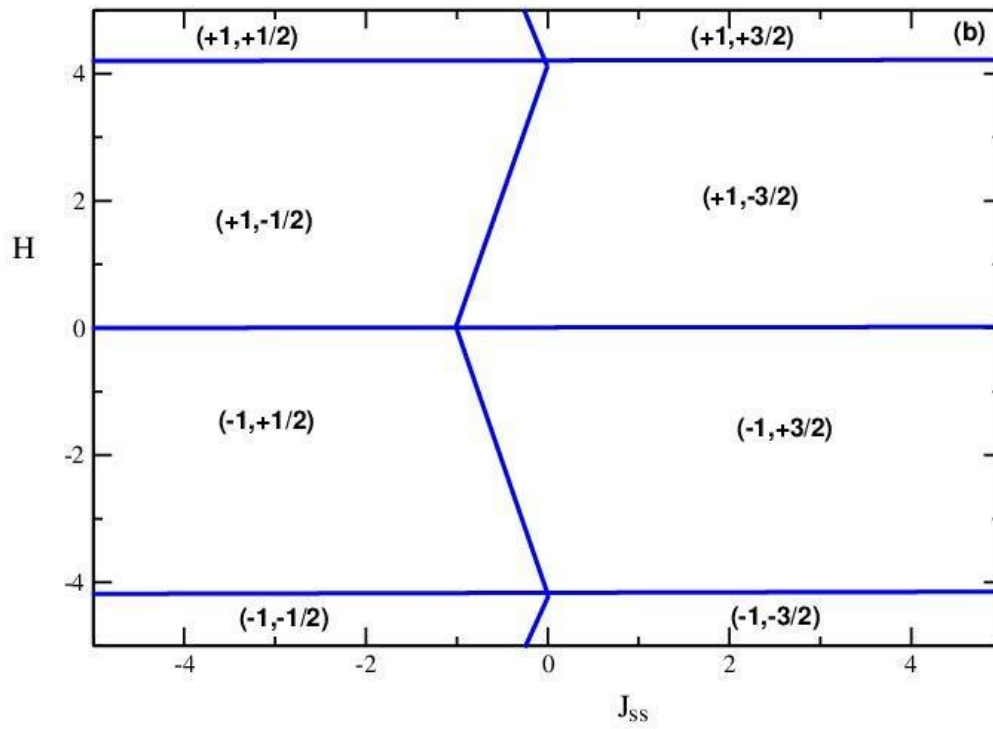
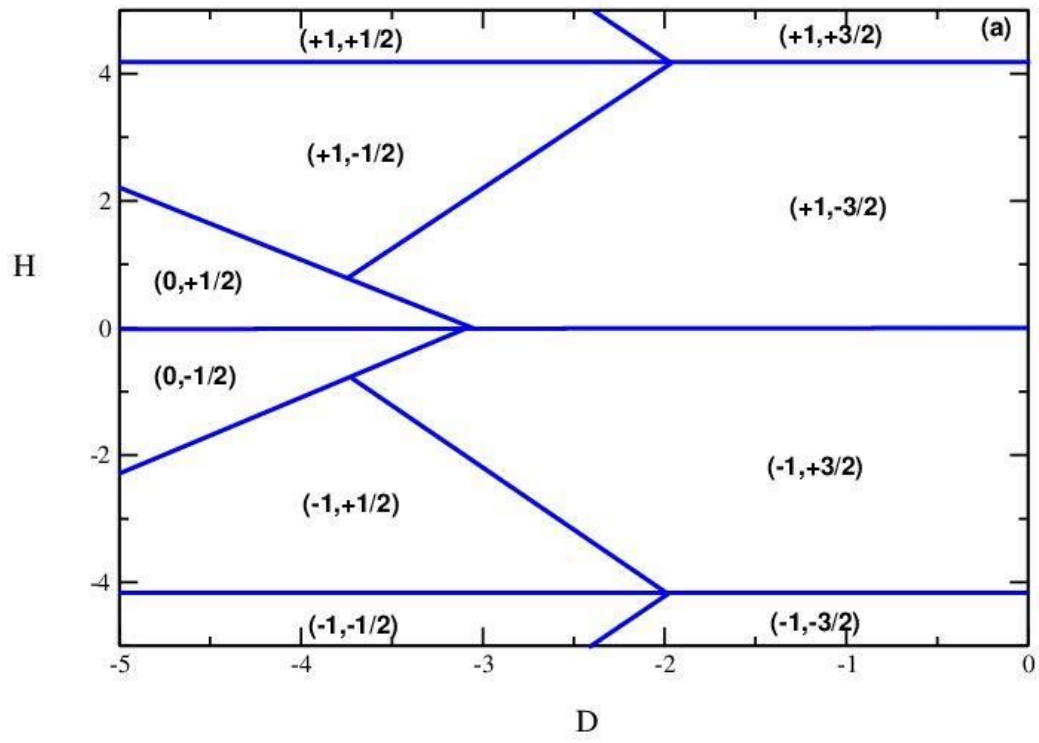
La figure III.2e présente le plan (D, J_{SS}) avec $H=0$ et des valeurs de paramètres ferrimagnétiques fixes : $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$. La figure montre que seules huit configurations sont stables sur les 12 possibles, à savoir : $(0, +1/2)$; $(0, -1/2)$, $(+1, -1/2)$, $(-1, +1/2)$, $(0, +3/2)$, $(0, -3/2)$, $(+1, -3/2)$, et $(-1, +3/2)$.

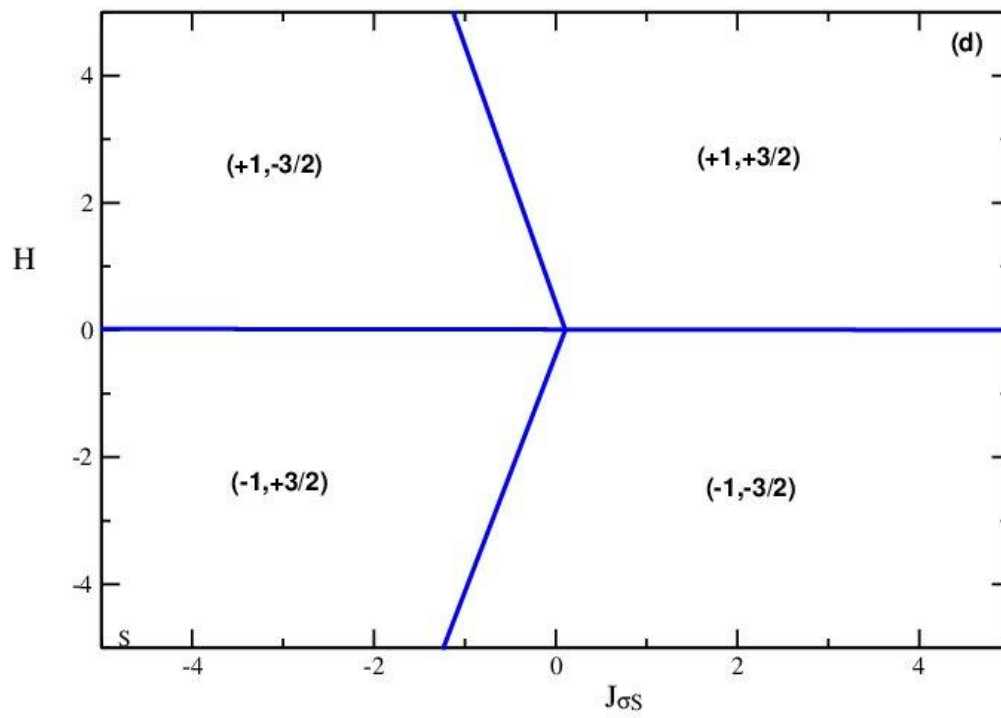
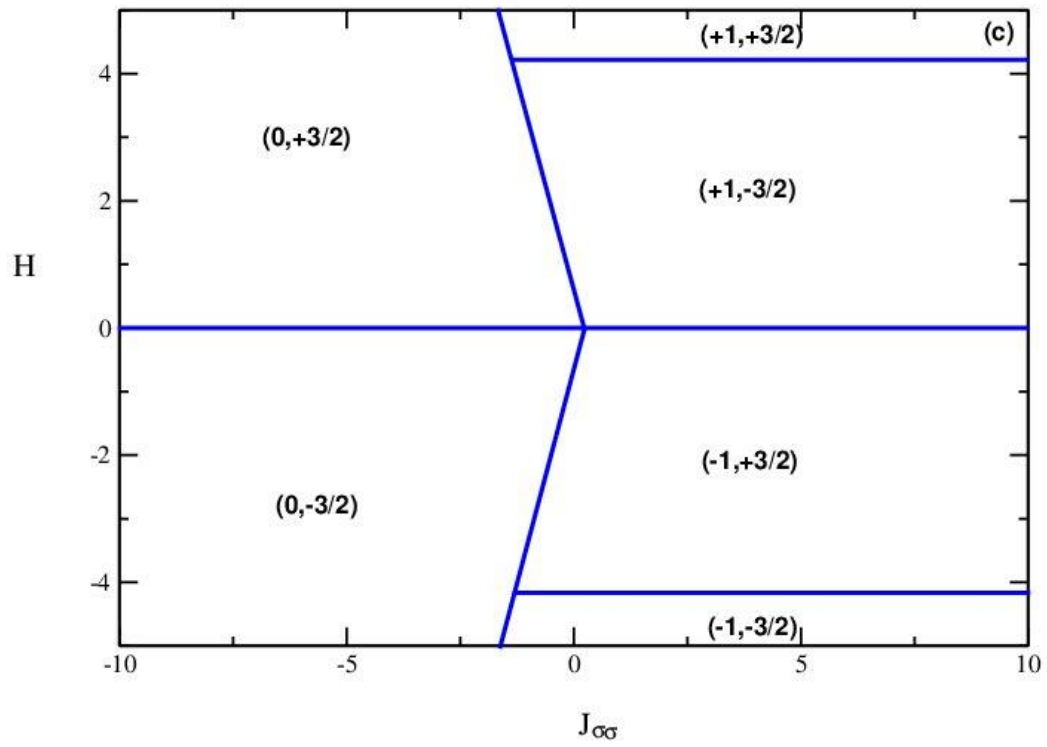
La figure III.2f illustre le plan $(D, J_{\sigma S})$ en l'absence de champ magnétique ($H=0$) pour des valeurs fixes des constantes d'échange $J_{SS}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$. Cette figure révèle 8 configurations stables, à savoir : $(0, +1/2)$; $(0, -1/2)$; $(0, +3/2)$; $(0, -3/2)$; $(+1, -1/2)$; $(-1, +1/2)$; $(+1, -3/2)$; et $(-1, +3/2)$.

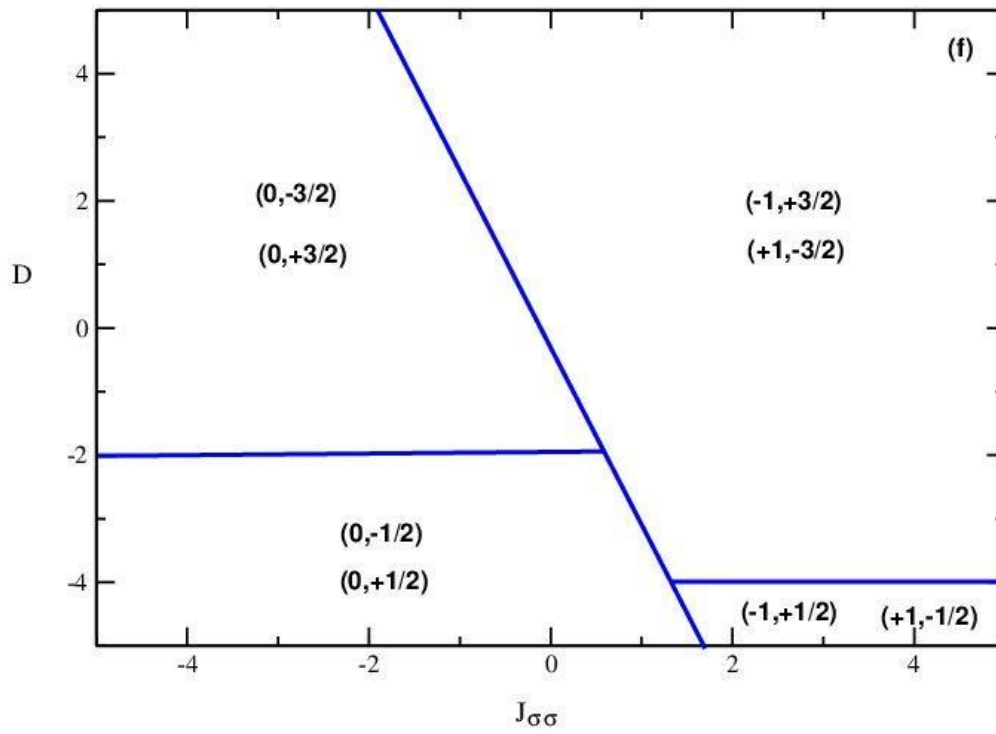
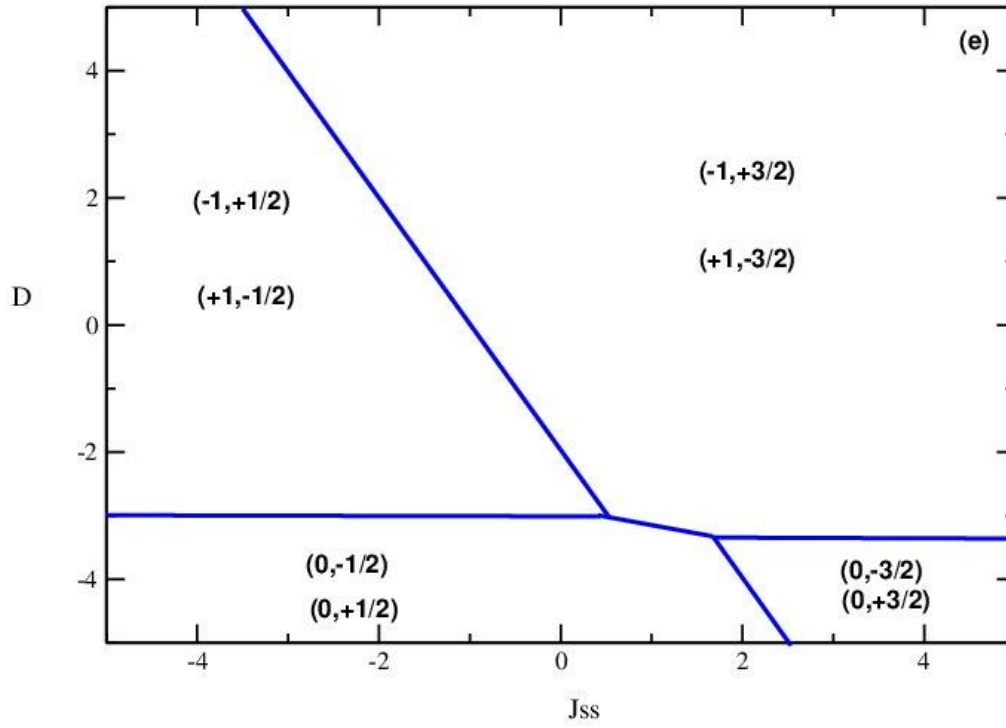
Dans la figure III.2g du plan $(D, J_{\sigma S})$ avec des valeurs fixes des interactions d'échange ($J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$) en l'absence de champ magnétique externe ($H=0$), nous observons 10 configurations stables. Ces configurations sont les mêmes que celles représentées dans la figure 2a.

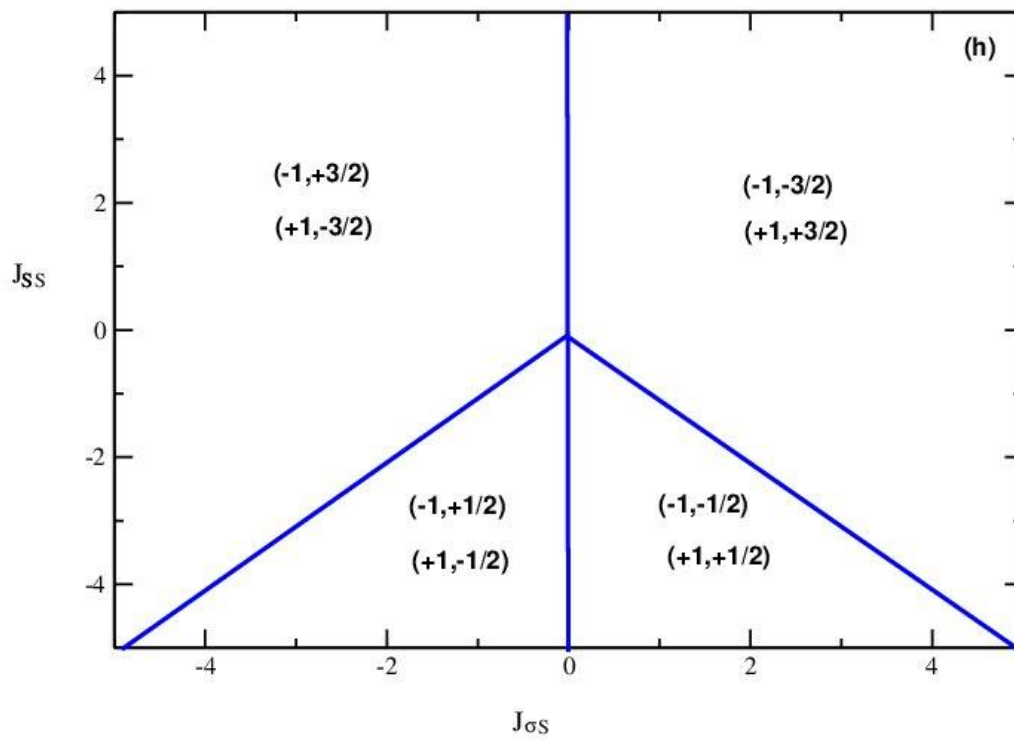
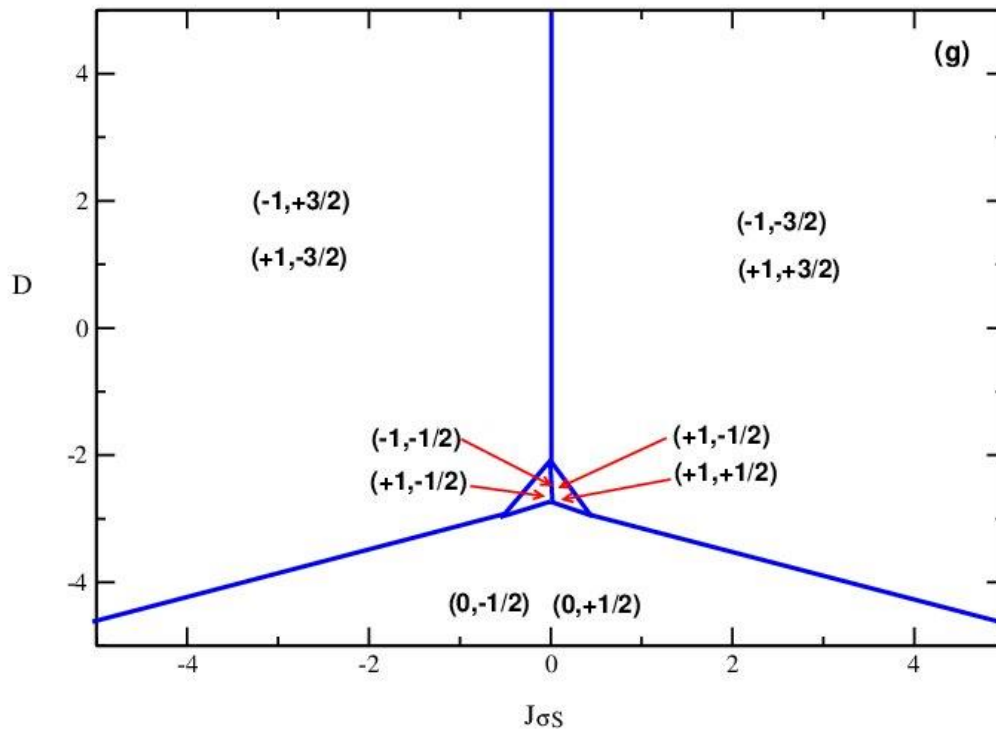
La figure III.2h est tracée dans le plan $(J_{SS}, J_{\sigma S})$ avec une valeur fixe de $J_{\sigma\sigma}=1$ et en l'absence des deux champs ($H=0$, $D=0$). Elle présente 8 phases stables : $(-1, +1/2)$, $(+1, -1/2)$, $(-1, -1/2)$, $(+1, +1/2)$, $(-1, +3/2)$, $(+1, -3/2)$, $(-1, -3/2)$ et $(+1, +3/2)$.

Finalement, La figure III.2i est tracée dans le plan $(J_{\sigma\sigma}, J_{\sigma S})$ pour $J_{SS}=1$, en l'absence des deux champs magnétique externe et cristallin. Cette figure présente 6 configurations stables : $(0, +3/2)$, $(0, -3/2)$, $(+1, -3/2)$, $(-1, +3/2)$, $(+1, +3/2)$, et $(-1, -3/2)$.









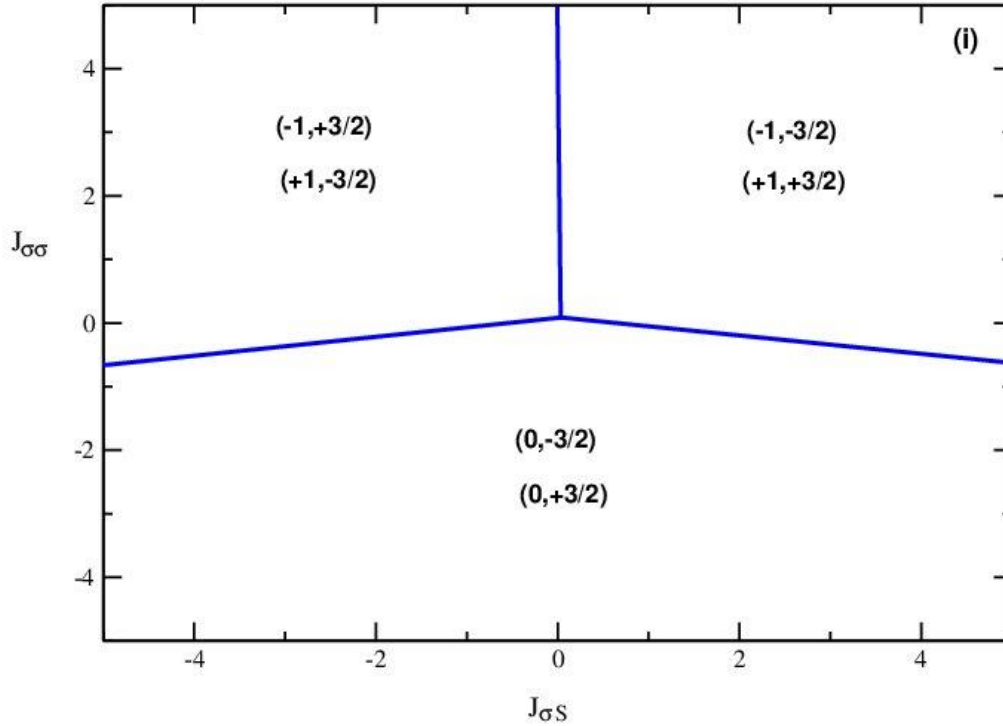


Figure III.2: Diagrammes de phase à l'état fondamental pour : (a) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$, (b) $J_{\sigma\sigma}=1$, $J_{\sigma S}=-1$ et $D=0$, (c) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma S}=-1$ et $D=0$, (d) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $D=0$, (e) $J_{\sigma\sigma}=1$, $J_{\sigma S}=-1$ et $H=0$, (f) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma S}=-1$ et $H=0$, (g) $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $H=0$, (h) $J_{\sigma\sigma}=1$, $D=0$ et $H=0$, (i) $J_{SS}=1$, $D=0$ et $H=0$.

III.3.2. Simulations de Monte Carlo

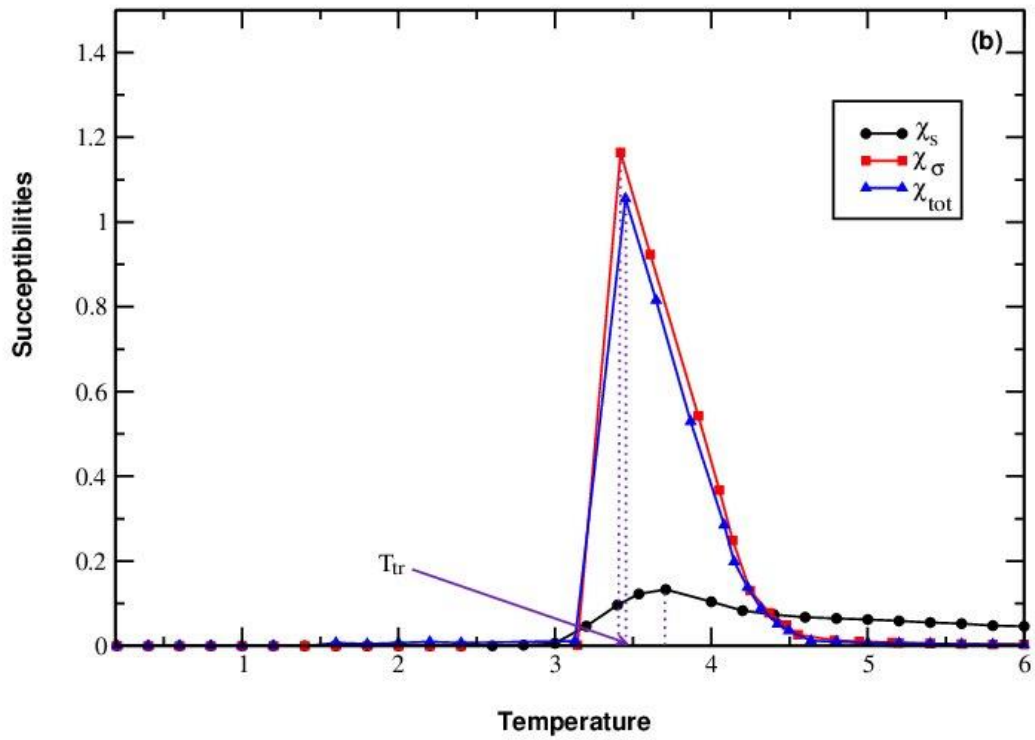
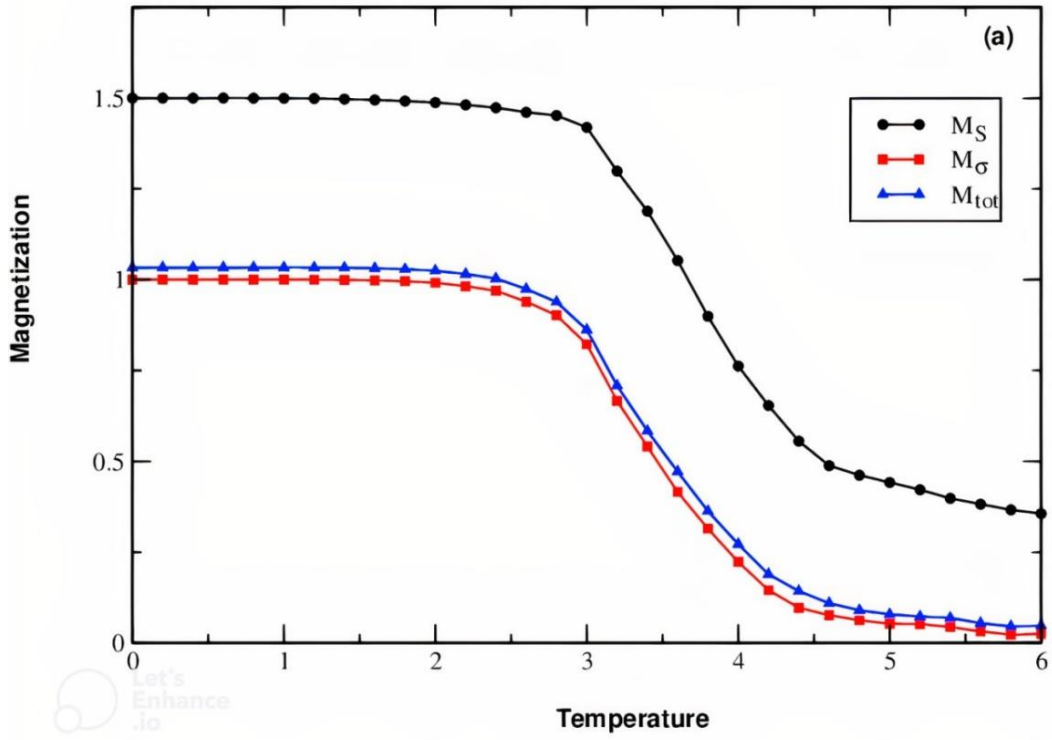
Dans cette partie, nous procéderons à une analyse et une discussion des résultats obtenus. Nous commencerons par présenter l'aimantation (M), la susceptibilité magnétique (χ), la chaleur spécifique magnétique (C_m) et le cumulante de Binder (U) dans la sous-section 3.2.1. Ensuite, nous examinerons l'entropie magnétique (Sm), le changement d'entropie magnétique ($-\Delta Sm$) et le pouvoir de refroidissement relatif (RCP) dans la sous-section 3.2.2.

III.3.2.1. Propriétés magnétiques

Les figures III.3a-3d illustrent le comportement thermique de différentes propriétés magnétiques, à savoir les aimantations partielles et totales, les susceptibilités, la chaleur spécifique magnétique et le cumulante de Binder. Ces résultats ont été effectués en utilisant des paramètres de couplage d'échange fixes, notamment $J_{SS} = 1$, $J_{\sigma\sigma} = 1$ et $J_{\sigma S} = -1$, sans

champ magnétique ($H=0$) ni champ cristallin ($D=0$). Dans la figure III.3a, nous observons le comportement des aimantations partielles M_S et M_σ ainsi que l'aimantation totale M_{tot} avec la variation de la température. Dans le nano-système étudié, les aimantations partielles $M_\sigma = 1$ et $M_S = 3/2$ et l'aimantation totale du système est $M_{tot} = ((1 \times 224) + (3/2 \times 16))/240 = 1,03$, à très basse température.

Les valeurs de spin observées sont cohérentes avec les diagrammes de phase à l'état fondamental identifiés dans la section 3.1. À mesure que le système se rapproche de sa température de transition, ses aimantations diminuent. Lorsque la température atteint le point de transition, le système subit un changement de phase et devient paramagnétique. Pour bien identifier la température de transition, nous traçons les susceptibilités magnétiques partielles et totales dans la figure III.3b, en utilisant les mêmes valeurs de paramètres que dans la figure III.3a. Les pics de susceptibilité associés à la température de transition des aimantations pour les spins σ et S sont approximativement $T_{tr}(\sigma) \approx 3.42$ et $T_{tr}(S) \approx 3.7$, respectivement. La susceptibilité totale présente également un pic, qui se produit à $T_{tr}(tot) \approx 3.45$. De plus, la figure III.3c illustre le comportement des chaleurs spécifiques magnétiques partielles $(Cm)_S$, et $(Cm)_\sigma$ et de la chaleur spécifique magnétique totale $(Cm)_{tot}$ en fonction de la température. En se basant sur les pics de ces courbes, la valeur de la transition de température a été déterminée à environ $T_{tr} = 3.45$. En outre, la figure 3d présente le cumulatif de Binder du nano-système en fonction de la température, en l'absence d'un champ magnétique externe. Le point d'intersection des courbes donne la valeur de la température critique (T_{tr}), qui s'est également avérée être d'environ 3.45. Cette valeur représente le point critique de transition du système étudié de l'état ferrimagnétique à l'état paramagnétique.



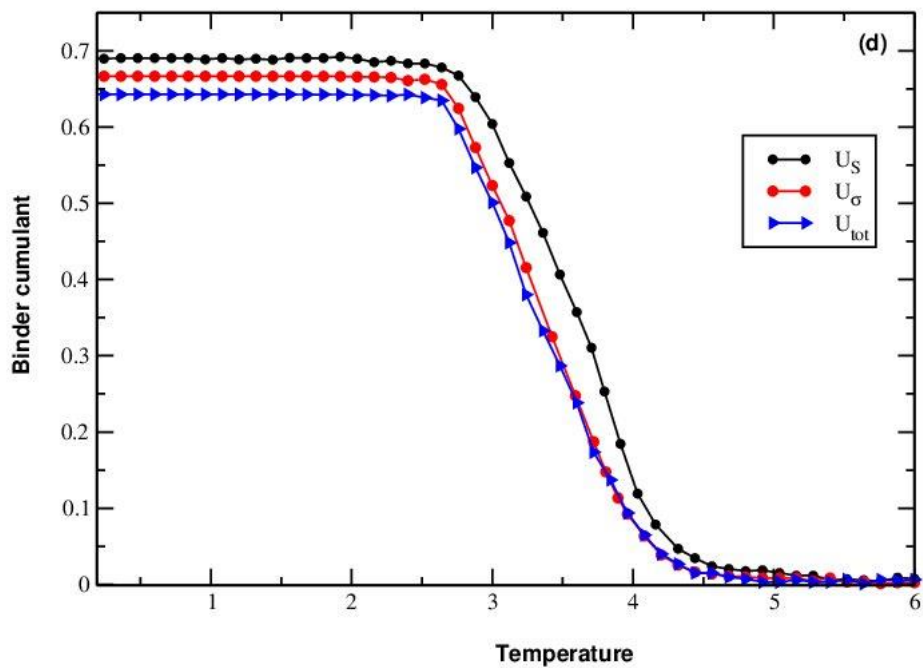
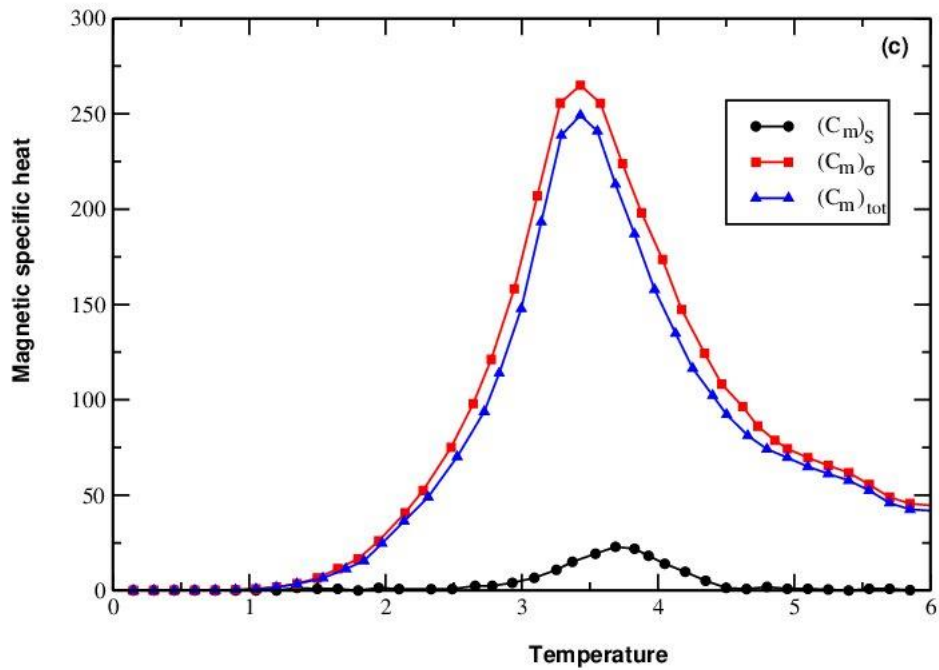
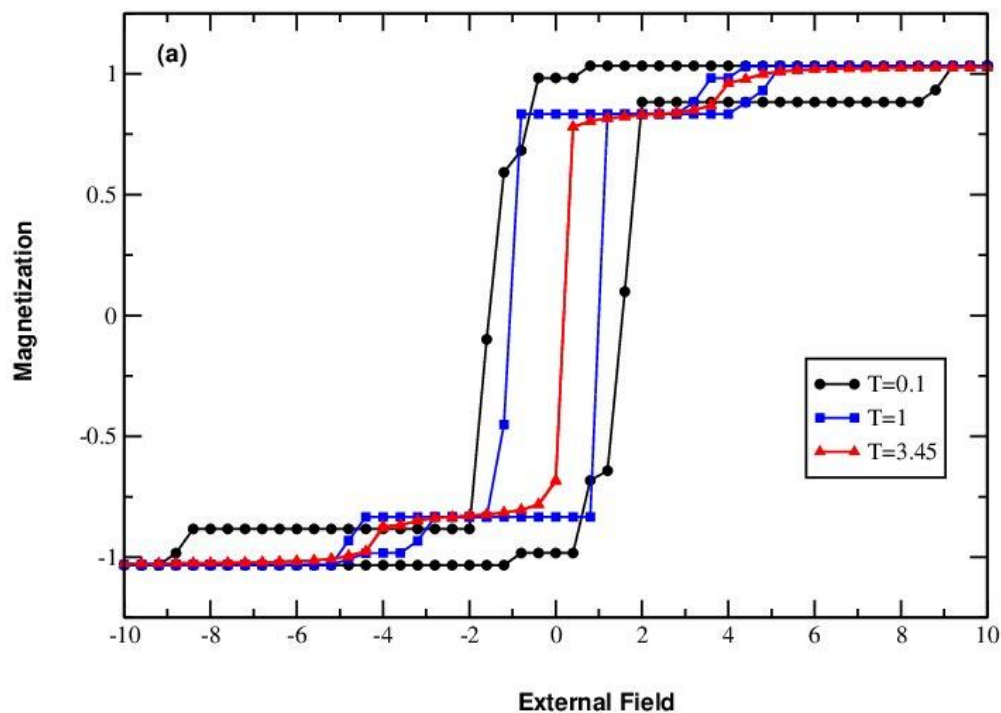


Figure III.3: Comportement thermique de : (a) Aimantations, (b) Susceptibilités (c) Chaleur spécifique magnétique et (d) Binder cumulant : $D=0$, $H=0$, $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$.

Afin d'approfondir l'étude de la nanostructure de type Graphullerène, nous avons analysé les cycles d'hystérésis dans la Figure III.4. Dans cette étude, le champ cristallin est supposé nul ($D=0$), et les autres paramètres sont fixés à $J_{SS}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma S}=-1$.

La figure III.4a représente l'effet de la température sur le comportement de l'hystérésis. Nous avons remarqué que lorsque la température augmente, la surface de la boucle du cycle diminue. Lorsque la température atteint 3.45, la boucle disparaît, indiquant une transition de l'ordre magnétique au désordre magnétique. Ce phénomène est cohérent avec les observations réalisées dans d'autres nanomatériaux magnétiques [129-134]. Ce brusque renversement du comportement magnétique suggère que la nanostructure de type Graphullerène pourrait présenter des applications potentielles en tant que matériau pour le stockage magnétique ou les applications de contrôle de champ. Dans la figure III.4b, nous pouvons observer la surface des boucles du système magnétique pour différentes valeurs du paramètre ($D = -10, -5, 0$ et 5). Nous constatons que plus la valeur de $|D|$ augmente, plus les surfaces des boucles augmentent. Les cycles d'hystérésis présentent des plateaux multiples d'aimantation. Ces plateaux peuvent être attribués à la configuration du spin du système, comme nous l'avons observé précédemment dans la figure III.2.



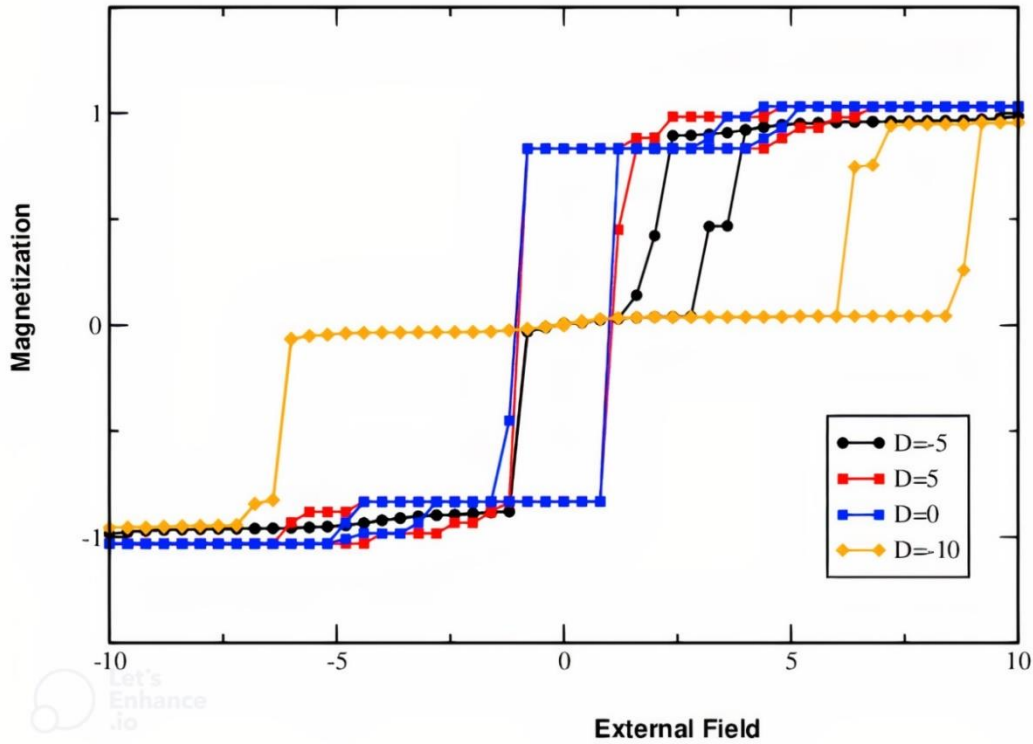


Figure III.4: Cycles d'hystérésis d'une nanostructure Graphullerène pour : (a) : $D=0$, $J_{ss}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma s} = -1$, (b) : $T=1$, $J_{ss}=1$, $J_{\sigma\sigma}=1$ et $J_{\sigma s} = -1$

III.3.2.2. Propriétés magnétocaloriques

Dans cette sous-section, nous évaluerons la capacité d'une nanostructure à effectuer la réfrigération magnétique en analysant trois grandeurs physiques : l'entropie magnétique $S_m(T, H)$, la variation d'entropie magnétique $-\Delta S_m(T, H)$ et la puissance de refroidissement relative (RCP), en faisant varier le champ magnétique externe. L'objectif est de déterminer si la nanostructure est un candidat prometteur pour la réfrigération magnétique.

La figure III.5 montre l'entropie magnétique pour différentes valeurs du champ magnétique. Sur cette figure, nous pouvons observer un déplacement et une diminution des pics d'entropie magnétique lorsque nous augmentons les valeurs de H . Par conséquent, son effet sur la température de transition est tout à fait apparent. En effet, nous constatons que les valeurs de la température de transition T_{tr} augmentent de manière significative lorsque l'on augmente le champ magnétique.

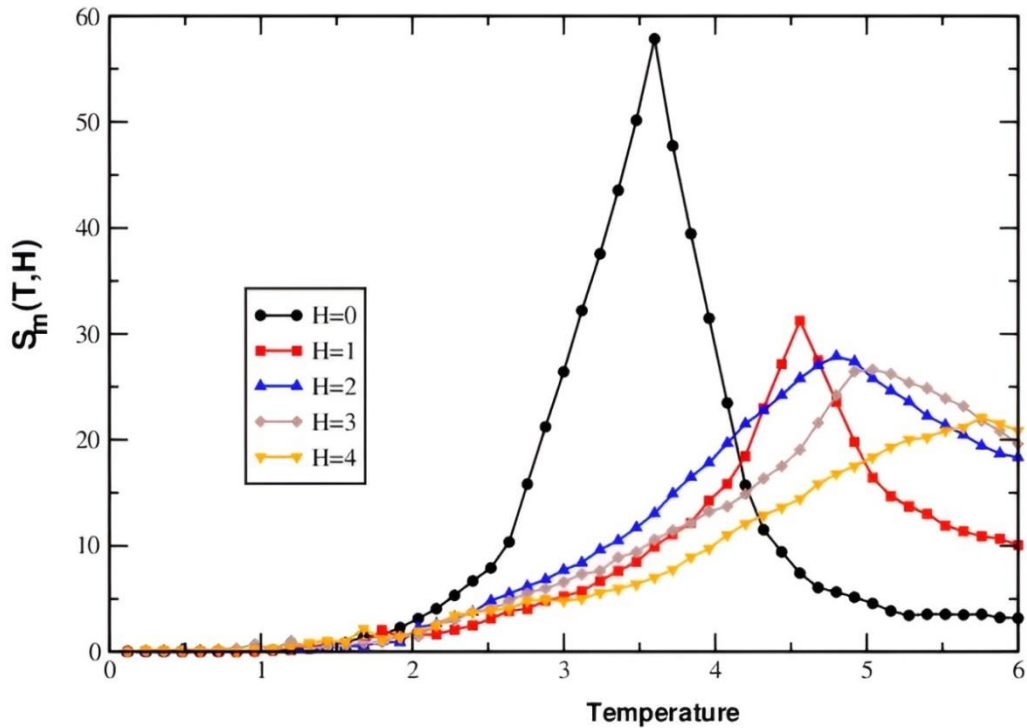


Figure III.5:Entropie magnétique pour différentes valeurs de H ($H= 1, 2, 3$ et $4T$).

La figure III.6 présente la variation de l'entropie magnétique d'une nanostructure en fonction de la température pour différents champs magnétiques appliqués. Comme prévu, nous observons un maximum de $-\Delta S_m(T, H)$ au point de transition de température, qui dépend entièrement de l'intensité du champ magnétique appliqué. Cette propriété est prometteuse pour la réfrigération magnétique au-dessus de la température ambiante, car la valeur de $\Delta S_m(T, H)$ est négative sur toute la plage de températures et s'étend sur une large gamme de températures autour du point de transition. Les valeurs de $-\Delta S_m(T, H)$ atteignent respectivement 20, 24, 26 et 31 pour des champs magnétiques appliqués de 1, 2, 3 et 4. En fait, nous pouvons déduire des figures III.5 et III.6 que la nanostructure présente un effet magnéto-calorique suffisamment important pour être utilisée comme réfrigérateur magnétique. On peut également constater que le maximum du changement d'entropie magnétique $-\Delta S_m^{max}(T, H)$ augmente progressivement avec l'augmentation du champ magnétique appliqué. Il est intéressant de mentionner que nos résultats sont en accord avec ceux des références [135,136].

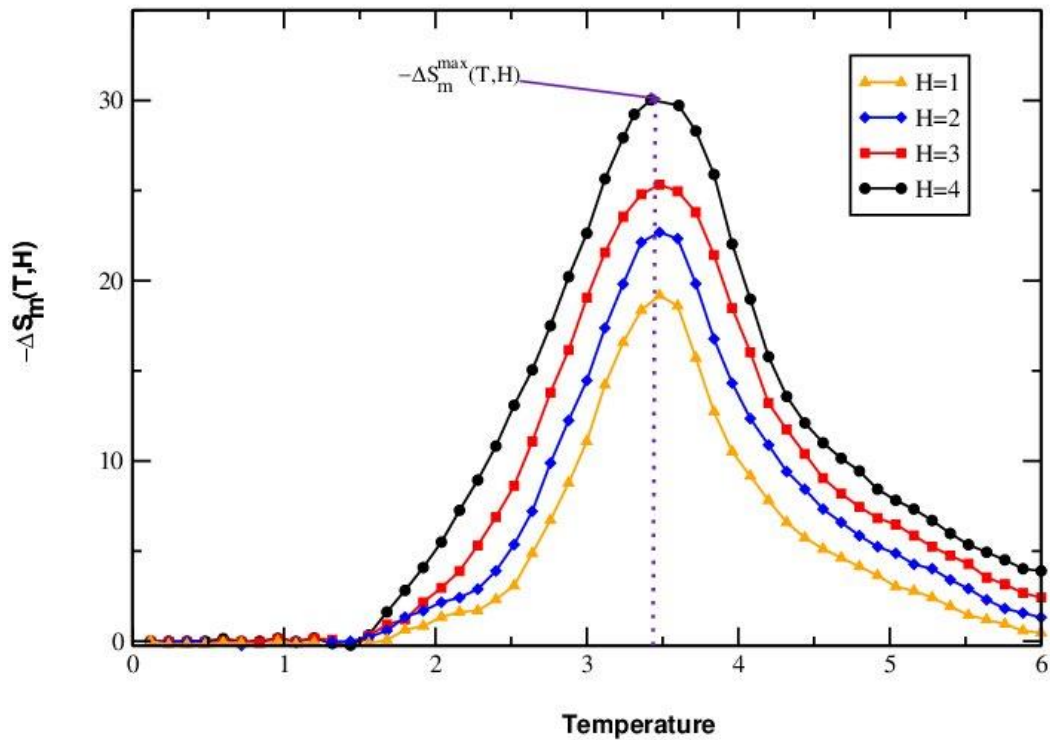


Figure III.6: Entropie magnétique change pour différentes intensités de champ magnétique, plus précisément $H = 1, 2, 3$ et $4T$.

Enfin, nous présentons dans la figure III.7 la puissance de refroidissement relative (*RCP*) en fonction de la variation du champ magnétique. D'après cette figure, on constate une augmentation monotone du *RCP* à mesure que le champ magnétique augmente. Les valeurs de *RCP* atteignent respectivement 16, 25, 35 et 47 pour des valeurs $H=1, 2, 3$ et 4 . La linéarité observée est due à l'augmentation de la valeur maximale du changement d'entropie lorsque le champ magnétique externe du système est augmenté, comme illustré dans la figure III.7. Par conséquent, la puissance de refroidissement relative (*RCP*) est un élément crucial à prendre en compte lors de l'évaluation de la praticité d'un matériau réfrigérant magnétique [137].

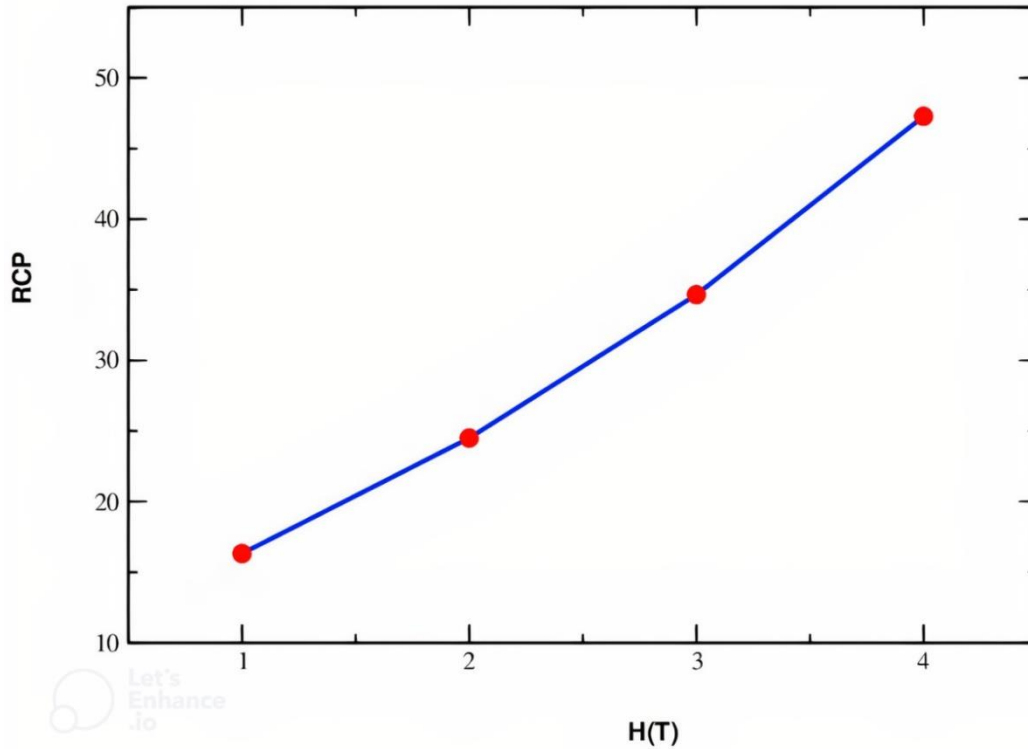


Figure III.7: Pouvoir de refroidissement relatif du système en fonction du champ magnétique de $H=0T$ à $H = 1, 2, 3$ et $4T$.

III.4. Conclusion

Cette étude visait à étudier les comportements magnétiques et magnétocaloriques d'une nanostructure de type Graphullerène avec des spins mixtes $\sigma=1$ et $S=3/2$, en utilisant des simulations de Monte Carlo, pour établir des diagrammes de phase à l'état fondamental dans plusieurs plans de paramètres physiques, révélant une symétrie parfaite à l'axe $H=0$ dans quatre plans : (H, D) , (H, J_{SS}) , $(H, J_{\sigma\sigma})$ et $(H, J_{\sigma S})$. Par ailleurs, l'étude a identifié la transition de la phase ferrimagnétique à la phase paramagnétique. De plus, l'étude a montré que le changement maximal de l'entropie magnétique $(-\Delta S_m^{max}(T, H))$ et le pouvoir de refroidissement relatif (RCP) augmentaient avec l'augmentation du champ magnétique externe. Cela suggère que le système étudié présente un potentiel pour la réfrigération magnétique. Les résultats obtenus contribuent à une meilleure compréhension des propriétés des matériaux magnétiques bidimensionnels, ce qui peut avoir d'importantes implications pour le développement de nouvelles technologies et applications. En particulier, le système étudié présente un potentiel pour la réfrigération magnétique et pourrait avoir des applications

pratiques significatives dans le domaine des technologies de refroidissement. Ce travail théorique peut représenter une étape importante vers une compréhension plus approfondie de ces caractéristiques, ce qui pourrait conduire à de nouvelles découvertes et applications à l'avenir.

Chapitre IV

Effet de la dilution sur les propriétés
magnétiques des composés nano-
Heusler Ru_2MnX ($X = \text{Nb}, \text{Ta}, \text{V}$):
Etude Monte Carlo

IV.1. Introduction

Depuis la découverte des alliages Heusler [138], les substances contenues dans ces alliages ont suscité l'attention des chercheurs en raison de leur grande variété d'applications [139-146]. Ainsi, des tentatives théoriques et expérimentales ont été réalisées pour découvrir de nouveaux alliages Heusler. En effet, pour les alliages Heusler à base de Fe, nous avons étudié leurs propriétés structurales, électroniques et magnétiques [147]. De même, pour les composés Heusler quaternaires équi-atomiques à base de Co [148], le comportement semi-métallique de Co_2MnZ ($Z=\text{Al, Ge, Si, Ga}$) [149], l'étude de la demi-métallicité et du magnétisme en masse et en surface de Fe_2MnP [150], ainsi que l'étude de la demi-métallicité de l'alliage FeMnP et le magnétisme des composés quaternaires ZrTiAl (Ni/Pd/Ru) pour les applications spintroniques [151].

Dans cette étude, nous nous intéressons à l'étude de l'effet de la dilution sur les propriétés magnétiques de trois nano-Heusler Ru_2MnX ($X = \text{Nb, Ta, V}$) avec des spins demi-entiers mélangés. Plus précisément, les spins correspondants sont : $q = 7/2, 3/2$ et $5/2$ pour Nb, Ta et V respectivement, $\sigma = 5/2$ pour Ru et $S = 1/2$ pour Mn. Notre objectif est de comparer les propriétés de ces différents composés et d'analyser la température de blocage et le champ coercitif en modifiant la concentration d'atomes non magnétiques dans le système étudié.

Dans la première section, nous décrivons en détail le modèle proposé. Dans la deuxième partie, nous présenterons les détails de la méthode de Monte Carlo que nous avons utilisée, ainsi que les équations permettant de simuler les propriétés magnétiques de ces trois nano-systèmes. La section 3 sera dédiée à l'analyse des résultats obtenus et aux discussions qui en découlent. Enfin, on aborde la synthèse des principaux points.

IV.2. Modèle et méthode de calcul

Cet axe sert d'analyser comment la concentration de dilution affecte les propriétés magnétiques des trois composés Heusler Ru_2MnX ($X= \text{Nb, Ta, V}$). Le nombre total de de chaque type d'atomes est le suivant : $N_{\text{Ru}} = 123$, $N_{\text{Mn}} = 32$ et $N_X = 32$ (voir Figure IV.1). Pour se faire, nous utilisons le modèle de Blume-Capel avec des conditions aux limites libres pour étudier ces composés nano-Heusler. Les données ont été générées à l'aide de 10^6 étapes de Monte Carlo par spin, en excluant les 10^5 premières étapes pour équilibrer le nano-système.

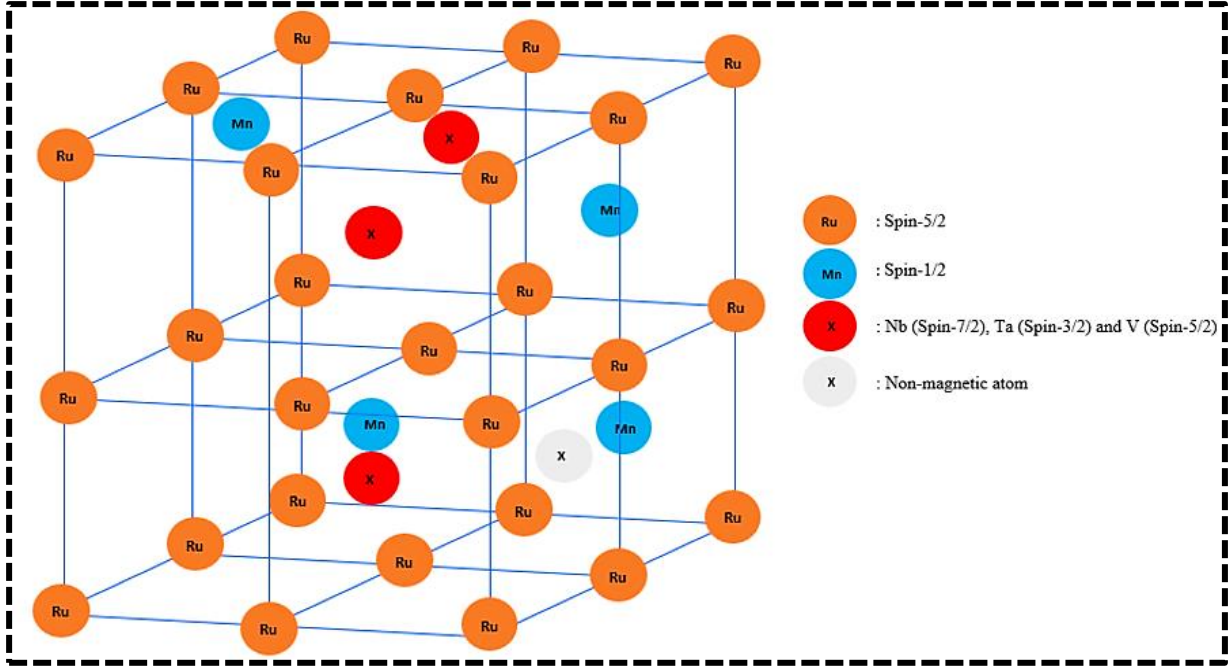


Figure IV.1: Représentation schématique de trois nano-composés Heusler Ru_2MnX ($X= Nb, Ta, V$), avec 25% d'atomes X non magnétiques.

L'hamiltonien du composé nano-Heusler est défini comme suit :

$$\mathcal{H} = -J_{RuMn} \sum_{\langle i,j \rangle} \sigma_i S_j - J_{RuX} \sum_{\langle i,k \rangle} \sigma_i \epsilon_K q_k - H \sum_{\langle i,j,k \rangle} (\sigma_i + S_j + \epsilon_K q_k) - D_{Ru} \sum_i \sigma_i^2 - D_X \sum_k \epsilon_K^2 q_k^2 \quad (IV.1)$$

Où J_{RuMn} et J_{RuX} sont des couplages d'échange d'interactions entre les deux premiers atomes proches voisins avec des spins σ - S , σ - q ($X=Ta, V$ et Nb), respectivement.

H désigne le champ magnétique externe. Les champs cristallins D_{Ru} et D_X agissent sur les atomes Ru et X , respectivement. Pour simplifier, nous considérons que les champs cristallins agissant sur les atomes Ru et X sont égaux : $D=D_{Ru}=D_X$.

Le paramètre ϵ_k est une variable non corrélée, prenant la valeur 1 avec une concentration de dilution P (atomes magnétiques) ou 0 avec une concentration de dilution $1-P$ (atomes non magnétiques).

IV.3. Résultats numériques et discussion

Les résultats sont obtenus par simulation Monte Carlo avec l'algorithme Metropolis. En effet, on étudie l'effet de la dilution (P) sur le comportement des aimantations et des susceptibilités thermiques.

L'énergie interne par site du composé nano-Heusler étudié est :

$$E = \frac{1}{N_T} \langle \mathcal{H} \rangle \quad (IV.2)$$

Les aimantations partielles et totale du composé nano-Heusler dilué sont les suivantes :

$$M_{Ru} = \frac{1}{N_{Ru}} \sum_i \sigma_i \quad (IV.3)$$

$$M_{Mn} = \frac{1}{N_{Mn}} \sum_j S_j \quad (IV.4)$$

$$M_X = \frac{1}{PN_X} \sum_k \epsilon_K q_k \quad (IV.5)$$

Avec : $N_X = N_{Ta} = N_V = N_{Nb}$

$$M_{tot} = \frac{N_{Ru} M_{Ru} + N_{Mn} M_{Mn} + PN_X M_X}{N_{Ru} + N_{Mn} + PN_X} \quad (IV.6)$$

Les susceptibilités partielles et totale sont données par :

$$\chi_{Ru} = \beta (\langle M_{Ru}^2 \rangle - \langle M_{Ru} \rangle^2) \quad (IV.7)$$

$$\chi_{Mn} = \beta (\langle M_{Mn}^2 \rangle - \langle M_{Mn} \rangle^2) \quad (IV.8)$$

$$\chi_X = \beta (\langle M_X^2 \rangle - \langle M_X \rangle^2) \quad (IV.9)$$

$$\chi_{tot} = \frac{N_{Ru} \chi_{Ru} + N_{Mn} \chi_{Mn} + PN_X \chi_X}{N_{Ru} + N_{Mn} + PN_X} \quad (IV.10)$$

IV.3.1. Effet de la concentration de dilution P sur le comportement des aimantations, des susceptibilités thermiques et sur la température de blocage de trois composés nano-Heusler

Dans cette partie, Nous analysons l'effet de la concentration de dilution sur l'aimantation, la susceptibilité et la température de blocage de trois nano-systèmes, ainsi que le comportement de l'aimantation en variant le champ magnétique extérieur.

Les figures IV.2a et IV.2b illustrent les aimantations thermiques totales et les susceptibilités totales du composé nano-Heusler Ru_2MnTa . Ces deux figures sont tracées en faisant varier la concentration de dilution ($P=1, 0.9, 0.8$ et 0.7) avec des atomes non magnétiques en l'absence des deux champs ($D=0$ et $H=0$) et pour des interactions d'échange: $J_{Ru-Mn} = 1$ et $J_{Ru-Ta} = -1$. En fait, nous avons considéré le cas où les spins entre les atomes Ru et Mn sont parallèles alors que ceux entre les atomes Ru et Ta sont antiparallèles. L'alliage considéré est donc anti-ferrimagnétique.

Il est évident que les aimantations totales du composé nano-Heusler Ru_2MnTa à très basse température ($T \approx 0$) diminuent lorsque l'on augmente le nombre d'atomes non magnétiques dans le système (P diminue). Ce comportement a été observé aussi sur le graphène nano-couche [152], sur le nano-réseau en nid d'abeille [153], sur la structure bicouche diluée du borophène [154] et sur la structure cœur-coquille du borophène [155]. En effet, les aimantations à très basse température dans ces systèmes sont fortement affectées par la variation du paramètre de concentration de dilution.

Les valeurs d'aimantation totale à très basse température sont les suivantes : $M_{tot} = 2,25$ pour $P=1$ (cas pur), $M_{tot} = 2,10$ pour $P=0,9$ (10% d'atomes non magnétiques), $M_{tot} = 2,00$ pour $P=0,8$ (20% d'atomes non magnétiques) et $M_{tot} = 1,75$ pour $P=0,7$ (30% d'atomes non magnétiques). Le système Ru_2MnTa est en phase anti-ferrimagnétique pour différentes concentrations de dilution tant que la température est inférieure à la température de blocage ($T < T_B$). Cependant, pour $T > T_B$, les aimantations totales diminuent pour atteindre la phase paramagnétique. En outre, la température de blocage augmente avec l'augmentation du nombre d'atomes non magnétiques dans le système ($P < 1$), ce qui s'explique par la compétition entre les couplages d'échange positifs et négatifs. En effet, l'augmentation du nombre d'atomes non magnétiques réduit l'effet des couplages négatifs sur les couplages positifs, favorisant ainsi le maintien du système dans sa phase ordonnée. Les températures de blocage sont déterminées par les pics de susceptibilité totale dans la Figure 2b, et sont approximativement de $T_B \approx 16, 17.5, 20$ et 21 pour $P=1, 0.9, 0.8$ et 0.7 , respectivement. Les

températures de transition augmentent avec l'augmentation de la concentration de dilution. Il est à noter que l'aimantation totale du système nano-Heusler tend vers la phase superparamagnétique de manière moins abrupte lorsque le nombre d'atomes non magnétiques augmente, en raison de la nature des nano-systèmes. En effet, la courbe d'aimantation thermique ne présente pas de transition brusque entre les phases anti-ferrimagnétique et superparamagnétique, et cette transition est d'autant plus douce que le nombre d'atomes non magnétiques augmente. Ce comportement peut être expliqué par le fait que la dilution est directement liée à l'alignement antiparallèle des spins par rapport au reste des atomes de la structure de Heusler.

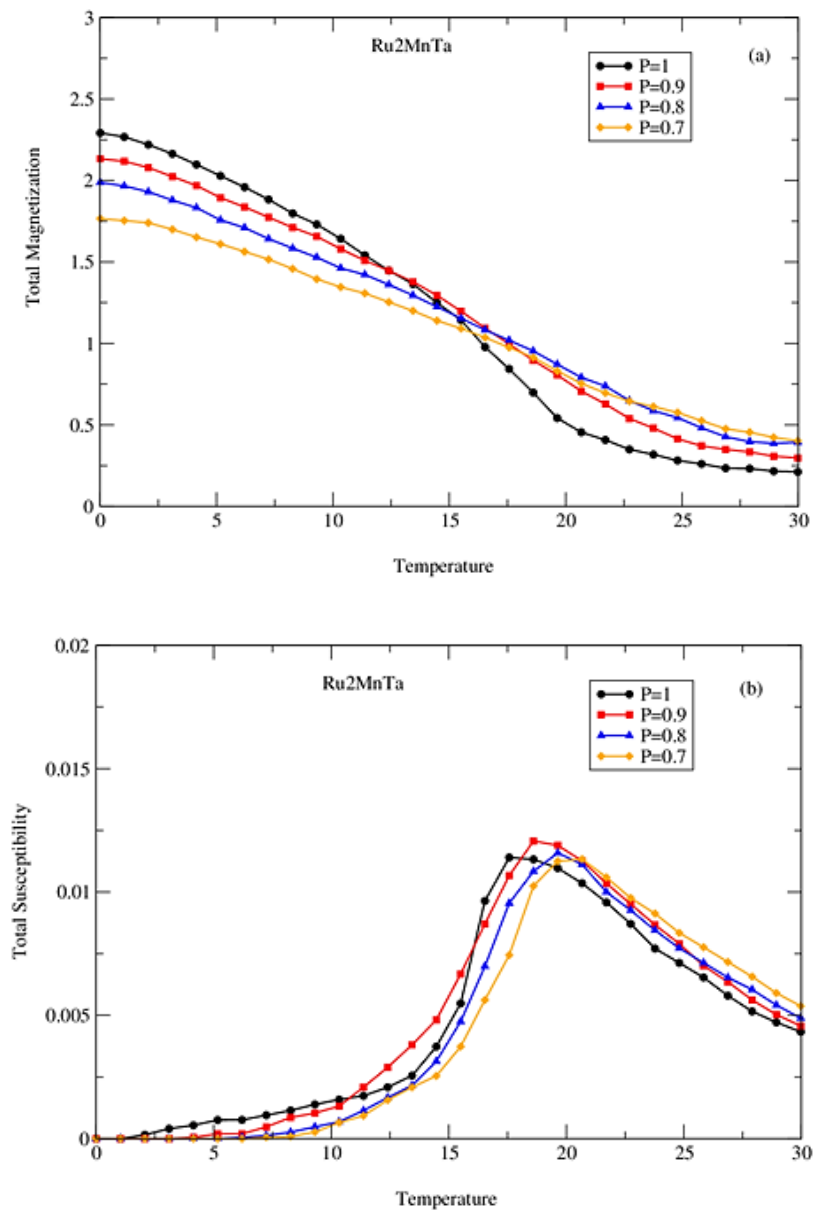
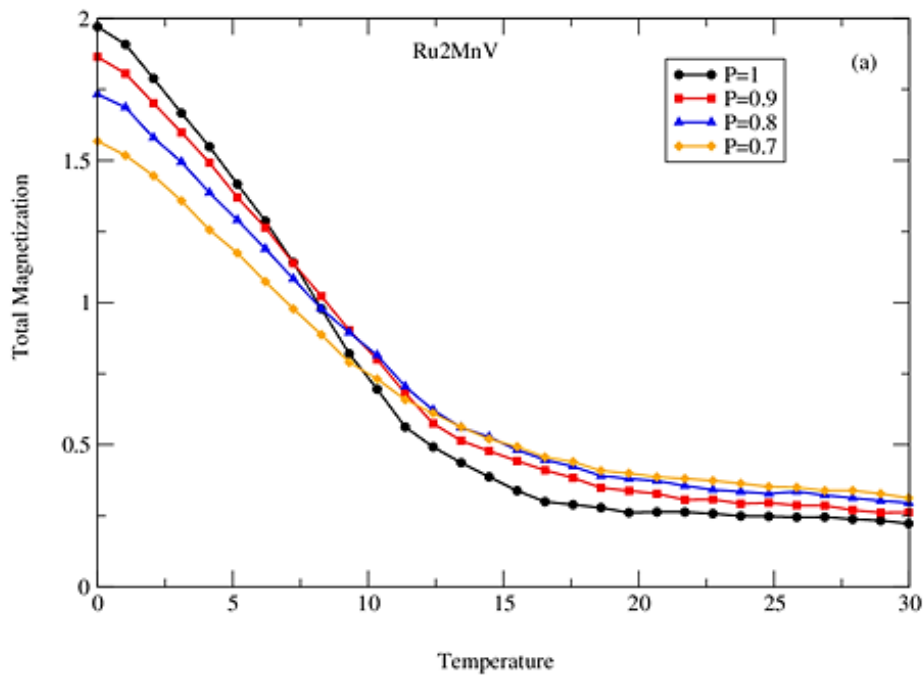


Figure IV.2 : Aimantations totales (a) et susceptibilités totales (b) du composé Heusler Ru₂MnTa pour : $H=0$, $D=0$, $J_{Ru-Mn} = 1$ et $J_{Ru-Ta} = -1$.

Les Figures IV.3a et IV.3b présentent les aimantations et les susceptibilités thermiques totales du composé nano-Heusler Ru_2MnV , en fonction de la concentration de dilution, en absence des deux champs ($D=0$ et $H=0$), et avec des interactions d'échange fixes ($J_{\text{Ru-Mn}} = 1$ et $J_{\text{Ru-V}} = -1$). Il convient de noter que le système nano-Heusler considéré est anti-ferrimagnétique.

Les aimantations totales diminuent à très basse température ($T \approx 0$) lorsque le nombre d'atomes non magnétiques augmente dans le système. De plus, la température de blocage (T_B) augmente lorsque le nombre de particules non magnétiques augmente (diminution de P). Pour obtenir des valeurs précises de la température de blocage, les susceptibilités totales sont représentées sur la Figure IV.3b pour différentes concentrations de dilution.

Les températures de blocage sont approximativement de 8 , 10 , 11 et 12.5 pour $P=1, 0.9, 0.8$ et 0.7 respectivement. Ces températures de transition augmentent avec l'augmentation de la concentration de dilution.



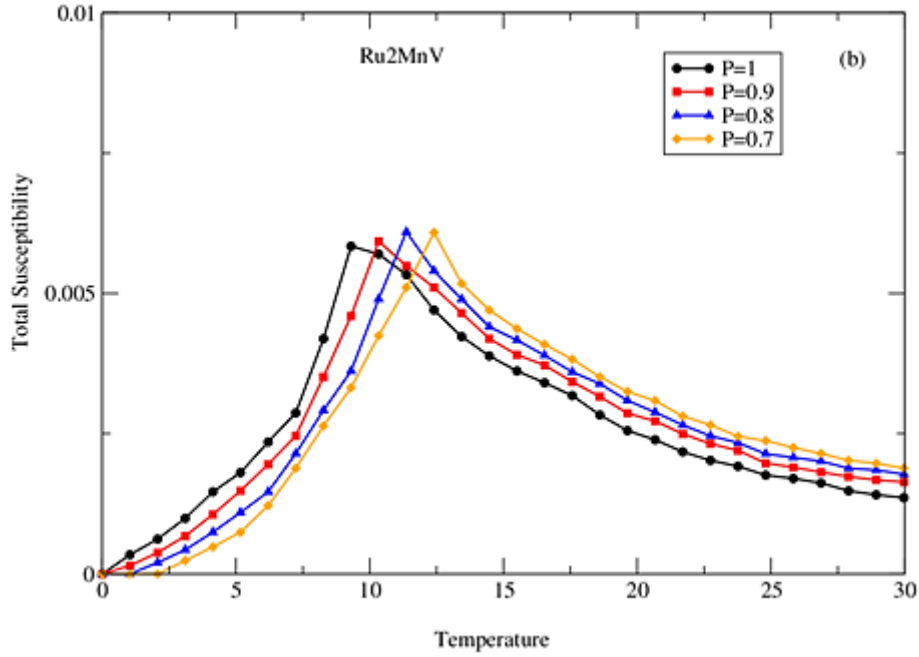


Figure IV.3 : Aimantations totales (a) et susceptibilités totales (b) en fonction de la température pour le composé Heusler Ru_2MnV pour des valeurs de paramètres fixes : $H=0$, $D=0$, $J_{\text{Ru-Mn}} = 1$ et $J_{\text{Ru-V}} = -1$.

Les figures IV.4a et IV.4b présentent les aimantations thermiques totales et les susceptibilités totales du composé nano-Heusler Ru_2MnNb , en faisant varier les concentrations de dilution avec des paramètres fixes ($D=0$, $H=0$, $J_{\text{Ru-Mn}} = 1$ et $J_{\text{Ru-Nb}} = -1$). Les aimantations totales du composé diminuent à très basse température lorsque le nombre d'atomes non magnétiques dans le système nano-Heusler augmente. La température de blocage augmente également avec l'augmentation du nombre d'atomes non magnétiques pour des raisons similaires à celles mentionnées pour les composés Ru_2MnTa et Ru_2MnV . Dans le cas du Ru_2MnNb , les températures de blocage sont d'environ 15, 16, 17 et 18 pour $P=1$, 0.9, 0.8 et 0.7 respectivement. Tout comme dans les deux cas précédents (Ru_2MnTa et Ru_2MnV), la température de blocage augmente lorsque P diminue dans le Ru_2MnNb .

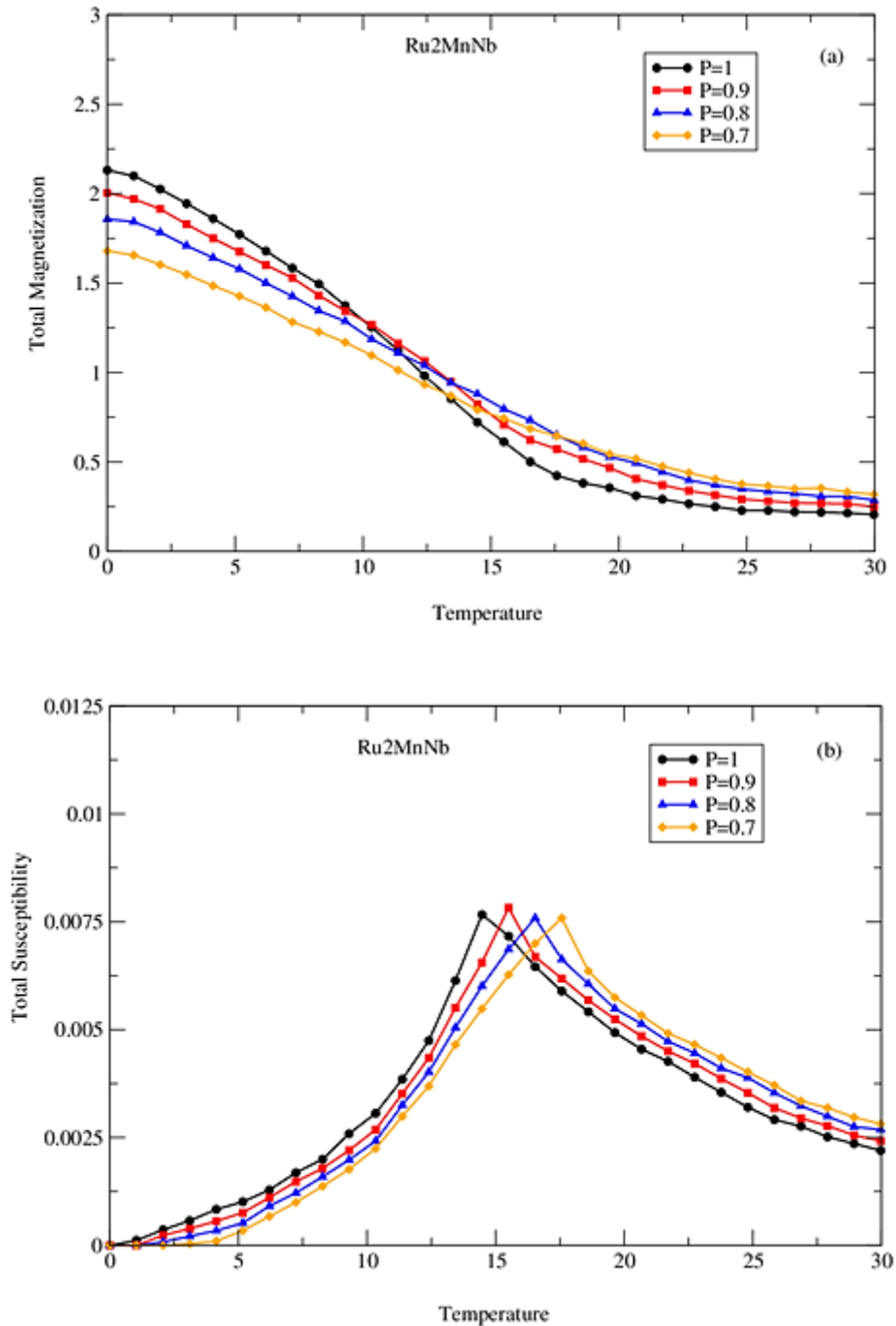


Figure IV.4 : Aimantations totales (a) et susceptibilités totales (b) en fonction de la température du composé Heusler Ru₂MnNb pour: $H=0$, $D=0$, $J_{Ru-Mn} = 1$ et $J_{Ru-Nb} = -1$.

Afin d'illustrer l'effet de la concentration de dilution sur la température de blocage, nous représentons dans la figure IV.5 les résultats obtenus pour différents composés nano-Heusler. Cette figure montre une diminution linéaire de la température de blocage pour les trois composés nano-Heusler lorsque l'on diminue le nombre d'atomes non magnétiques. Nous rappelons que lorsque le nombre d'atomes magnétiques X (Ta, V, Nb) diminue, le nombre de

couplages négatifs diminue également, ce qui permet aux systèmes de rester plus longtemps dans leur phase ordonnée. En outre, nous remarquons que les valeurs de la température de blocage sont importantes pour les composés nano-Heusler : Ru₂MnTa suivi de Ru₂MnNb et enfin Ru₂MnV. Ceci est dû aux différentes valeurs de spin entre chaque composé nano-Heusler. Par conséquent, l'effet de la concentration de dilution apparaît davantage dans les composés qui ont moins d'atomes magnétiques, comme dans le composé Ru₂MnV, ce qui conduit à de faibles valeurs de température de blocage.

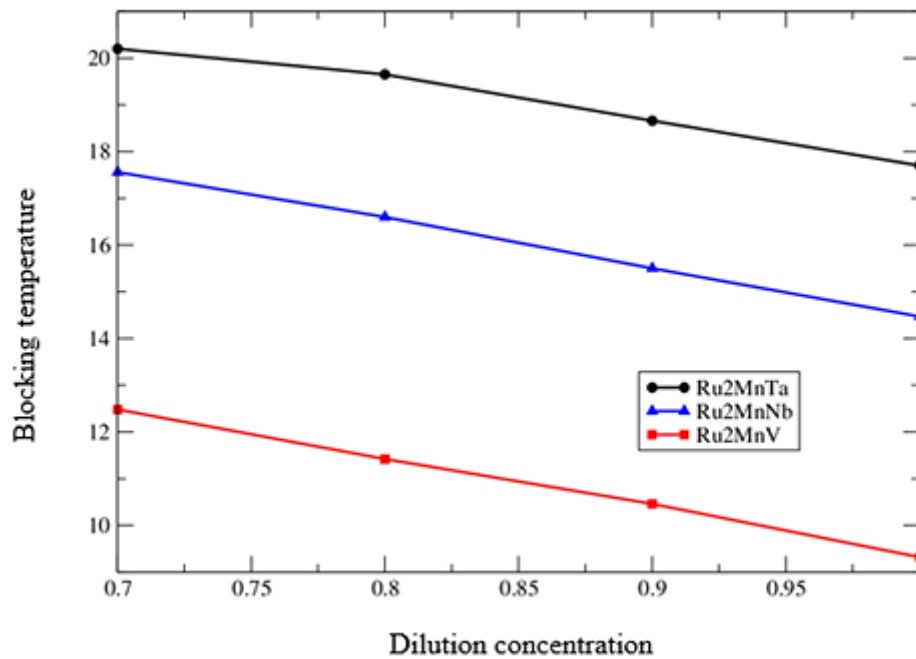


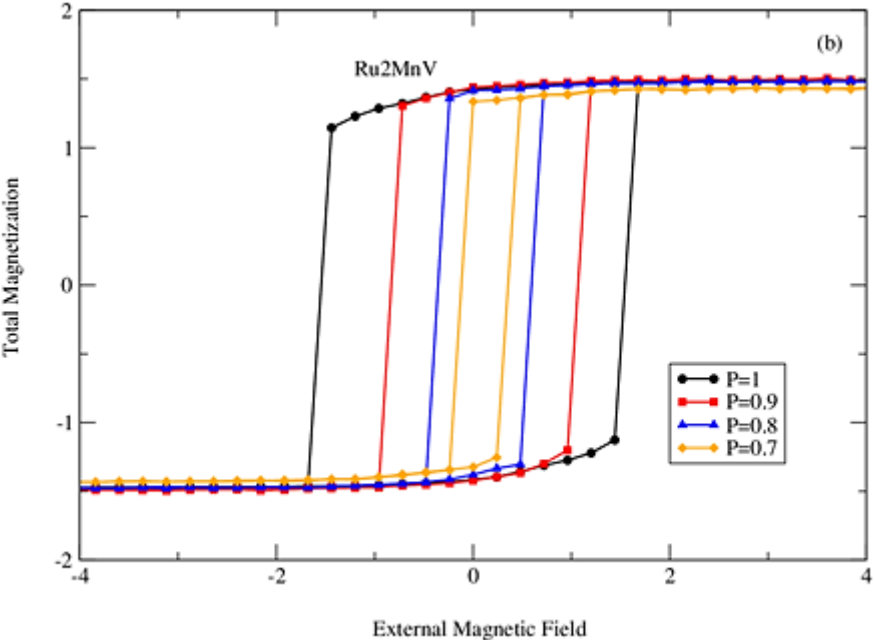
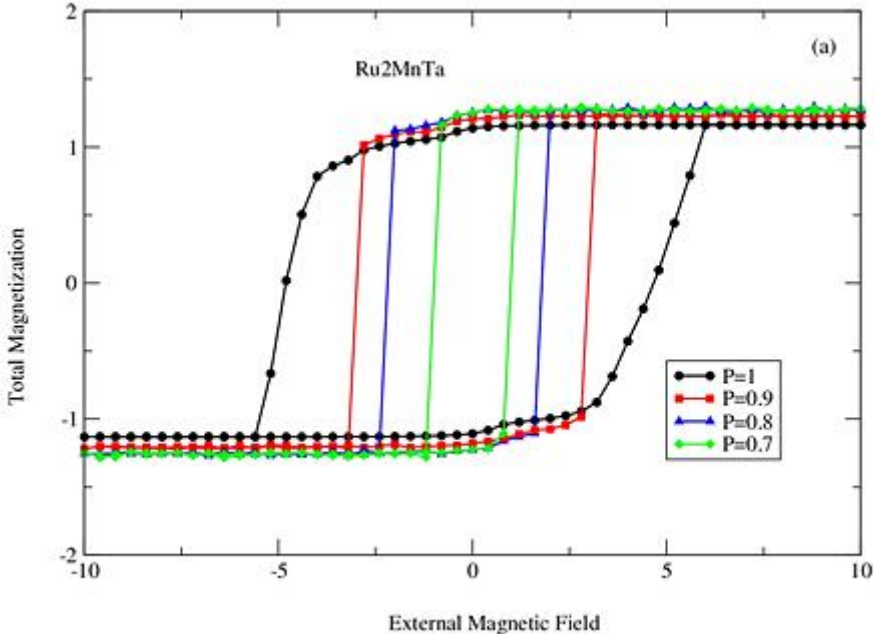
Figure IV.5 : Température de blocage pour différents composés nano-Heusler.

IV.3.2. Effet de la dilution sur les Cycles d'hystérésis de trois composés nano-Heusler

Finalement, nous illustrons dans les figures IV.6 (a, b, c) l'effet de la concentration de dilution sur les cycles d'hystérésis magnétiques de différents composés nano-Heusler, en l'absence de champ cristallin, à une température fixe de $T=1K$ et avec des interactions de couplage d'échange fixes. Plus précisément, $J_{Ru-Mn}=1$ pour la Figure 6a, $J_{Ru-V}=-1$ pour la Figure IV.6b et $J_{Ru-Nb}=-1$ pour la Figure IV.6c.

Ces figures montrent que la surface des boucles d'hystérésis ainsi que le champ coercitif diminuent lorsque le nombre d'atomes non magnétiques augmente (c'est-à-dire lorsque P diminue). Ce comportement des cycles d'hystérésis des composés nano-Heusler confirme

également les résultats des aimantations totales présentés sur les Figures IV.2, 3 et 4. En effet, à la température choisie de $T=1$, lorsque le nombre d'atomes non magnétiques augmente dans les systèmes nano-Heusler, l'aimantation totale diminue, ce qui induit une diminution des surfaces des boucles d'hystérésis magnétiques.



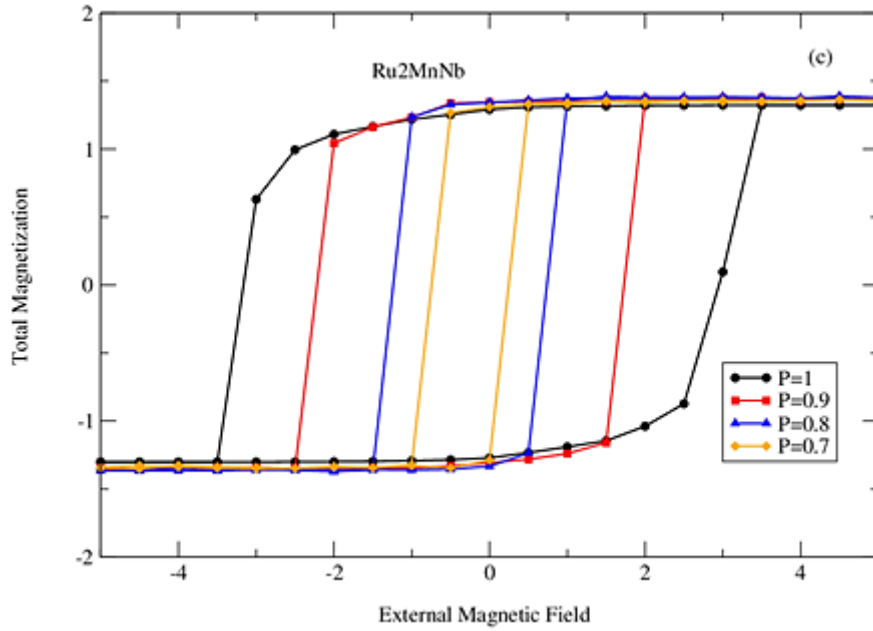


Figure IV.6 : Cycles d'hystérésis pour différents composés de nano-Heusler pour $D=0$, $T=1K$ et $J_{Ru-Mn} = 1$.

(a) $J_{Ru-Ta} = -1$, (b) $J_{Ru-V} = -1$ et (c) $J_{Ru-Nb} = -1$.

Pour faire apparaître l'effet de la concentration de dilution sur le champ coercitif, nous représentons sur la figure IV.7 les résultats obtenus pour différents composés de nano-Heusler. Cette figure montre la diminution des valeurs du champ coercitif pour les trois composés nano-Heusler lorsque l'on diminue la concentration de dilution. En effet, la variation du champ coercitif est due aux différentes valeurs de spin dans chaque composé nano-Heusler. En fait, la coercivité et les températures de transition vers l'état superparamagnétique présentent des aspects importants pour le futur stockage de données magnétiques à haute densité.

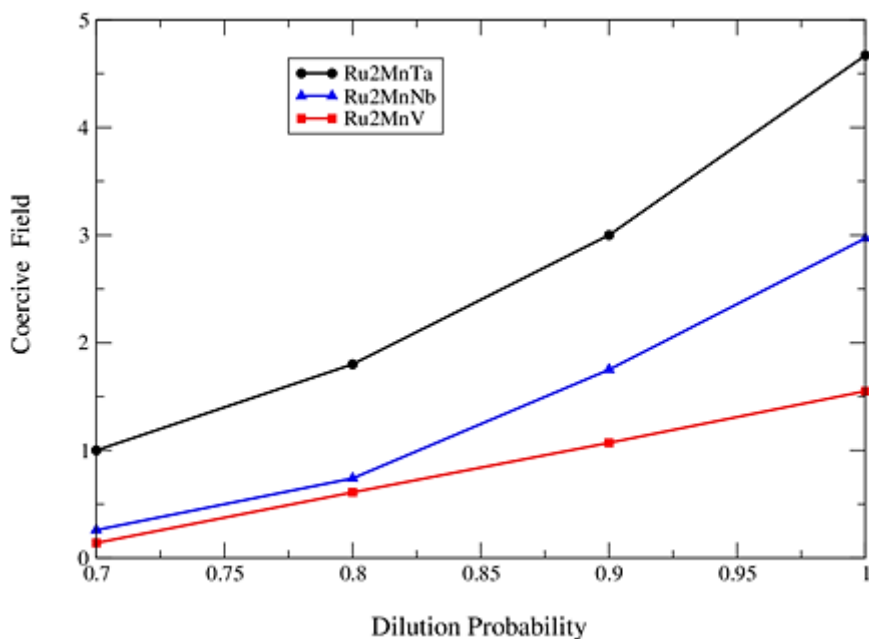


Figure IV.7 : Champ coercitif pour différents composés nano-Heusler.

IV.4. Conclusion

Ces dernières années, les alliages Heusler ont suscité un vif intérêt au sein de la communauté scientifique. Dans notre travail, nous avons mené une étude approfondie des effets de la concentration de dilution sur les propriétés magnétiques de trois composés nano-Heusler : Ru_2MnX ($X = \text{Nb}, \text{Ta}, \text{V}$). Pour cela, nous avons utilisé des simulations Monte Carlo avec l'algorithme Metropolis. Nos résultats ont révélé une corrélation entre la diminution du nombre d'atomes non magnétiques (P) et l'augmentation de la température de blocage (T_B) dans les composés étudiés. De plus, nous avons observé des variations de T_B entre les différents composés. En effet, Ru_2MnTa présente la température de blocage la plus élevée, suivie de Ru_2MnNb et enfin Ru_2MnV . Cette distinction est attribuée aux valeurs de spin spécifiques à chaque composé nano-Heusler.

En outre, ce comportement est principalement observé dans les composés ayant moins d'atomes magnétiques, car l'effet de la concentration de dilution est plus prononcé dans ces composés. Cela conduit à une diminution de la température de blocage et le système atteint rapidement la phase super-paramagnétique. Cependant, notre étude a également révélée une diminution de la surface des boucles d'hystérésis et du champ coercitif à mesure que le nombre d'atomes non magnétiques augmente (c'est-à-dire lorsque P diminue).

En résumé, pour une concentration de dilution donnée, les valeurs de température de blocage et du champ coercitif sont plus faibles dans le cas de Ru_2MnV , suivies de celles du composé Ru_2MnNb et enfin de celles de la structure Ru_2MnTa .

Chapitre V

Effet de la concentration des atomes
(Co) sur les propriétés magnétiques de
l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$

V.1. Introduction

Actuellement, avec le développement rapide des nanotechnologies, les matériaux magnétiques doux sont très prisés en raison de leurs nombreuses applications potentielles dans notre vie quotidienne, notamment en tant que générateurs, transformateurs, inducteurs, dispositifs spintroniques (disques durs, têtes de lecture et mémoires magnétiques à accès aléatoire), batteries lithium-ion, catalyseurs et dispositifs biomédicaux [156-160]. Les alliages de fer, de cobalt et de nickel sont particulièrement intéressants en raison de leurs propriétés magnétiques spécifiques, de leur activité élevée et de leur faible coût, ce qui en fait des candidats attirants pour nombreuses utilisations [161]. Pour mieux comprendre les propriétés structurales et magnétiques des composés FeNi et FeCo, des recherches approfondies ont été menées en utilisant différentes méthodes à la fois théoriques et expérimentales [162-165].

Dans cette étude, nous avons utilisé des simulations Monte Carlo avec l'algorithme Metropolis pour étudier les caractéristiques magnétiques d'un alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$. Les atomes de Fe ont un nombre quantique magnétique entier ($S = \pm 2, \pm 1, 0$), les atomes de Co ont un nombre quantique magnétique demi-entier ($\sigma = \pm 3/2, \pm 1/2$) et les atomes de Ni ont un nombre quantique magnétique entier ($q = \pm 1, 0$). Notre objectif est d'analyser l'influence du rapport de concentration x des atomes de Co sur les propriétés magnétiques de cet alliage.

Ce chapitre est présenté comme suit : la section 2 donne le modèle et la méthode utilisés, la sous-section 3.1 présente et discute les diagrammes de phase à l'état fondamental, tandis que la sous-section 3.2 détaille les simulations Monte Carlo (MCS). Enfin, la section 4 présente les conclusions de l'étude.

V.2 Modèle et Méthode de calcul

Ce chapitre vise à examiner l'influence du rapport de concentration x des atomes de Co sur les propriétés magnétiques de l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$. Les conditions de limites utilisées dans ces simulations sont libres.

Le système étudié comporte un nombre total de spins $N_T = N_{Fe} + N = 189$, où $N_{Fe} = 64$ est le nombre de spins de fer et $N = 125$ est le nombre total de spins de cobalt et/ou de nickel (voir Figure V.1). En effet, les nombres de spins pour le cobalt et le nickel sont respectivement $N_{Co} = x.N$ et $N_{Ni} = (1-x).N$. Les propriétés magnétiques de ce système ont été examinées par simulations Monte Carlo basées sur l'hamiltonien présenté par l'équation (V.1). Pour chaque configuration de spin, nous avons effectué 10^6 étapes de simulation, en éliminant les 10^5

premières configurations pour atteindre l'équilibre. À chaque étape, nous avons visité tous les sites du système et tenté de retourner un seul spin. Les flips ont été acceptés ou rejetés en fonction des probabilités déterminées par les statistiques de Boltzmann.

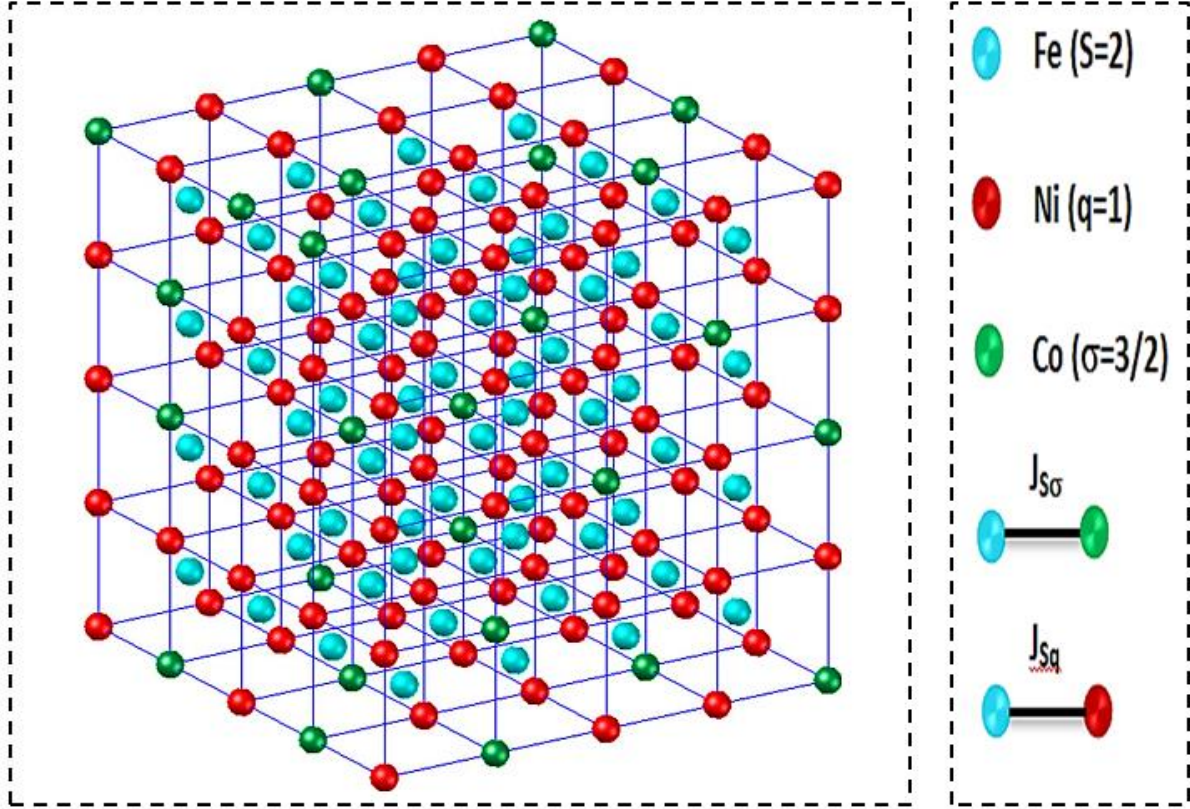


Figure V.1 : Représentation schématique de l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$ avec $x=0,2$.

L'hamiltonien de l'alliage étudié est décrit comme suit :

$$\mathcal{H} = -J_{S\sigma} \sum_{\langle i,j \rangle} S_i \varepsilon_j \sigma_j - J_{Sq} \sum_{\langle m,n \rangle} S_m \delta_n q_n - H \sum_{(i)} (S_i + \varepsilon_i \sigma_i + \delta_i q_i) - D_S \sum_i S_i^2 - D_\sigma \sum_j (\varepsilon_j \sigma_j)^2 - D_q \sum_k (\delta_k q_k)^2 \quad (V.1)$$

Cette formule représente un système de spins S - σ et S - q , qui interagissent via les interactions d'échange de couplage $J_{S\sigma}$ et J_{Sq} avec les atomes premiers voisins. Les sommes $\langle i, j \rangle$ et $\langle m, n \rangle$ correspondent aux spins des atomes les plus proches. ε_i est égal à 1 si le site i est occupé par un spin σ (atome de Co), et 0 sinon. δ_j est égal à 1 si le site j est occupé par un spin q (atome de Ni) et 0 sinon. H est le champ externe qui agit sur l'ensemble du système. En outre, des champs cristallins D_S , D_σ et D_q affectent respectivement les spins S_i , σ_j et q_k .

Pour simplifier l'étude, nous supposons que les champs cristallins sont égaux, c'est-à-dire $D = D_S = D_\sigma = D_q$.

V.3. Résultats numériques et discussion

Nous commençons par présenter les diagrammes de phase à l'état fondamental pour une température zéro absolu. Ensuite, nous analysons l'aimantation totale des champs magnétiques externes et cristallins pour différentes valeurs du rapport de concentration x des atomes de Co, pour des températures non nulles. Pour mener ces investigations, nous employons des simulations de Monte Carlo basées sur l'algorithme de Metropolis.

L'énergie interne par site du composé d'alliage étudié est :

$$E = \frac{1}{N_T} \langle \mathcal{H} \rangle \quad (V.2)$$

Où : N_T désigne le nombre total de spins dans le composé d'alliage étudié.

Les aimantations partielles et totale du composé d'alliage sont :

$$M_{Fe} = \frac{1}{N_{Fe}} \sum_i S_i \quad (V.3)$$

$$M_{Co} = \frac{1}{N_{Co}} \sum_j \varepsilon_j \sigma_j \quad (V.4)$$

$$M_{Ni} = \frac{1}{N_{Ni}} \sum_k \delta_k q_k \quad (V.5)$$

Avec: $N_{Co} = x \cdot (N_T - N_{Fe})$ et $N_{Ni} = (1-x) \cdot (N_T - N_{Fe})$

$$M_{tot} = \frac{N_{Fe} M_{Fe} + N_{Co} M_{Co} + N_{Ni} M_{Ni}}{N_{Fe} + N_{Co} + N_{Ni}} \quad (V.6)$$

Les susceptibilités partielles et totale sont données par :

$$\chi_{Fe} = \beta (\langle M_{Fe}^2 \rangle - \langle M_{Fe} \rangle^2) \quad (V.7)$$

$$\chi_{Co} = \beta (\langle M_{Co}^2 \rangle - \langle M_{Co} \rangle^2) \quad (V.8)$$

$$\chi_{Ni} = \beta (\langle M_{Ni}^2 \rangle - \langle M_{Ni} \rangle^2) \quad (V.9)$$

$$\chi_{tot} = \frac{N_{Fe} \chi_{Fe} + N_{Co} \chi_{Co} + N_{Ni} \chi_{Ni}}{N_{Fe} + N_{Co} + N_{Ni}} \quad (V.10)$$

V.3.1. Diagrammes de phase à l'état fondamental

Dans cette partie, nous identifions les configurations les plus stables du système étudié à la température absolue nulle.

Dans les figures V.2a et 2c, nous présentons les diagrammes de phase dans les plans (H, D) et (H, J_{Sq}) à l'état fondamental pour le composé FeNi (correspondant à $x=0$). Par contre, les figures V.2b et 2d correspondent au système FeCo ($x=1$). En effet, il y a $5 \times 3 = 15$ configurations stables possibles pour le FeNi et $5 \times 4 = 20$ pour le FeCo.

La Figure V.2a illustre le diagramme de phase de FeNi dans le plan (H, D) pour la valeur du paramètre de couplage d'interaction $J_{Sq}=1$. On peut observer cinq configurations stables pour des valeurs négatives de D , à savoir $(0, 0)$, $(+1, +1)$, $(-1, -1)$, $(+2, +1)$ et $(-2, -1)$, tandis que seules les configurations $(+2, +1)$ et $(-2, -1)$ restent stables pour des valeurs positives de D . De plus, le diagramme présente une symétrie parfaite par rapport à l'axe $H=0$. En ce qui concerne la Figure V.2b, elle représente le diagramme de phase de FeCo dans le même plan (H, D) . Dans ce cas, il y a six configurations stables pour des valeurs négatives de D , à savoir $(0, +1/2)$, $(+1, +3/2)$, $(0, -1/2)$, $(-1, -3/2)$, $(+2, +3/2)$ et $(-2, -3/2)$, tandis que seules les configurations $(+2, +3/2)$ et $(-2, -3/2)$ restent stables pour des valeurs positives de D .

La Figure V.2c montre le diagramme de phase de FeNi dans le plan (H, J_{Sq}) pour $D=0$. Dans ce plan, quatre configurations stables correspondant à la valeur absolue maximale du spin sont obtenues : $(+2, -1)$; $(+2, +1)$; $(-2, +1)$ et $(-2,-1)$. En outre, la Figure V.2d correspondant au système FeCo présente également quatre configurations stables dans le plan (H, J_{Sq}) , à savoir $(+2, -3/2)$; $(-2, +3/2)$; $(+2, +3/2)$ et $(-2,-3/2)$.

Fig. 2a

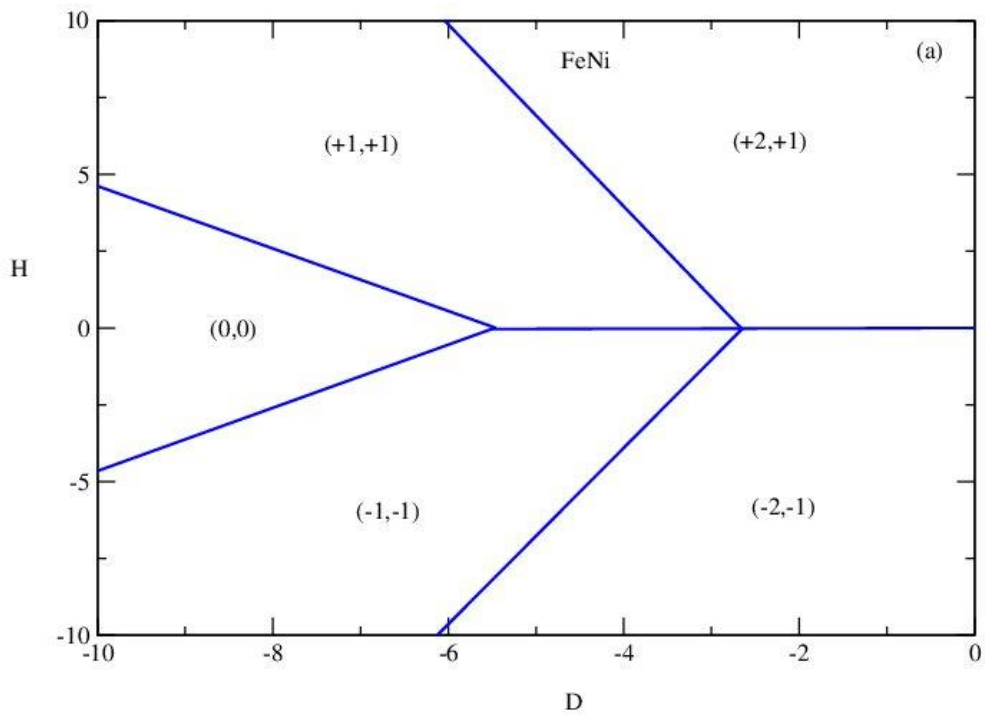
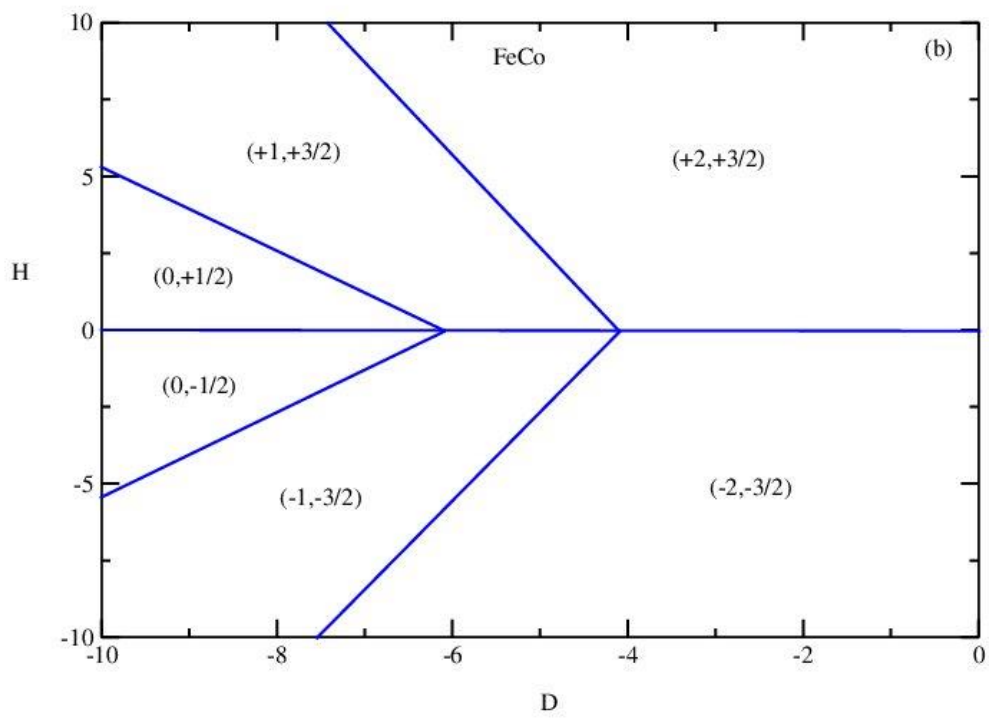


Fig. 2b



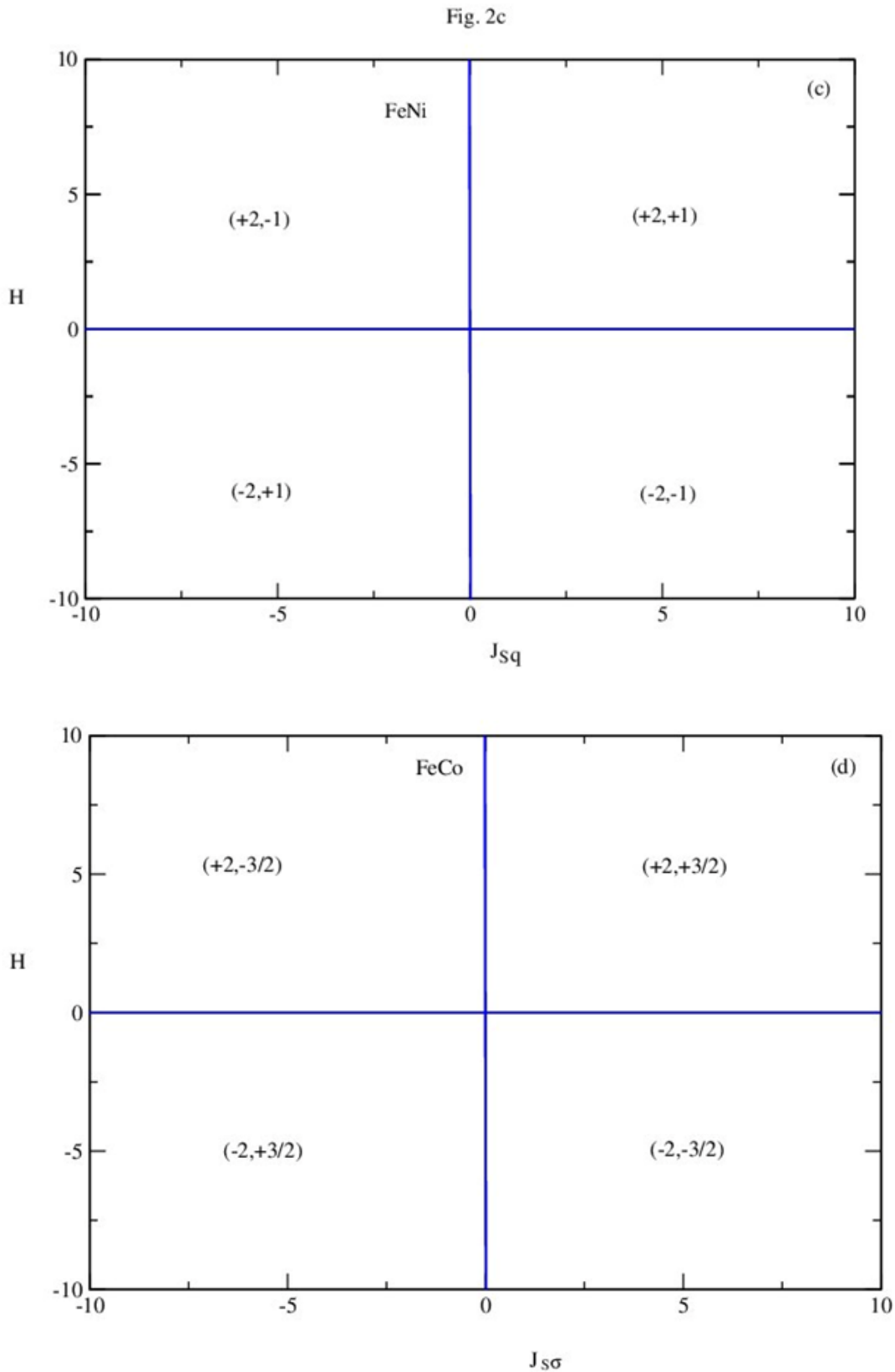


Figure V.2 : Diagrammes de phase à l'état fondamental : (a) dans le plan (H, D) pour $J_{Sq} = 1$; (b) dans le plan (H, D) pour $J_{S\sigma} = 1$; (c) dans le plan (H, J_{Sq}) pour $D = 0$; (d) dans le plan $(H, J_{S\sigma})$ pour $D = 0$.

V.3.2. Résultats des simulations de Monte Carlo (MCS)

Nous explorons les propriétés magnétiques de l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$, en appliquant la méthode de Monte Carlo selon l'algorithme Metropolis.

La figure V.3a montre les comportements des aimantations partielles M_{Fe} , M_{Ni} et totale M_{tot} du composé FeNi pur en fonction de la température. Cette figure est obtenue pour des paramètres fixes : $D=0$, $H=0$ et $J_{Sq}=1$. A très basse température (température proche du zéro absolu), l'aimantation totale du système étudié est donnée par $M_{tot} = \frac{(64 \times 2) + (125 \times 1)}{64 + 125} \approx 1.4$.

Les résultats obtenus dans cette figure correspondent aux configurations stables illustrées dans la Figure V.2a. En outre, les aimantations diminuent vers la température de transition où le système atteint la phase super-paramagnétique. Afin de déterminer la valeur de cette température de transition, nous avons représenté dans la Figure V.3b les susceptibilités magnétiques partielles et totale en fonction de la température, en utilisant les mêmes valeurs des paramètres que celles de la Figure V.3a. Nous avons ainsi pu déterminer la valeur de la température de transition donnée par le pic de la susceptibilité magnétique totale, à savoir $T_{tr} \approx 10.5$. En outre, la Figure V.3c représente les variations des aimantations partielles et totale en fonction de la température pour le système FeCo pur, en gardant les paramètres : $D = 0$, $H = 0$ et $J_{S\sigma} = 1$. Dans ce cas, l'aimantation totale atteint une valeur de $M_{tot} \approx 1.7$ à très basse température ($T = 0.0001$). Enfin, la Figure V.3d nous permet de déduire que la valeur de la température de transition est $T_{tr} \approx 13.5$. la phase super-paramagnétique est atteinte plus rapidement dans le composé de FeNi que dans celui de FeCo.

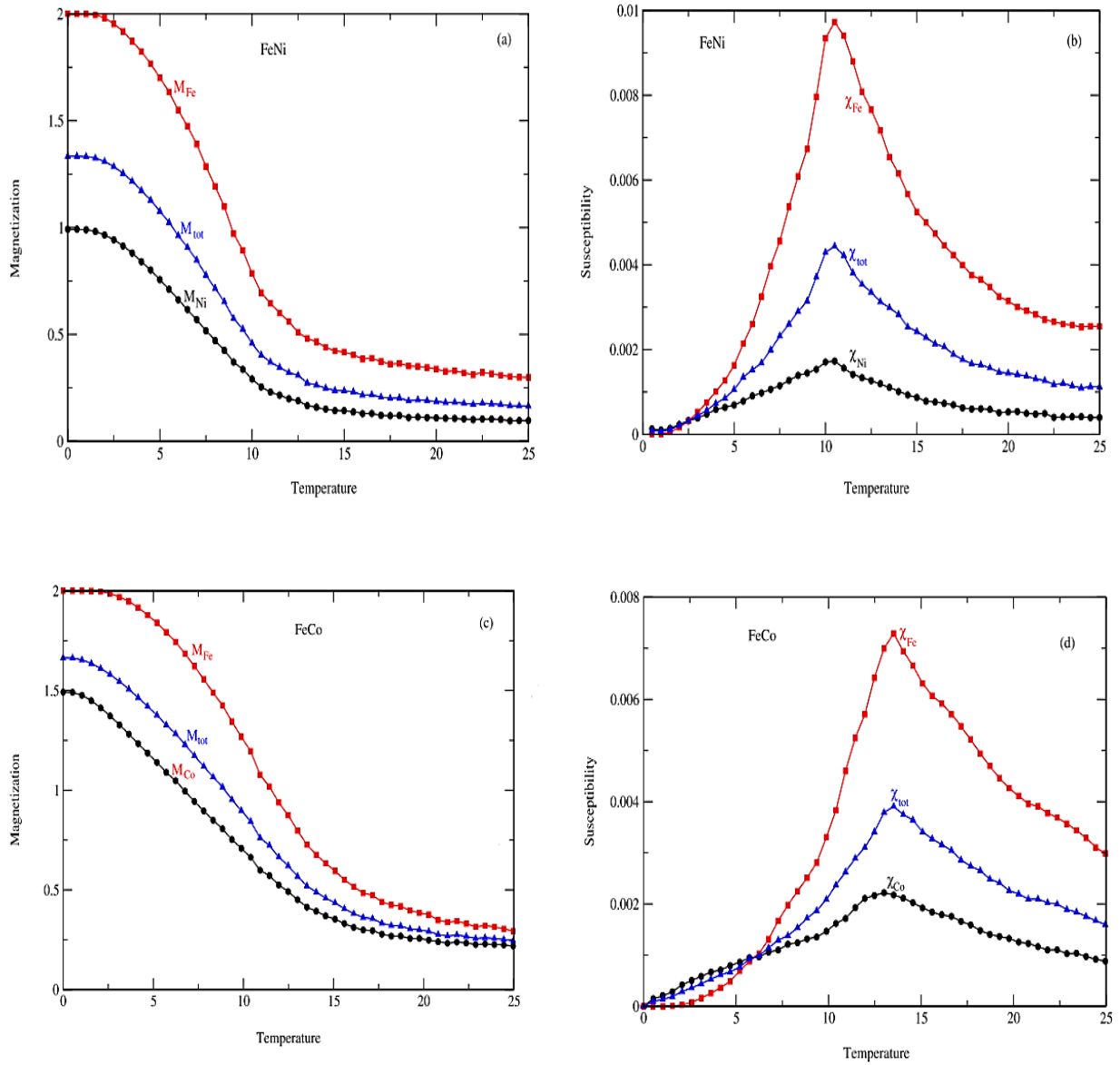


Figure V.3 : Aimantations du FeNi (a) et du FeCo (c). Susceptibilités pour FeNi (b) et FeCo (d). Les valeurs des paramètres fixes sont : $H = 0$, $D = 0$, $J_{Sq} = 1$ et $J_{S\sigma} = 1$.

Nous rappelons que l'objectif de ce chapitre est d'investiguer l'effet du rapport de concentration x des atomes de Co sur les propriétés magnétiques de l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$. Le changement de la concentration d'atomes n'est appliqué qu'au sous-réseau de Co et Ni. En effet, les Figures V.4a et 4b illustrent l'aimantation et la susceptibilité totale du système étudié pour différentes valeurs du rapport de concentration x des atomes de Co ($x=0$, $x=0.2$, $x=0.4$, $x=0.6$, $x=0.8$ et $x=1$) en l'absence des champs magnétique externe et cristallin ($H = 0$ et $D = 0$) et pour une valeur fixe du paramètre d'échange $J_{Sq} = 1$. La Figure V.4a montre que l'aimantation totale est clairement affectée par le rapport de concentration des atomes de Co. De plus, à basse température (le système est dans sa phase ferromagnétique), l'aimantation totale augmente lorsque le rapport de concentration x d'atomes de Co croît. Un

comportement similaire a été observé dans une structure de l'alliage binaire de borophène [166]. En effet, à très basse température, les valeurs d'aimantation totale sont les suivantes : $M_{tot} = 1.4$ pour $x = 0$, $M_{tot} = 1.43$ pour $x = 0.2$, $M_{tot} = 1.45$ pour $x = 0.4$, $M_{tot} = 1.53$ pour $x = 0.6$, $M_{tot} = 1.6$ pour $x = 0.8$ et $M_{tot} = 1.7$ pour $x = 1$.

Par ailleurs, nous traçons sur la figure V.4b, la susceptibilité totale pour différents rapports de concentration x d'atomes de Co pour les mêmes valeurs de paramètres physiques fixées pour la figure V.4a. Les températures de transition sont: $T_{tr} \approx 10.5, 11, 11.5, 12, 12.5$ et 13.5 pour $x = 0, 0.2, 0.4, 0.6$ et 0.8 et 1 , respectivement. Nous constatons que la température de transition augmente lorsque la concentration en x d'atomes de Co augmente.

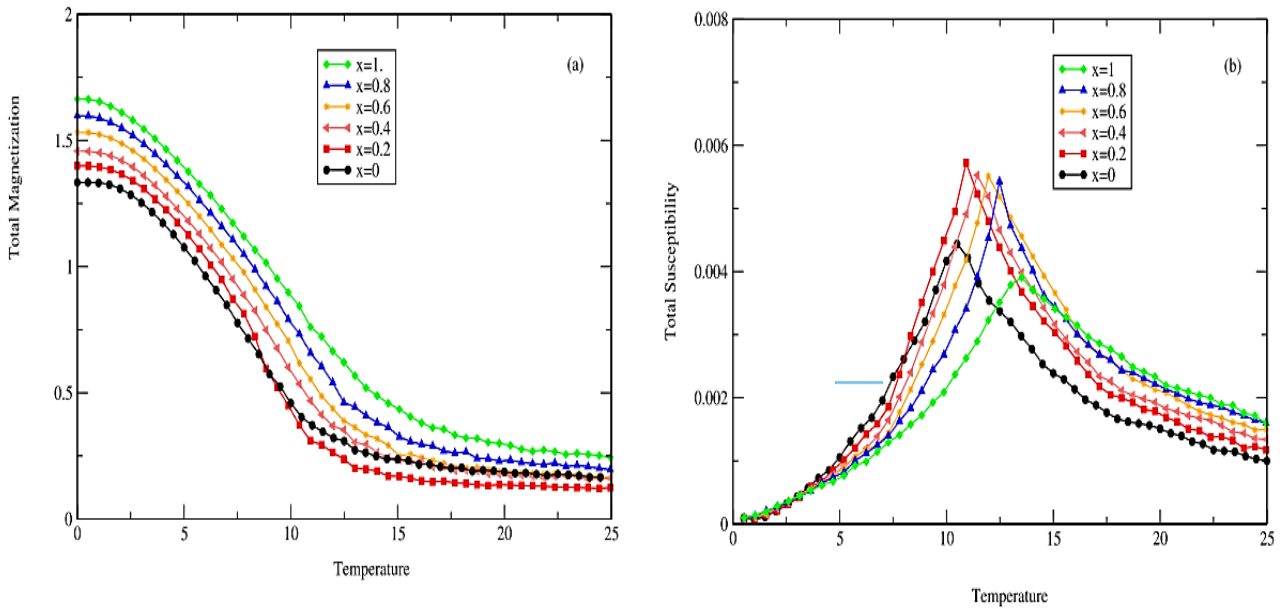


Figure V.4 : Aimantation totale (a) et susceptibilité totale (b) du composé FeCo_xNi_{1-x} avec la température pour plusieurs valeurs de x . $H = 0$, $D = 0$, $J_{Sq} = 1$ et $J_{S\sigma} = 1$.

Pour mettre en évidence les résultats obtenus dans les figures V.4a et 4b, la figure V.5 illustre la température de transition en fonction du rapport de concentration x des atomes de Co. Cette figure montre que la température de transition augmente presque linéairement avec la concentration de Co. Lorsque la concentration de Co est nulle ($x=0$) et que le système étudié contient uniquement les spins q , la valeur de la température de transition obtenue est $T_{tr} \approx 10,5$. Cependant, lorsque la concentration de Co est importante, la température de transition augmente pour atteindre la valeur de $T_{tr} \approx 13.5$ en l'absence d'atomes de Ni ($x=1$).

Fig. 5

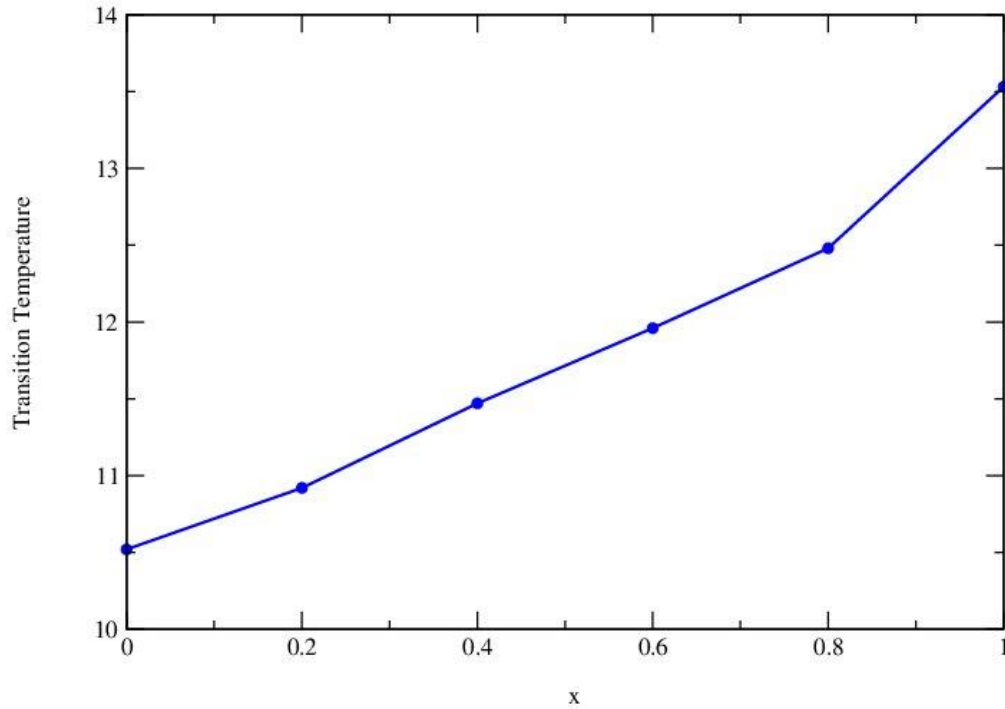


Figure V.5 : Température de transition en fonction du rapport x pour $H=0$, $D=0$,
 $J_{Sq}=1$ et $J_{S\sigma} = 1$.

V.3.3. Effets du champ cristallin et du rapport de concentration x des atomes de Co sur l'aimantation totale du système

Ce paragraphe aborde l'effet du rapport de concentration x des atomes de Co sur l'aimantation totale en variant l'interaction du couplage d'échange $J_{S\sigma}$ puis le champ cristallin D . Les figures V.6a et V.6b présentent ces effets à la température $T=0.5$.

Indépendamment du rapport de la concentration x des atomes de Co, la figure V.6a montre que le système étudié présente deux régions distinctes : (i) $J_{S\sigma} < 0$ et (ii) $J_{S\sigma} > 0$, séparées par une transition du premier ordre. Dans la première région, l'aimantation totale est positive et augmente avec l'augmentation du rapport de concentration x des atomes de Co, tandis que dans la deuxième région, l'aimantation est négative et sa valeur absolue augmente lorsque le rapport de concentration x de Co augmente. Cette observation est due au fait que les atomes de Co ont un spin plus grand que les atomes de Ni.

De plus, la figure V.6b montre l'aimantation totale pour des paramètres fixes $J_{S\sigma} = 1$ et $H=0$. Cette figure permet d'identifier deux régions distinctes. La première région correspond à $-4,8 < D$ tandis que la deuxième région apparaît pour $D > -2$. Dans la première région, pour toutes les valeurs de x , le système étudié est dans sa phase paramagnétique. Dans la deuxième région, le système est dans sa phase ferromagnétique et l'aimantation totale augmente avec l'augmentation du rapport de concentration des atomes de Co. De plus, le système subit une transition du second ordre entre la première et la deuxième région.

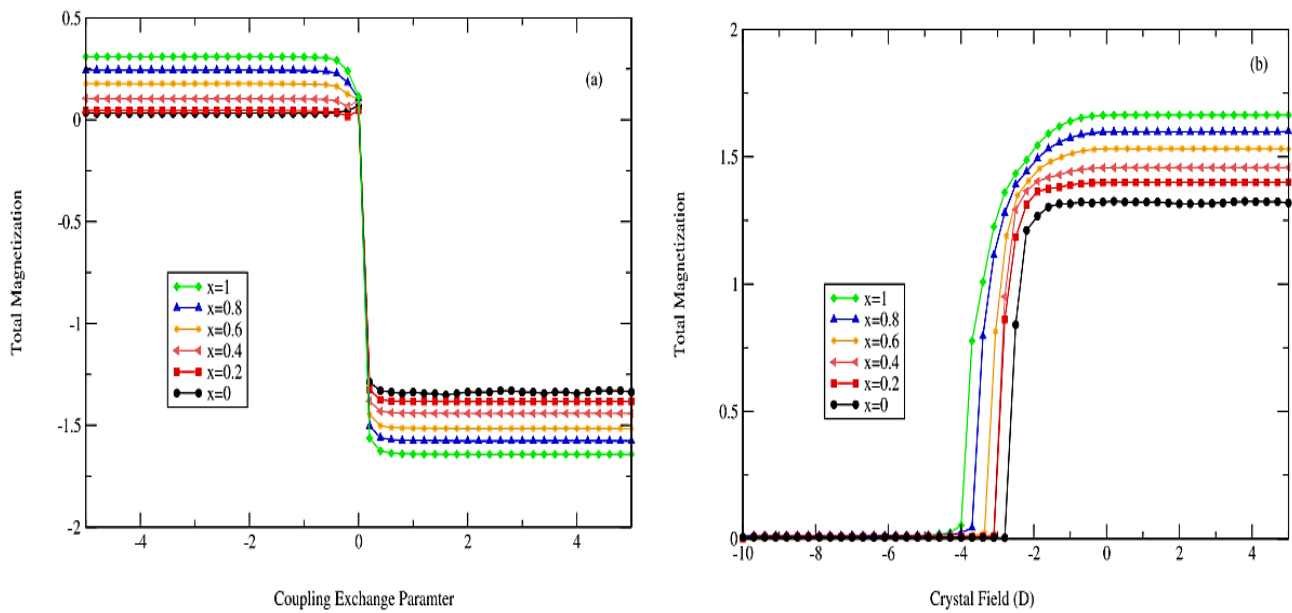


Figure V.6 : Aimantation totale en fonction des paramètres $J_{S\sigma}$ et D pour $T = 0,5$. **(a)** $H = 0$ et $D = 0$, **(b)** $J_{S\sigma} = 1$ et $H = 0$.

V.3.4. Effet du rapport de concentration x des atomes de Co sur les cycles d'hystérésis magnétiques

Finalement, dans cette partie, nous présentons sur la figure V.7 les boucles d'hystérésis obtenues pour différentes valeurs du rapport de concentration des atomes de Co. Cette figure est tracée en l'absence du champ cristallin et d'une interaction d'échange $J_{S\sigma} = 1$. De cette figure, il ressort que la forme des boucles et le champ coercitif augmentent quand le rapport de concentration des atomes Co augmente. Ainsi les cycles d'hystérésis de ce système confirment les résultats des aimantations totales déjà trouvées dans les figures V.2, 3 et 4. En effet, pour la température choisie ($T=0.5$), lorsque le rapport de concentration x des atomes de Co dans le système étudié augmente, l'aimantation totale croît, ce qui entraîne une augmentation des surfaces des boucles d'hystérésis.

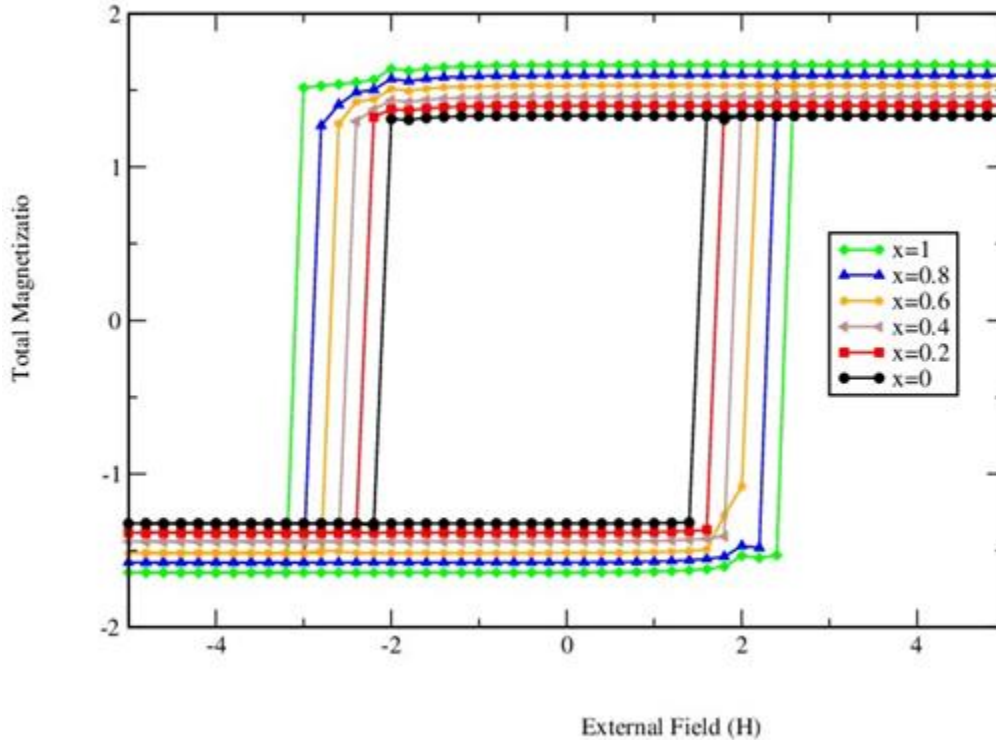


Figure V.7 : Cycles d'hystérésis pour différents valeurs du rapport de concentration x pour $D = 0$, $J_{S\sigma} = 1$ et $T = 0,5$.

Les résultats présentés dans les figures V.8a et V.8b mettent en évidence l'effet du rapport de concentration x des atomes de Co sur le champ coercitif et l'aimantation rémanente d'un alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$.

La figure V.8a montre que le champ coercitif augmente linéairement lorsque la concentration en atomes de Co augmente. Dans le cas où $x=0$, nous avons obtenu une valeur H_C d'environ 1.5. De plus, lorsqu'on augmente la concentration de Co ($x=1$), la valeur du champ coercitif augmente pour atteindre environ $H_C=2.5$ pour le système FeCo pur. En effet, la variation du champ coercitif est due à la compétition des différentes valeurs de spins dans un tel alliage ternaire. En fait, la coercivité et les températures de transition super-paramagnétiques sont des défis critiques pour l'enregistrement de données magnétiques haute densité dans le futur.

Dans la figure V.8b, nous présentons l'aimantation rémanente en fonction du rapport de concentration des atomes de Co. selon cette figure, on observe que l'aimantation rémanente (M_r) croît également de manière linéaire avec l'augmentation du rapport de concentration des atomes de Co. Dans le cas où $x=0$, $M_r \approx 1.4$. Cependant, pour $x=1$, on constate que la valeur de

l'aimantation rémanente atteint $M_r \approx 1.7$ correspondant au système FeCo. Cette aimantation rémanente est l'un des paramètres les plus importants des aimants permanents.

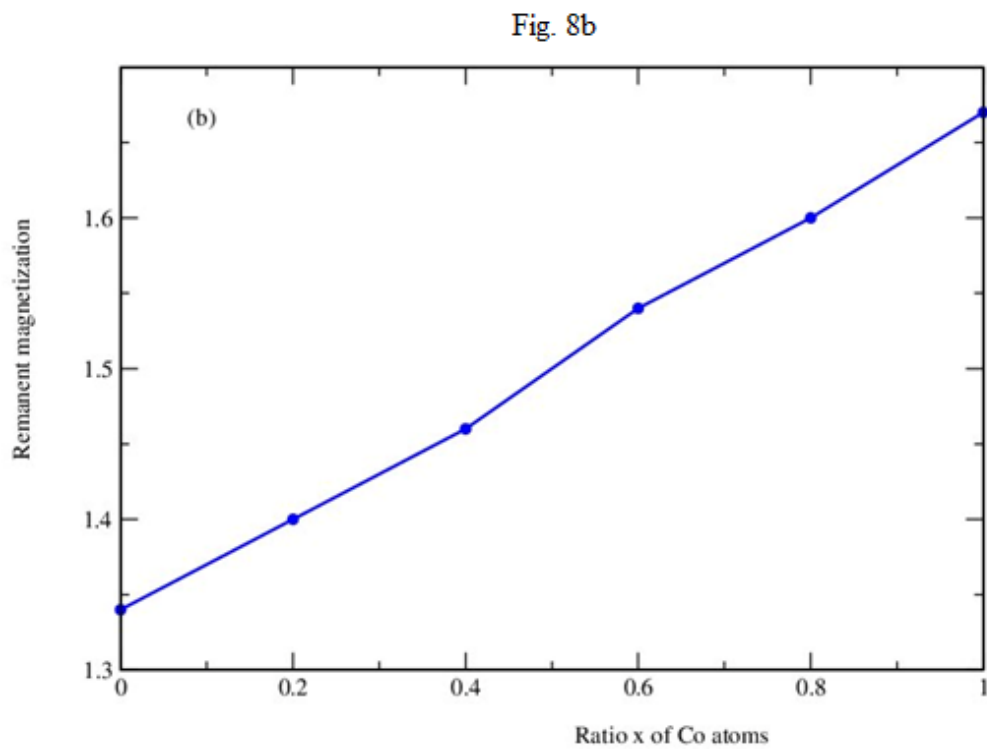
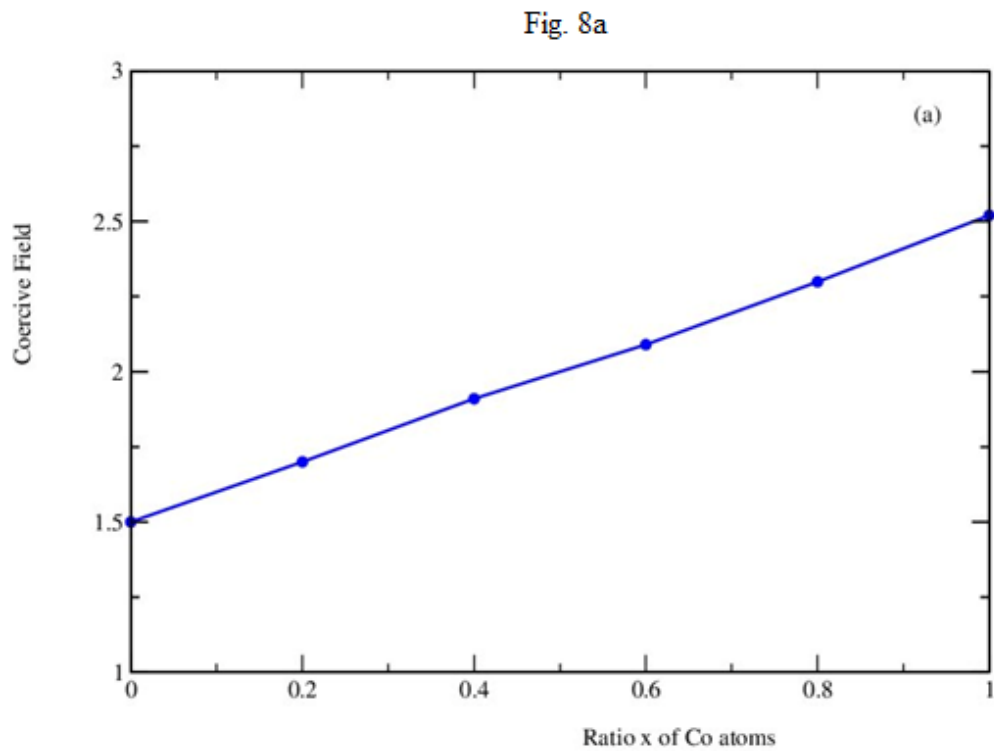


Figure V.8: Champ coercitif (a) et aimantation rémanente (b) en fonction du rapport de concentration x des atomes de Co de l'alliage ternaire $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$.

V.4. Conclusion

Nous avons étudié les diagrammes de phase et les propriétés magnétiques de l'alliage ternaire ferromagnétique $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$ avec les spins $S=2$ pour Fe, $\sigma = 3/2$ pour Co et $q=1$ pour les atomes de Ni. L'étude a été réalisée par simulations Monte Carlo sous l'algorithme Metropolis. Les diagrammes de phase à l'état fondamental ont été étudiés dans différents plans de paramètres physiques. Nous avons constaté une symétrie parfaite des configurations par rapport à l'axe $H=0$. De plus, nous avons examiné l'effet du rapport de concentration x des atomes de Co sur l'aimantation, la susceptibilité, la température de transition et les cycles d'hystérésis. Les résultats obtenus ont montré que l'augmentation du rapport de concentration des atomes de Co dans le système conduit à une augmentation de l'aimantation et de la température de transition. En outre, la surface des boucles d'hystérésis magnétiques augmente lorsque la concentration en atomes de Co augmente.

Chapitre VI

Propriétés diélectriques de la structure
de type Ovalène avec interactions
RKKY : Simulations Monte Carlo

VI.1. Introduction

Ces dernières années, les matériaux bidimensionnels ont fait l'objet de plusieurs recherches scientifiques. Le déploiement de ce type de matériaux composés d'une monocouche d'atomes, tels que le graphène, le graphyne et les structures de phosphore noir, a attiré une attention considérable en raison de leurs applications potentielles et des dispositifs spintroniques de la prochaine génération [167-173]. En outre, de nombreuses études scientifiques ont été basées sur des composés appelés hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) [174, 175]. En effet, ces molécules ont été utilisées en nanotechnologie [176-178]. L'Ovalène (formule chimique $C_{32}H_{14}$) est l'un de ces composés, constitué de dix anneaux de benzène fusionnés. Les chercheurs Chen et al. ont utilisé les simulations de dynamique moléculaire pour étudier le comportement de la nanostructure de l'Ovalène pendant la fusion [179]. En outre, les chercheurs Mocci et al. ont fait une étude computationnelle sur les nanostructures de graphène, en se concentrant sur les molécules de coronène et d'ovalène et leurs équivalents substitués à Si, afin d'évaluer les effets des modifications chimiques à l'aide de la théorie de (DFT) [180]. De même, ils ont réalisé une étude numérique comparative des propriétés optoélectroniques de ces molécules après substitution du BN en utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité et des calculs DFT en fonction du temps [181]. En outre, une étude a été menée sur l'Ovalène contenant du deutérium à l'aide de cette technique [182]. Récemment, les interactions d'échange à longue portée, en particulier celles résultant du couplage indirect des spins atomiques locaux par des spins, appelées interactions Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKK), jouent un rôle crucial dans le ferromagnétisme et dans les semi-conducteurs magnétiques dilués [183, 184], la magnéto-résistance géante et dans les nano-fils multicouches de Ni/Cu [185]. Récemment, les interactions RKKY contrôlables ont attiré l'attention dans le domaine de la spintronique [186].

L'objectif dans ce chapitre est d'explorer un système composé de deux plans électriques A et B en forme d'ovalène, avec des spins $\sigma-7/2$ et $S-1$ [187, 185], séparés par des couches non électriques. Les interactions de couplage d'échange RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida) [186-192] sont appliquées entre les atomes du plan A et ceux du plan B. Le système est étudié par la méthode Monte Carlo selon l'algorithme Metropolis [193]. En effet, ce travail théorique peut contribuer à mieux comprendre les propriétés diélectriques des nanostructures de type Ovalène avec des interactions RKKY. En particulier, la nanostructure de type Ovalène est très utile dans les applications nanotechnologiques.

Le reste de ce chapitre est organisé comme suit : Dans la section 2, le modèle et les détails de la méthode de calcul sont décrits et dans la section 3, les résultats obtenus sont discutés. Enfin, la section 4 conclut le document par un résumé des principaux résultats.

VI.2. Présentation du système et de son hamiltonien

La nanostructure de type ovalène est étudiée dans des conditions aux limites libres dans le cadre du modèle d'Ising. Cette nanostructure se compose de deux plans électriques de type ovalène A et B, avec des spins mixtes $\sigma = \pm 7/2, \pm 5/2, \pm 3/2, \pm 1/2$ et $S = \pm 1, 0$, séparés par des couches non électriques (*NEL*). Le nombre total de spins du nano-système est $N = N_\sigma + N_S = 92$ avec $N_\sigma = 28$ (14 spins dans chaque plan) et $N_S = 64$ (32 spins dans chaque plan) (voir Figure VI.1). Les basculements de spin sont soit acceptés soit rejetés en fonction des exigences de l'algorithme de Metropolis. Les informations collectées ont été générées par 5×10^5 configurations dans les simulations de Monte Carlo. De plus, pour atteindre l'équilibre dans le nano-système, nous éliminons les 10^5 premières itérations.

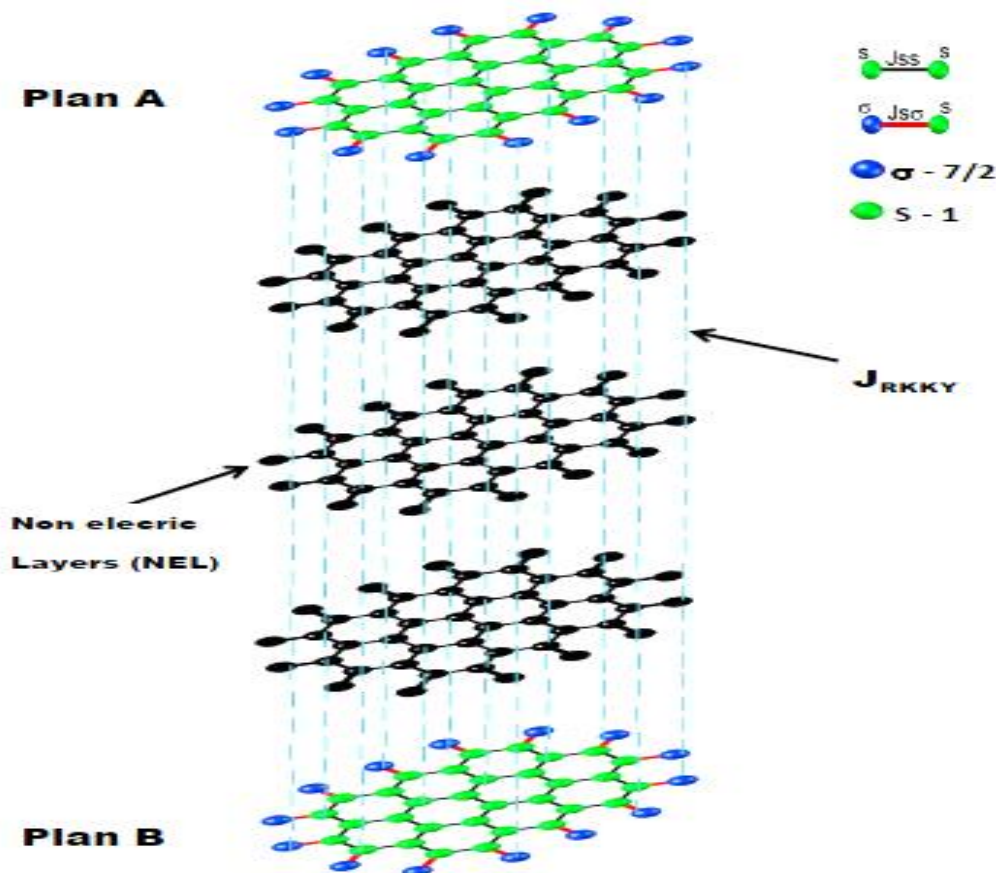


Figure VI.1: Représentation schématique des deux plans électriques de type ovalène séparés par des couches non électriques.

L'hamiltonien de la nanostructure de type ovalène est donné par :

$$\mathcal{H} = -J_{SS} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j - J_{S\sigma} \sum_{\langle k,l \rangle} \mathbf{S}_k \sigma_l - J_{RKKY} \left(\sum_{\langle m,n \rangle} \mathbf{S}_m \mathbf{S}_n + \sum_{\langle p,q \rangle} \sigma_p \sigma_q \right) - 2\mu E_Z \left(\sum_i S_i^z + \sum_j \sigma_j^z \right) \quad (\text{VI.1})$$

Où J_{SS} et $J_{S\sigma}$ représentent les couplages d'échange entre deux premiers atomes les plus proches voisins des plans A et B. Les notations $\langle i,j \rangle$, $\langle k,l \rangle$, $\langle m,n \rangle$ et $\langle p,q \rangle$ représentent les spins du premier voisin le plus proche. J_{RKKY} est l'interaction entre les deux plans électriques A et B. E_Z est le champ électrique longitudinal externe.

L'interaction J_{RKKY} est défini comme suit :

$$J_{RKKY} = \frac{a^2 J_0}{(NEL)^2} \cos(K_f NEL) \quad (\text{VI.2})$$

Où :

- a : représente la constante de réseau.
- J_0 : est la constante de couplage électrique et K_f décrit le niveau de Fermi qui prend une valeur de 0.5. En outre, la quantité $a^2 J_0$ est égale à 1, comme indiqué dans les références [194, 195]. NEL désigne le nombre de couches non électriques.

L'énergie interne par site de la nanostructure de type ovalène est définie comme suit :

$$E = \frac{1}{N} \langle \mathcal{H} \rangle \quad (\text{VI.3})$$

Les polarisations partielles et totale de la nanostructure de type ovalène sont données par les formules suivantes :

$$P_S = \frac{1}{N_S} \sum_i S_i \quad (\text{VI.4})$$

$$P_\sigma = \frac{1}{N_\sigma} \sum_j \sigma_j \quad (\text{VI.5})$$

$$P_{tot} = \frac{N_S P_S + N_\sigma P_\sigma}{N_S + N_\sigma} \quad (\text{VI.6})$$

N_σ et N_S sont respectivement les nombres de spins σ et S .

Les susceptibilités diélectriques partielles et totale de la nanostructure de type ovale sont données par les formules suivantes :

$$\chi_S = \beta(\langle P_S^2 \rangle - \langle P_S \rangle^2) \quad (\text{VI.7})$$

$$\chi_\sigma = \beta(\langle P_\sigma^2 \rangle - \langle P_\sigma \rangle^2) \quad (\text{VI.8})$$

$$\chi_{tot} = \frac{N_S \chi_S + N_\sigma \chi_\sigma}{N_S + N_\sigma} \quad (\text{VI.9})$$

VI.3. Résultats numériques et discussion

Dans cette section, nous explorons l'effet des interactions J_{RKKY} sur les propriétés diélectriques de la nanostructure d'ovalène. Nous présentons dans les figures 2a et 2b, les polarisations partielles (P_S et P_σ) et totales (P_{tot}) en fonction de la température. Ces figures sont tracées pour les paramètres fixes suivants : $E_Z=1$, $J_{SS}=1$ et $J_{S\sigma}=-0.1$. Les polarisations partielles $P_S=+1$ et $P_\sigma=+7/2$ ont conduit à la valeur de la polarisation totale : $P_{tot} = ((7/2 \times 28) + (1 \times 64)) / ((28+64)) = 1.76$. Dans les Figures VI.2a et 2b, les polarisations partielles et totales diminuent avec l'augmentation de la température. Le nano-système subit une phase super-paraélectrique. Ceci est dû au fait que l'augmentation de la valeur de la température et du nombre de couches non électriques (NEL) favorise le désordre dans le système. En outre, pour trouver la valeur exacte de la température de transition qui sépare les phases ferriélectrique et super-paraélectrique, nous traçons à la Figure VI.2c la susceptibilité diélectrique totale pour différents nombres de couches non électriques (NEL) et les mêmes valeurs de paramètres déjà prises à la Figure VI.2b. On constate que le déplacement des pics de susceptibilité diélectrique totale se fait vers les basses températures lorsque le nombre de couches non électriques augmente, ce qui confirme le comportement de la polarisation totale. Les températures de transition obtenues, pour les couches non électriques $NEL=1, 2$ et 3 , sont $T_{tr} = 10.5, 7.5$ et 6.75 , respectivement. Pour étudier l'effet des différentes couches non électriques sur la température de transition, nous représentons sur la figure VI.2d des résultats trouvés sur les figures VI.2b et 2c. On constate que la température de transition n'est pas affectée par l'augmentation du nombre de couches non électriques pour $NEL > 3$.

Fig.2a

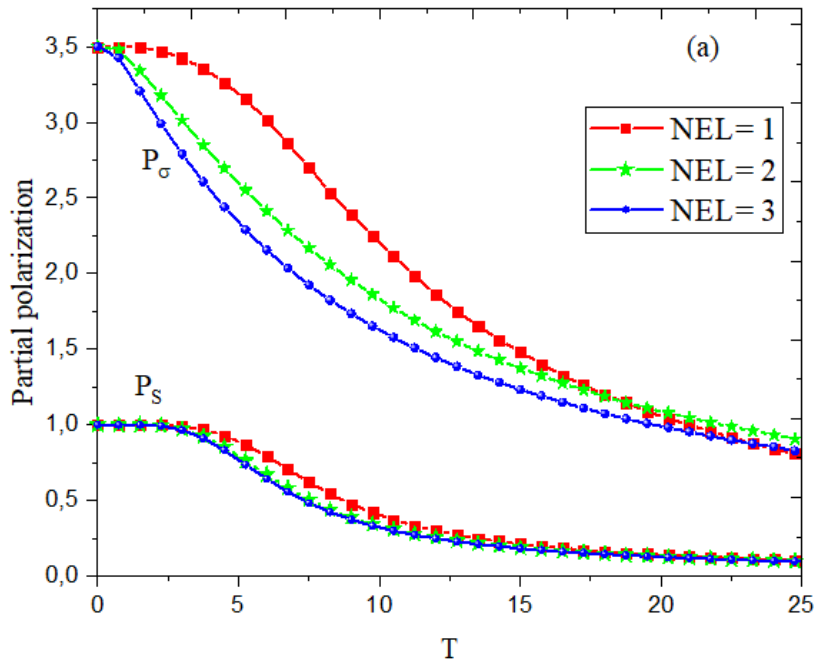
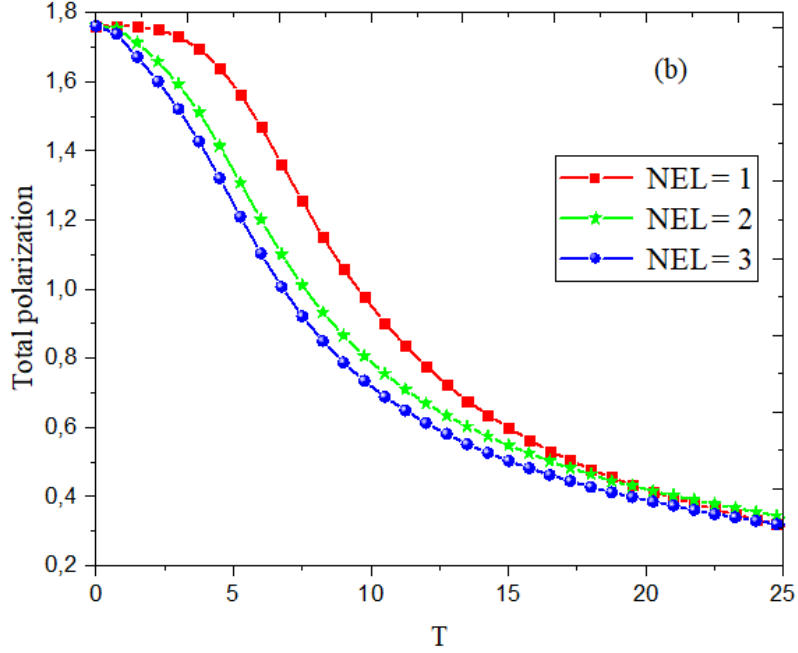


Fig.2b



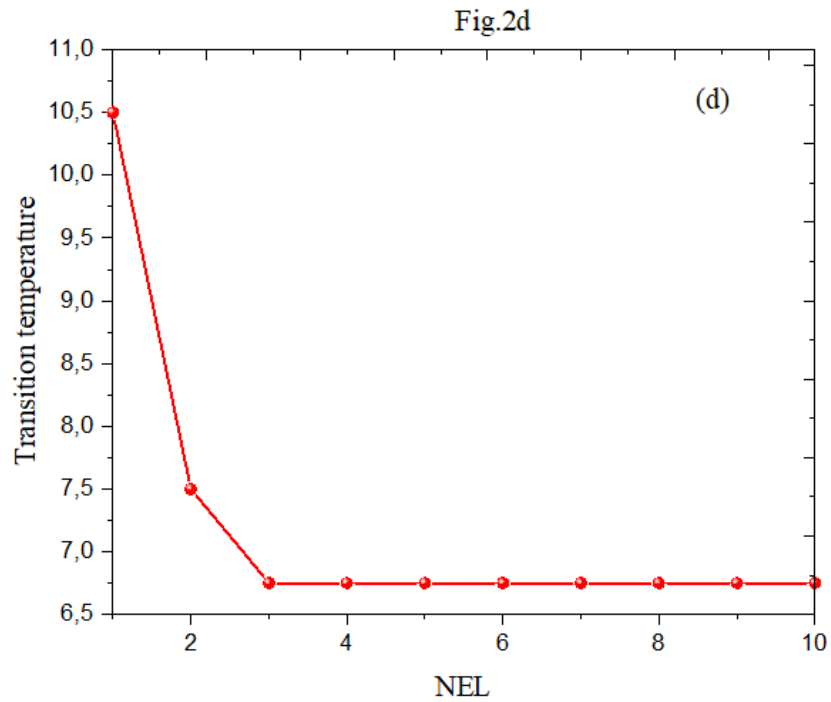
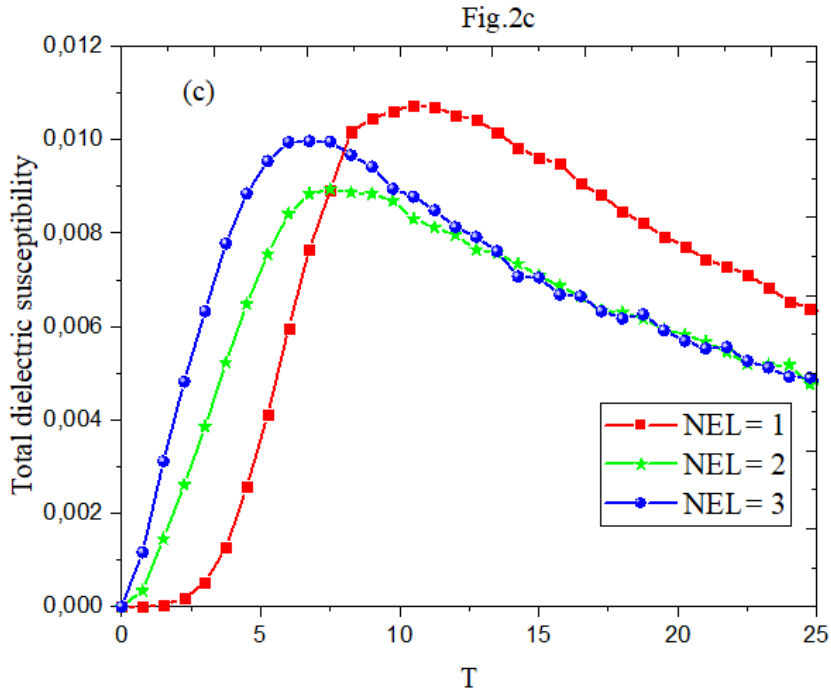


Figure VI.2: Polarisations partielles (a), polarisation totale (b), susceptibilité diélectrique totale (c) en fonction de la température et température de transition en fonction des couches non électriques (d). Ces figures sont tracées pour : $E_z=1$, $J_{SS}=1$, $J_{S\sigma}=-0,1$

Pour examiner l'effet du paramètre de champ électrique sur les polarisations partielles et totale et sur la susceptibilité diélectrique totale de la nanostructure ovalène, nous illustrons sur les

figures VI.3a, 3b et 3c les résultats obtenus pour $E_Z=1, 2$ et 3 , dans le cas où $J_{SS}=1, NEL=1$ et $J_{S\sigma}=-0,1$.

Les figures VI.3a et 3b montrent les polarisations partielles et totales en fonction de la température pour différentes valeurs de E_Z . Ces figures montrent que l'augmentation de la valeur de E_Z augmente l'amplitude des polarisations partielles et totale de cette nanostructure. On peut également observer que les courbes de polarisation augmentent d'une manière significative à partir de zéro. Pour déterminer précisément l'effet de E_Z et les valeurs de la température de transition, nous traçons sur la figure VI.3c la susceptibilité diélectrique totale pour les mêmes valeurs prises pour la figure VI.3b. Un déplacement des pics de susceptibilité diélectrique totale vers les valeurs de haute température lors de l'augmentation des valeurs de champ électrique est constaté, confirmant le comportement de la polarisation totale. Les températures de transition obtenues, pour $E_Z =1, 2$ et 3 , sont $T_{tr} = 10.75, 18.95$ et 25.90 , respectivement. En combinant les résultats obtenus dans les figures VI.3a et 3b, la figure VI.3d illustre le comportement de la température de transition en fonction du paramètre de champ électrique (E_Z). Cette figure montre clairement que la température de transition augmente presque linéairement. Ceci est dû à la compétition induite par le choix des différents paramètres physiques régissant le nano-système.

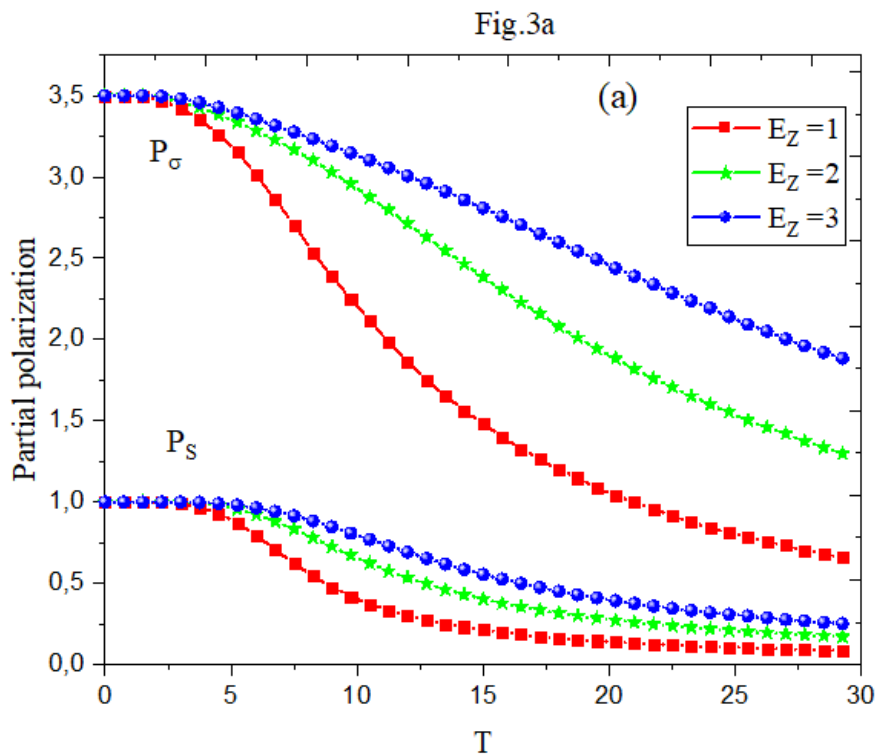


Fig.3b

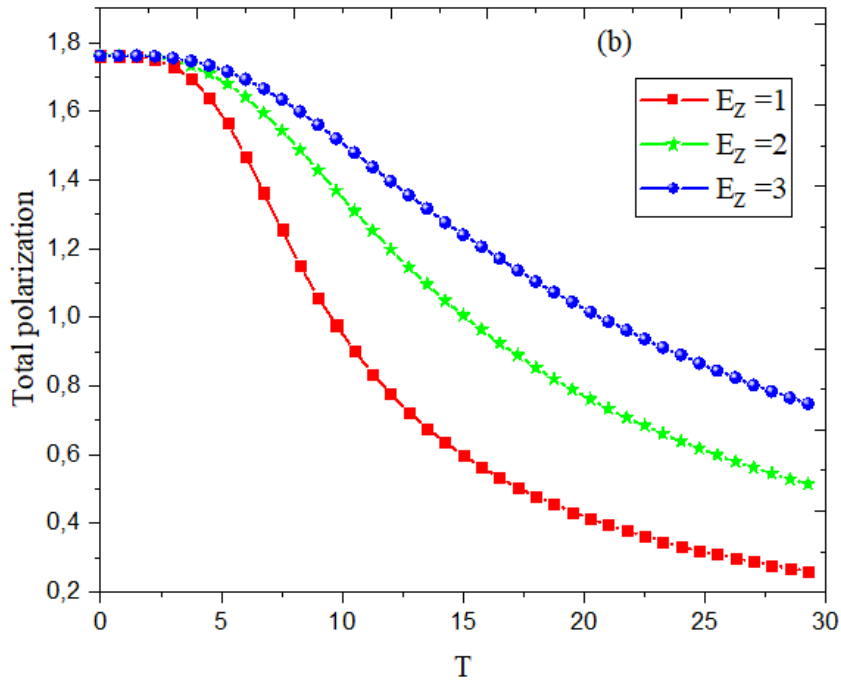
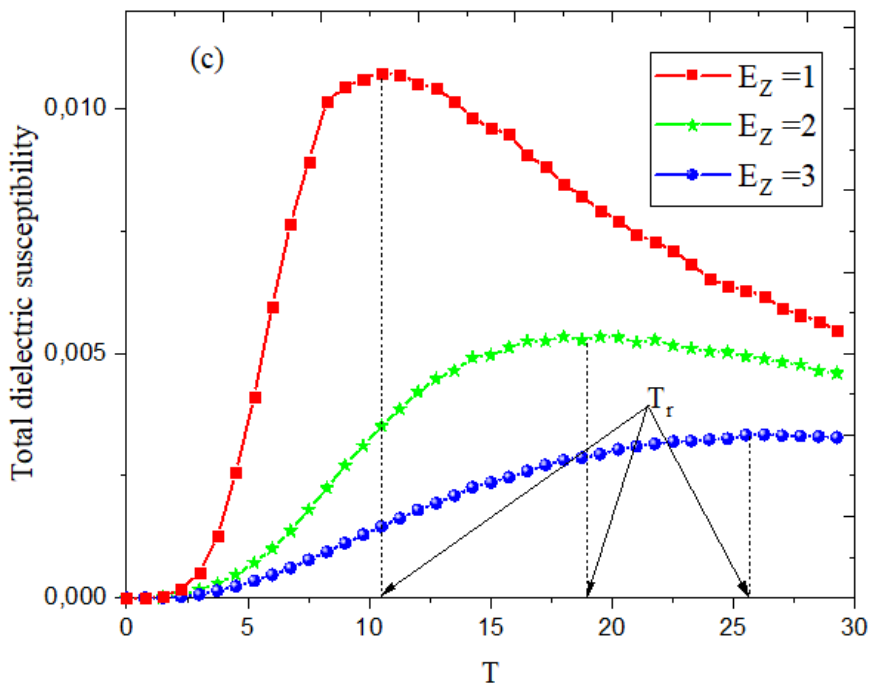


Fig.3c



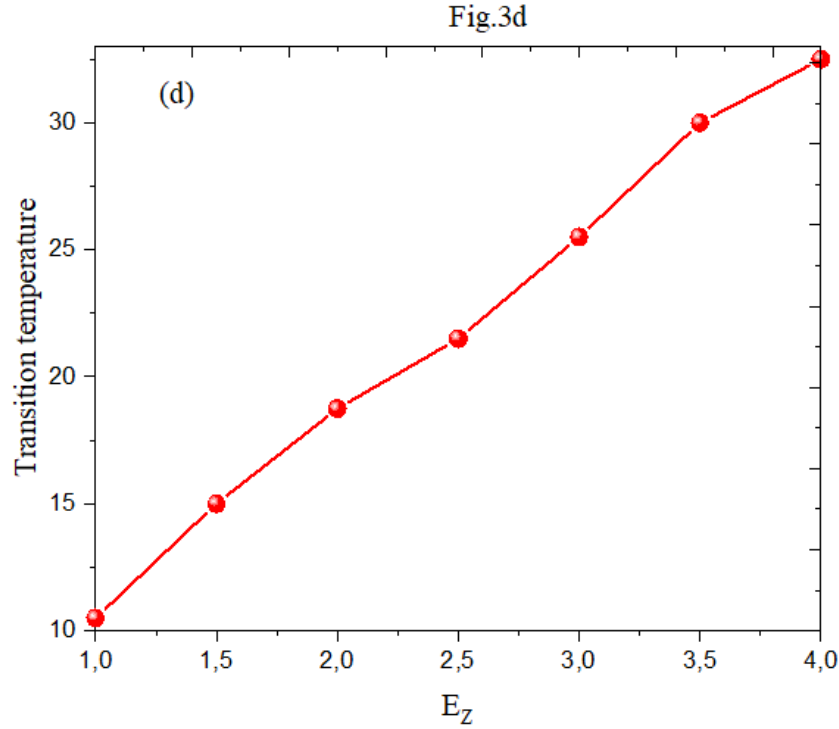


Figure VI.3: Polarisation partielle (a), polarisation totale (b), susceptibilité diélectrique totale (c) en fonction de la température et (d) température de transition en fonction du champ électrique longitudinal externe. Ces figures sont tracées pour des paramètres fixes : $J_{SS}=1$, $NEL=1$ et $J_{S\sigma} = -0.1$.

Pour montrer l'impact du couplage d'échange J_{SS} sur les polarisations partielles et totale et sur la susceptibilité diélectrique totale, nous illustrons les résultats obtenus dans les figures VI.4a, 4b et 4c. Ces figures sont établies pour les paramètres fixes suivants : $E_z=1$, $NEL=1$ et $J_{S\sigma} = -0.1$.

Comme le montre la figure VI.4a, la polarisation partielle P_σ n'est pas affectée par la variation de J_{SS} . La figure 4b montre que l'augmentation du paramètre J_{SS} entraîne un déplacement de la température de transition vers des valeurs plus élevées. En outre, d'après la figure VI.4c, les valeurs de la température de transition sont $T_{tr} \approx 10, 11.5, 12.5, 14.25$ et 15.5 , respectivement.

En se basant sur les figures VI.4b et VI.4c, nous traçons la figure VI.4d pour mieux comprendre le comportement de la température de transition en fonction du paramètre J_{SS} . En effet, la température de transition augmente de manière quasi linéaire en fonction du paramètre J_{SS} .

Fig.4a

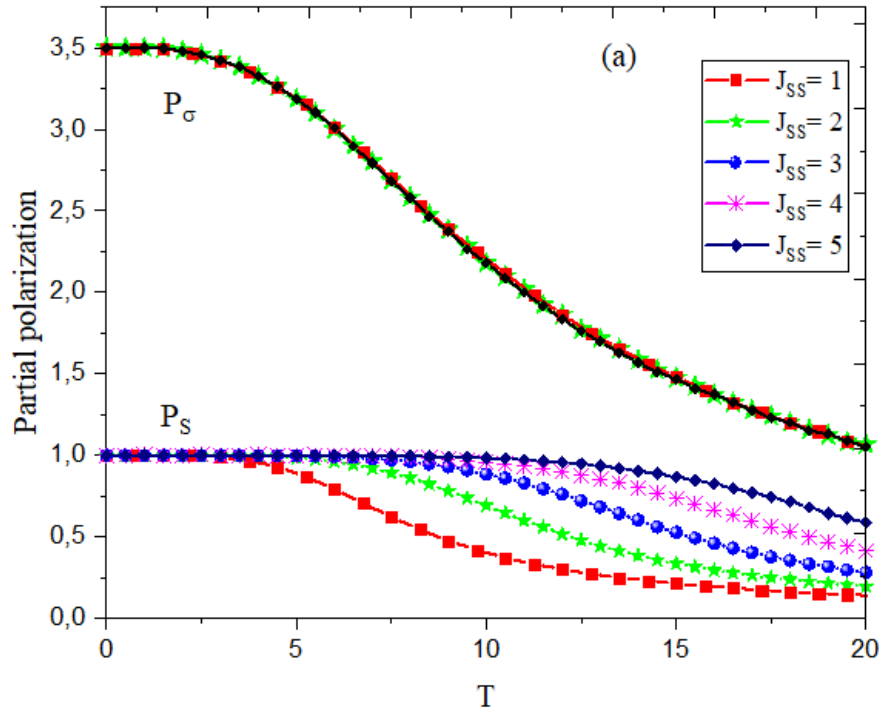
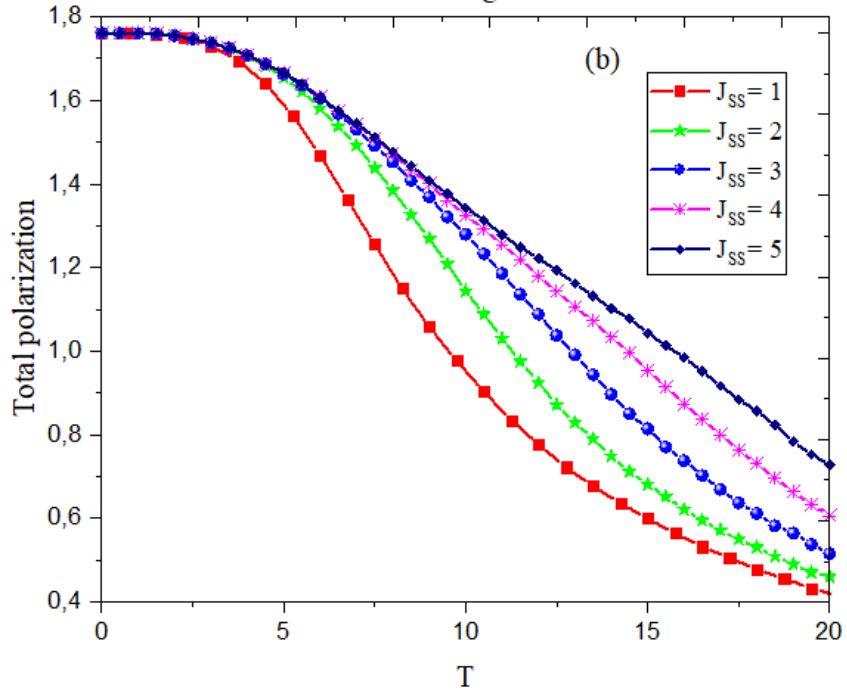


Fig.4b



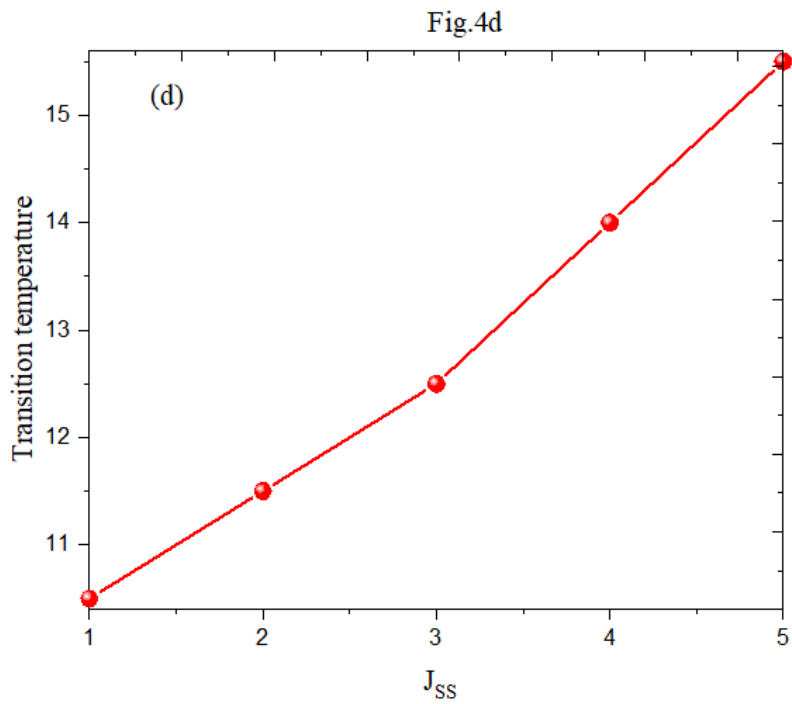
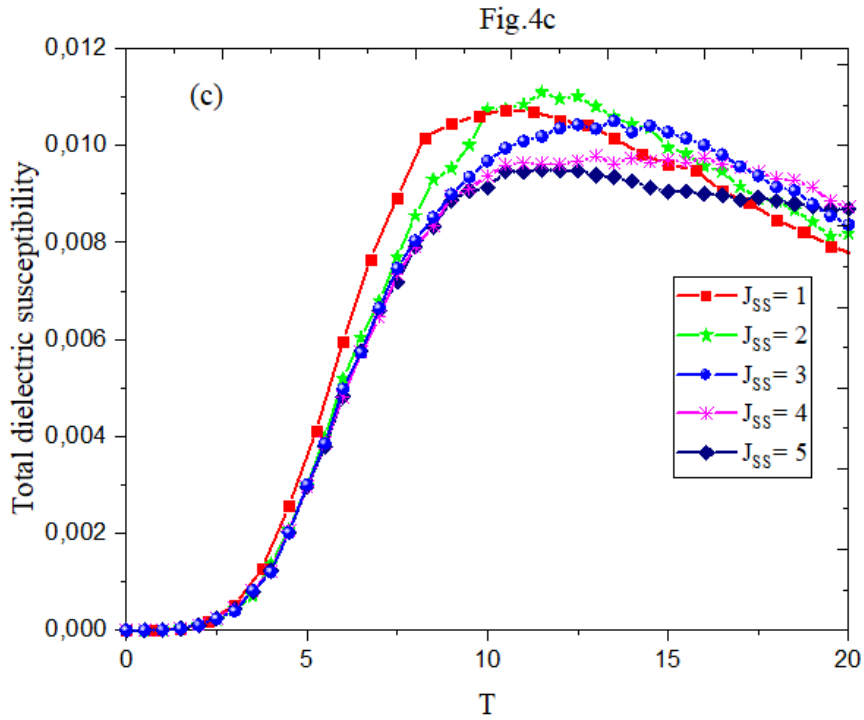


Figure VI.4: (a) Polarisation partielles, (b) polarisation totale, (c) susceptibilité diélectrique totale en fonction de la température et (d) température de transition en fonction du paramètre de couplage d'échange. Ces figures sont tracées pour : $E_Z=1$, $NEL=1$ et $J_{S\sigma}=-0,1$.

Pour examiner l'influence du couplage d'échange ferriélectrique $J_{S\sigma}$, entre les spins S et σ , sur le comportement thermique des polarisations partielles et totales et de la susceptibilité diélectrique, nous illustrons sur les figures VI.5a, 5b et 5c, le comportement de ce paramètre. Ces figures sont obtenues pour plusieurs valeurs du paramètre ferriélectrique ($J_{S\sigma} = -0.2, -0.4, -0.6$ et -0.1), avec: $NEL=1$, $J_{SS}=1$ et $E_Z=1$. D'après la figure VI.5a, lorsque le paramètre ferroélectrique (J_{SS}) augmente, nous observons un léger effet sur la polarisation partielle P_σ , tandis qu'une diminution de la polarisation partielle P_S est observée. En outre, dans la figure VI.5b, nous observons que la courbe de polarisation totale présente le même comportement que la polarisation partielle P_S (voir figure VI.5a).

Pour identifier précisément les valeurs de la température de transition, nous traçons la susceptibilité diélectrique totale, comme le montre la figure VI.5c. Le déplacement des pics de susceptibilité diélectrique totale vers les valeurs de basse température peut être observé en augmentant le paramètre ferriélectrique $|J_{S\sigma}|$. Les températures de transition obtenues pour les paramètres ferroélectriques $|J_{S\sigma}| = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ et 1 sont $T_{tr} \approx 10.5, 10, 9.5, 8.5$ et 8 , respectivement.

Pour mettre en évidence les résultats obtenus dans les figures 5b et 5c, nous illustrons dans la figure VI.5d le comportement de la température de transition en fonction du paramètre $J_{S\sigma}$. Cette figure montre clairement que la température de transition diminue presque linéairement lorsque le paramètre ferriélectrique $|J_{S\sigma}|$ augmente. Une augmentation de ce paramètre pourrait indiquer une augmentation de l'ordre ferriélectrique ou de la polarisation, ce qui peut influencer la température de transition.

Fig.5a

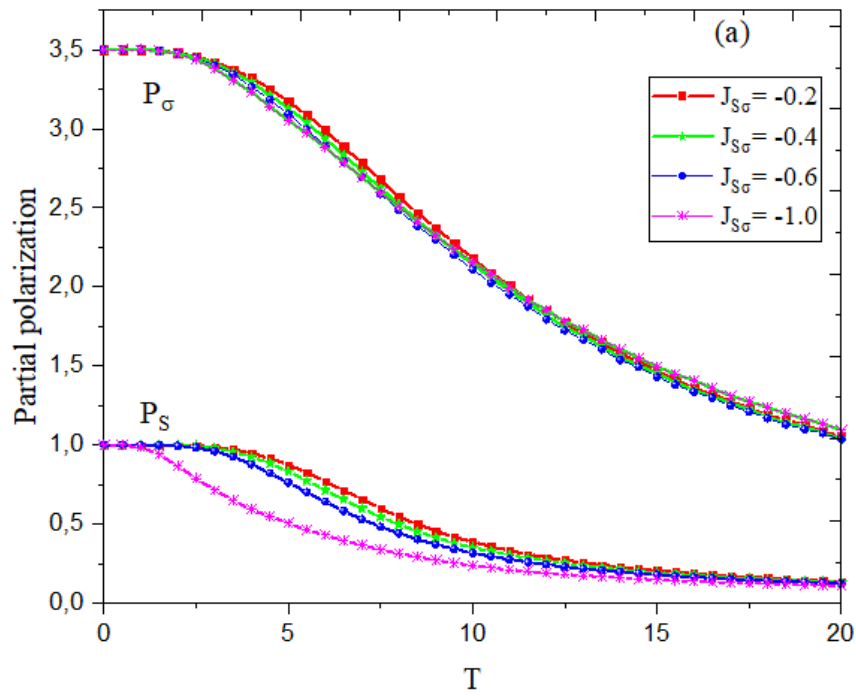
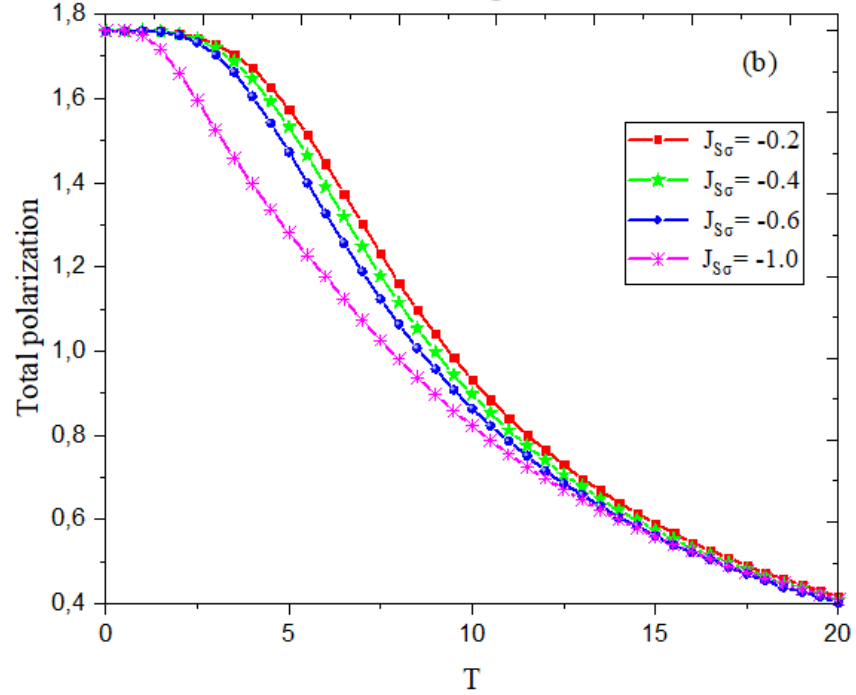


Fig.5b



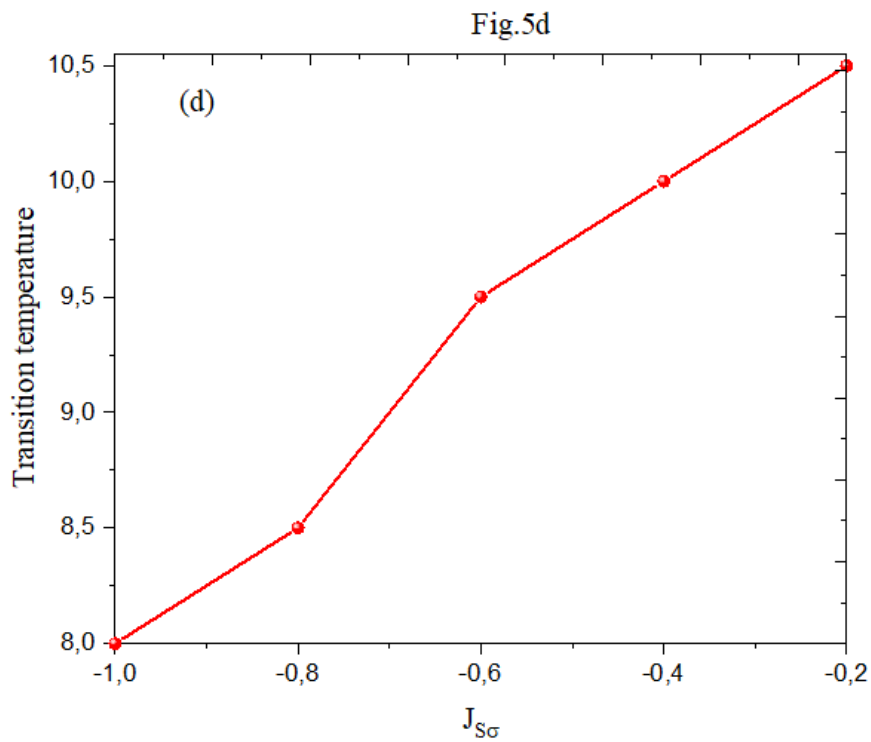
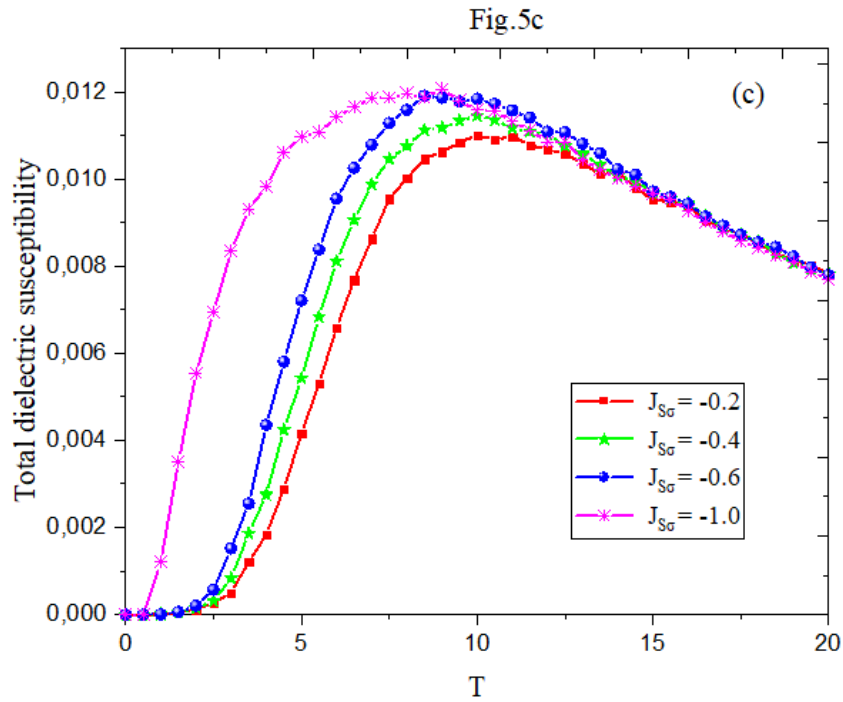


Figure VI.5: (a) Polarisation partielle, (b) polarisation totale, (c) susceptibilité diélectrique totale versus la température et (d) température de transition en fonction du paramètre ferriélectrique. Ces figures sont tracées pour les paramètres fixes suivants : $NEL=1$, $J_{SS}=1$ et $E_Z=1$.

V.4. Conclusion

En résumé, nous avons examiné les propriétés diélectriques d'une nanostructure composée de deux couches électriques ovalène contenant des spins mixtes $\sigma-7/2$ et $S-1$, séparées par des couches non électriques en présence d'un champ électrique externe. L'interaction *RKKY* entre les plans A et B a été pris en compte. Le nano-système a été étudié par la méthode Monte Carlo basées sur l'algorithme de Metropolis. Il a été constaté que l'augmentation du nombre de couches neutres (*NEL*) entraîne une diminution de la valeur de la température de transition. Cependant, les températures de transition ne sont pas affectées lorsque le nombre de couches non électriques $NEL > 3$. En outre, lorsque $|J_{S\sigma}|$ augmente, la température de transition diminue.

Conclusions générales et perspectives

Ce mémoire de thèse porte sur l'étude des propriétés magnétiques et magnétocaloriques de différents nanomatériaux, tels que la Rubrène, la Kesterite, la Stannite, le 4-(Mg₄C₅₆) Graphullerène, les composés nano-Heusler Ru₂MnX (X = Nb, Ta, V) et l'alliage ternaire FeCo_xNi_{1-x} ainsi que les propriétés diélectriques de l'Ovalène. La méthode Monte Carlo a été utilisée pour mener ces études. Les résultats obtenus ont été analysés en détail et ont permis de déterminer des propriétés clés telles que les transitions de phase, les températures de compensation, les polarisations, les entropies magnétiques et les cycles d'hystérésis.

Les caractéristiques magnétiques de la Rubrène, de la Kesterite et de la Stannite, qui présentent des spins mixtes, ont été étudiées. Les interactions d'échange, les champs magnétiques externes et les champs cristallins ont été pris en compte pour déterminer les diagrammes de phase et les cycles d'hystérésis. Les résultats ont montré que la température de transition augmente avec l'accroissement des interactions d'échange.

Le système "Graphullerène" a été étudié pour analyser ses propriétés magnétiques et magnétocaloriques. L'effet des interactions d'échange, du champ cristallin et de l'interaction inter-surface a été examiné. Les résultats ont révélé une transition de la phase ferrimagnétique à la phase paramagnétique. De plus, il a été trouvé que l'entropie magnétique maximale ($-\Delta S_m^{\max}(T, H)$) et la puissance de refroidissement relative (RCP) augmentent avec l'accroissement du champ magnétique externe, ce qui rend le Graphullerène un bon candidat pour des applications de réfrigération magnétique.

Le nano-Heusler Ru₂MnX (X = Nb, Ta, V), un système tridimensionnel, a été étudié en tenant compte de l'effet de la dilution. Les résultats ont montré que la température de blocage augmente avec la diminution du nombre d'atomes non magnétiques, tandis que la surface des boucles d'hystérésis et le champ coercitif diminuent.

L'alliage FeCo_xNi_{1-x} a été examiné en fonction du rapport de la concentration (x) des atomes de Co. Les propriétés magnétiques telles que l'aimantation, la susceptibilité, la température de transition et les cycles d'hystérésis magnétiques ont été étudiées. Les résultats ont indiqué une augmentation significative de l'aimantation, de la température de transition et de la surface des boucles d'hystérésis magnétiques avec l'augmentation du rapport de concentration de Co.

Enfin, les propriétés diélectriques de l'Ovalène ont été analysées en se basant sur l'interaction RKKY. Les propriétés diélectriques et les cycles d'hystérésis électriques ont été étudiés. Les résultats ont montré que l'augmentation du nombre de couches non électriques entraîne une

diminution de la température de transition, tandis que cette dernière diminue avec l'augmentation de $|J_{SG}|$.

Malgré ces avancées, il reste encore des défis et des questions non résolues dans le domaine du magnétisme qui nécessitent une recherche approfondie. L'utilisation de calculs ab-initio, tels que ceux effectués avec le code "Quantum Espresso", est envisagée pour étudier les propriétés des nouveaux nanomatériaux. L'intégration d'approches expérimentales est également recommandée pour valider les résultats obtenus. Les nanomatériaux continuent de jouer un rôle crucial dans l'industrie et la nanotechnologie, offrant de nouvelles opportunités de recherche et de développement.

Annexes

ANNEXE 1 : Modèles de Spin

✓ *Modèle de Potts*

En physique statistique, ce modèle constitue une extension du modèle d'Ising. La principale différence réside dans le fait que, sur chaque site d'un réseau, les spins peuvent prendre plus de deux valeurs distinctes [196]. En règle générale, ces valeurs sont exprimées sous forme de nombres entiers positifs égaux ou supérieurs à 1. Un modèle de Potts de type q est un modèle de spin dans lequel il existe q valeurs de spin différentes, avec $q \geq 2$. Ces valeurs de spin sont habituellement représentées par les chiffres 1, 2, ..., q .

L'expression mathématique qui définit l'Hamiltonien du modèle de Potts est la suivante :

$$\mathcal{H} = -J_{ij} \sum_{\langle i,j \rangle} \delta_{S_i S_j} \quad (\text{A.1})$$

Où $\delta_{S_i S_j}$ est le symbole de Kronecker, qui est défini comme suit :

$$\delta_{S_i S_j} = \begin{cases} 1 & \text{si } S_i = S_j \\ 0 & \text{si } S_i \neq S_j \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

Le modèle de Potts correspond au modèle d'Ising lorsque $q = 2$, et pour $q > 2$, le système passe de l'état ferromagnétique à l'état paramagnétique.

✓ *Modèle XY*

Les modèles de spin continus représentent une autre généralisation du modèle d'Ising. Dans ces modèles, les spins sur le réseau peuvent prendre une gamme continue de valeurs plutôt qu'un ensemble discret, comme c'était le cas dans les modèles précédemment évoqués. Deux des modèles continus les plus courants sont le modèle XY et le modèle d'Heisenberg. Dans le modèle XY, les spins sont des vecteurs à deux composantes de longueur unitaire, leur permettant de s'orienter dans n'importe quelle direction d'un plan bidimensionnel (x, y) [35].

L'hamiltonien du modèle XY est exprimé comme suit :

$$\mathcal{H} = -J_{ij} \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - \vec{H} \cdot \sum_{\langle i \rangle} \vec{S}_i \quad (\text{A.3})$$

Où J_{ij} représente le paramètre d'interaction d'échange, S_i^x et S_j^y sont les opérateurs de spin, et H^x est le champ magnétique externe.

Les spins peuvent être décrits soit par leurs composantes S_x et S_y , en respectant la contrainte $S^2 = S_x^2 + S_y^2 = 1$, soit en utilisant une variable angulaire qui spécifie leur direction [18]. Par conséquent, il est approprié de reformuler l'Hamiltonien en termes de ces variables angulaires

$$\mathcal{H} = -J_{ij} \sum_{\langle i,j \rangle} \cos(\theta_i - \theta_j) - \sum_{\langle i \rangle} (H_x \cos(\theta_i) + H_y \sin(\theta_i)) \quad (\text{A. 4})$$

Les angles θ_i et θ_j représentent des variables angulaires locales qui définissent les orientations des spins. Le modèle XY est également appliqué à l'étude de systèmes tridimensionnels, même si les spins sont intrinsèquement bidimensionnels.

✓ *Modèle Heisenberg*

C'est un modèle de spin qui permet de traiter directement la corrélation entre les spins dans un système composé de plusieurs électrons. La distinction majeure entre le modèle d'Ising et celui d'Heisenberg réside dans le fait que le premier décrit les spins comme des dipôles ne pouvant prendre que deux orientations possibles (haut ou bas), tandis que le second autorise les vecteurs de spin à prendre n'importe quelle direction. Ainsi, les spins dans le modèle d'Heisenberg sont des vecteurs unitaires tridimensionnels. Plus précisément, les spins dans le modèle d'Heisenberg peuvent être représentés de deux manières : soit par des vecteurs à trois composantes S_x , S_y et S_z , avec la contrainte $S^2 = S_x^2 + S_y^2 + S_z^2 = 1$, soit par deux angles variables θ et Φ dans les coordonnées sphériques [35].

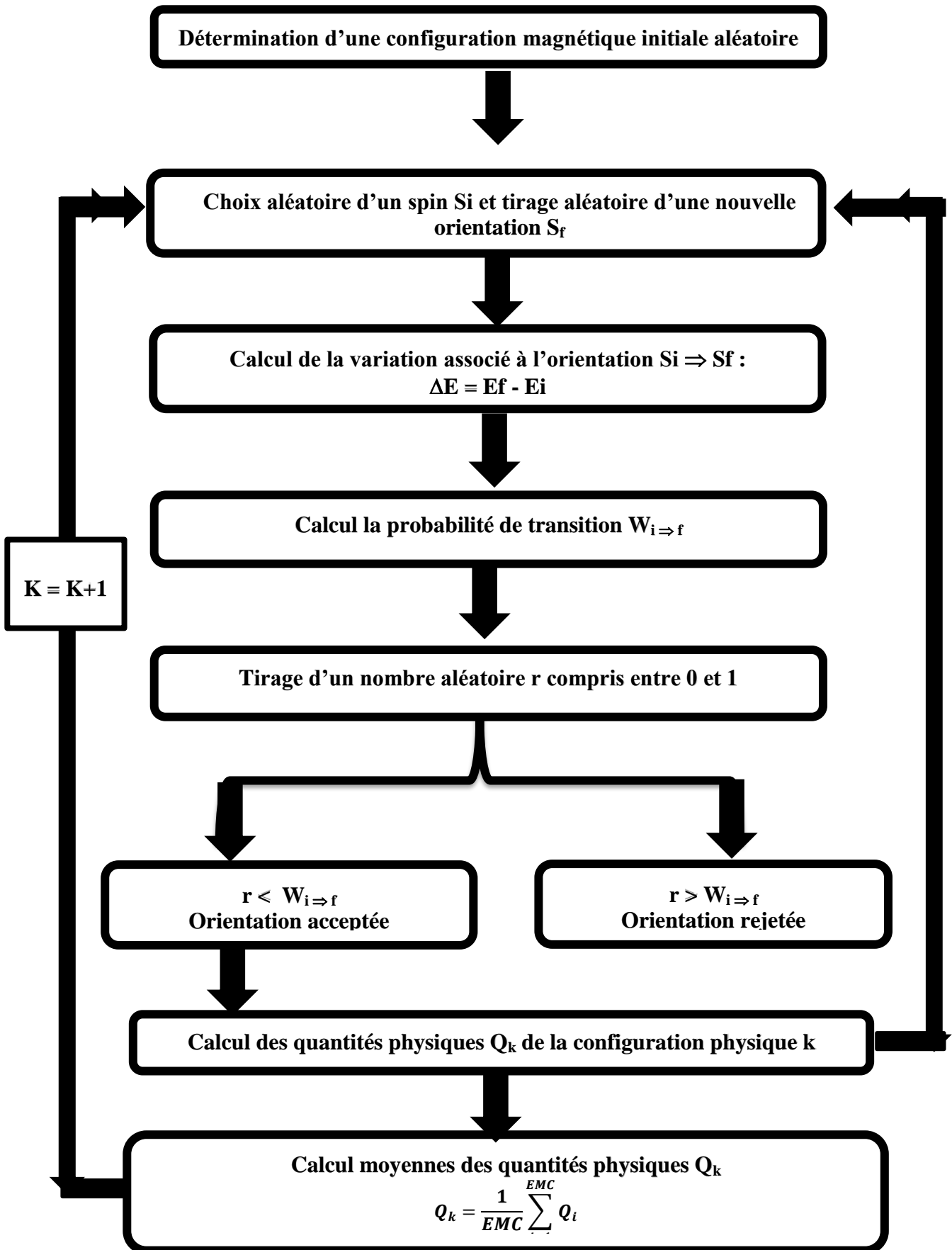
L'Hamiltonien qui caractérise le modèle d'Heisenberg est formulé comme suit :

$$\mathcal{H} = -J_{ij} \sum_{\langle i,j \rangle} (J_x S_{xj} + J_y S_{xi} S_{yi} S_{yj} + J_z S_{zi} S_{zj}) - \sum_{\langle i \rangle} (H_x S_{xi} + H_y S_{yi} + H_z S_{zi}) \quad (\text{A. 4})$$

Les paramètres d'interaction d'échange le long des axes x , y et z sont représentés respectivement par J_x , J_y et J_z . De plus, les composantes du champ magnétique extérieur le long des axes x , y et z sont notées H_x , H_y et H_z .

Le modèle de Heisenberg est également appelé le modèle XYZ (ou le modèle XXZ lorsque $J_x = J_y \neq J_z$). Dans le cas particulier où $J_z = 0$ et $J_x = J_y$, on obtient le modèle XY.

ANNEXE 2 : Organigramme d'un programme Monte Carlo avec l'algorithme Metropolis [59].



Références

- [1] E. M. Purcell et D. J. Morin, *Electricity and Magnetism*, Cambridge University Press, 2013.
- [2] S. M. Walker, *Magnetism*, Lerner Publications, 2005.
- [3] F. Houard, Q. Evrard, G. Calvez, Y. Suffren, C. Daiguebonne, O. Guillou, F. Gendron, B. Le Guennic, T. Guizouarn, V. Dorcet, M. Mannini, K. Bernot. Chiral supramolecular nanotubes of single-chain magnets. *Angew. Chem. Int.*(2019)
- [4] A. S. Edelstein et R. C. Cammaratra, *Nanomaterials: synthesis, properties and applications*, CRC Press, 1998.
- [5] H. Brune, H. Ernst, A Grunwald, W Grunwald, W. Hofmann et H. Krug, *Nanotechnology :assessment and perspectives*, Springer Science Business Media, 2006.
- [6] J. Daujat, *Origines et formation de la théorie des phénomènes électriques et magnétiques*, Hermann, (1945) 530.
- [7] M. Getzlaff, *Fundamentals of Magnetism*, Springer, (2008). ISBN 978-3-540-31152-2
- [8] B. Kastler, D. Vetter, Chapitre 2 - Le phénomène de résonance magnétique, Editor(s): Bruno Kastler, Daniel Vetter, *Comprendre L'irm (Huitième Édition)*, Elsevier Masson, (2018), 5-19.
- [9] W. Nolting, and A. Ramakanth, *Quantum Theory of Magnetism*, Springer, (2009).
- [10] H.E. Landsberg, *Advances in geophysics*, Academic Press,1(1966).
- [11] D. Gubbins et E. H. Bervera, *Encyclopedia of geomagnetism and paleomagnetism*, Springer (2007).
- [12] H. E. Landsberg, *Advances in geophysics*, Academic Press, (1965).
- [13] D.D. Majumder, D.D. Majumder, S. Karan, *Magnetic properties of ceramic nanocomposites.*. In *Woodhead Publishing Series in Composites Science and Engineering, Ceramic Nanocomposites*, 2013, Pages 51-91
- [14] J.-Y. Bigot, W. Hübner, T. Rasing, R. Chantrell, *Ultrafast Magnetism I*, Springer, 2016.

- [15] G.A.N. Connell, R. Allen, M. Mansuripur, Magneto-optical properties of amorphous terbium–iron alloys, *Journal of Applied Physics*. 53 (1982) 7759–7761.
- [16] J. S. Blundell and K. M. Blundell, *Concepts in Thermal Physics*, Oxford University Press, (2008).
- [17] F. Jedrzejewski, *Modèles Aléatoires et Physique Probabiliste*, Springer, (2009)
- [18] M. E. J. Newman and G. T. Barkema, *Monte Carlo Methods in Statical Physics*, Oxford University press, 2002.
- [19] A. Ammari and F. TEBBAA, Simulation du Modèle Magnétique de Heisenberg par la Dynamique de Spin. Mémoire de Master, Université Abderrahmane Mira de Bejaia (2016).
- [20] W. Nolting et A. Ramakanth, *Quantum Theory of Magnetism*, Springer, 2009.
- [21] H. Kramers, L’interaction entre les atomes magnétogènes dans un crystal paramagnétique, *Physica I* (1934) 182.
- [22] P. W. Anderson, Antiferromagnetism. Theory of superexchange interaction. *Phys. Rev.* 79 (1950) 350.
- [23] L. B Drissi, A. Benyoussef, E. H Saidi et M. Bousmina, *J. Magn. Magn. Mater.* 323 (2011) 3001.
- [24] Y.O Shkurdoda, L.V. Dekhtyaruk, A.G. Basov, A.M. Chornous, Y.M. Shabelnyk, A.P. Kharchenko and T.M. Shabelnyk, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 477 (2019) 88.
- [25] J.M. Coey, *Magnetism and magnetic materials*, Cambridge university press, 2010
- [26] Noureddine Hajjaji, Analyse de cycle de vie exergétique de systèmes de production d’hydrogène, thèse de doctorat, école d’ingénieurs de Gabès- Tunisie, 14 Janvier 2011.
- [27] I.J.L. Diaz, N.S. Branco, Monte Carlo simulations of an Ising bilayer with non-equivalent planes, *Physica A: Statistical Mechanics and Its Applications*. 468 (2017) 158–170. <https://doi.org/10.1016/j.physa.2016.10.055>.
- [28] N. Ananikian, R. Artuso, and H. Poghosyan, *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 503 (2018) 892-904.

- [29] J. Ricardo de Sousa, I. G. Araújo, J. A. Plascak, *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 278 (2000) 181-187.
- [30] P. Pfeuty, *Annals of Physics*, 57 (1970) 79.
- [31] E. Ising, Beitrag zur Theorie des Ferromagnetismus. *Zeitschrift Für Physik*, 31,(1924) 253–258.
- [32] G. Gallavotti, “Classical Statistical mechanics, Texts and Monographs in Physics”, Berlin: Springer-Verlag (1999).
- [33] L. Onsager, *Physical Review Journal*, 65 (1944) 117.
- [34] B. A. Berg, *Markov Chain Monte Carlo Simulations and Their Statistical Analysis*, World Scientific, (2004).
- [35] F. Bitter, *Physical Review*, 35 (1930) 1572.
- [36] M. Blume, V.J. Emery and R.B. Griffiths, *Physical Review A*, 4 (1971) 1071.
- [37] D.M. Saul, M. Wortis and D. Stauffer, *Physical Review B*, 9 (1974) 4964.
- [38] M. Blume, Theory of the First-Order Magnetic Phase Change in UO_2 , *Physical Review*. 141 (1966) 517.
- [39] J.A. Plascak, J.G. Moreira, Mean field solution of the general spin Blume-Capel model, *Physics Letters A*. 173 (1993) 360–364.
- [40] D. P. Landau et K. Binder, *A Guide to Monte Carlo Simulations in Statistical Physics*, Cambridge University Press, (2009).
- [41] D. P. Kroese, T. Brereton, T. Taimier, Z. I. Botev. *WIREs. Comput. Stat.* 6 (2014) 386-392. Doi:101002/wics1314.
- [42] R. Eckhardt, "Stan Ulam, John von Neumann, and the Monte Carlo method" (PDF). Los Alamos Science, No 15 (1987).
- [43] W. K. Hastings, *Biometrika*, 57 (1970) 97.
- [44] A. F. Smith, G. O. Roberts, *Journal of the Royal Statistical Society. Series B Methodological*, (1993) 3.

- [45] S. Zriouel, Contributions à l'étude Monte Carlo des propriétés magnétiques des nanomatériaux type graphyne et graphone, Thèse de Doctorat, Université Mohammed V, Rabat 2845 (2016).
- [46] A. Jinaphanh. Etudes de la convergence d'un calcul Monte Carlo de criticité : utilisation d'un calcul déterministe et détection automatisée du transitoire. Thèse de Doctorat, Université de Grenoble, (2012).
- [47] G. Terrée. Méthode de Monte-Carlo et non-linéarités : de la physique du transfert radiatif à la cinétique des gaz. Thèse de Doctorat, Génie des procédés. Ecole des Mines d'AlbiCarmaux, (2015).
- [48] W. Krauth, Statistical Mechanics Algorithms and Computations, Oxford University Press, (2006).
- [49] K. Hukushima, K. Nemoto, Exchange Monte Carlo method and application to spin glass simulations. Journal of the Physical Society of Japan, 65(6) (1996) 1604.
- [50] O. Breuleux, Échantillonnage dynamique de champs markoviens. Thèse de Doctorat, Faculté des arts et des sciences, Université de Montréal, 2009.
- [51] C. Gaetan et X. Guyon, Modélisation et statistique spatiales, Springer, (2011).
- [52] "Markov chain | Definition of Markov chain in US English by Oxford Dictionaries". Oxford Dictionaries | English. Retrieved 2017-12-14.
- [53] Ryder, Lewis H. Quantum field theory. Cambridge [Cambridgeshire]: Cambridge University Press. p. 160, 1941, (1985). ISBN 978-0521338592. OCLC 10533049.
- [54] G. S. Fishman, Monte Carlo Concepts, Algorithms, and Applications, Springer, (2013).
- [55] K. L. Chung, Second Edition. Die Grundlehren der mathematischen Wissenschaften, Band 104. Springer-Verlag New York, Inc., New York, (1967).
- [56] R. J. Glauber, Journal of mathematical physics, 4 (1963) 294.
- [57] N. Metropolis, A.W. Rosenbluth, M.N. Rosenbluth, A.H. Teller, E. Teller, Equation of state calculations by fast computing machines, The Journal of Chemical Physics. 21 (1953) 1087–1092.

- [58] N. Metropolis, S. Ulam, The Monte Carlo Method, *Journal of the American Statistical Association*. 44 (1949) 335–341. <https://doi.org/10.1080/01621459.1949.10483310>.
- [59] Taoufik Sahdane. Propriétés magnétiques de nanomatériaux : Etude par la méthode Monte Carlo. *Science des matériaux*. PhD , Thèse, Université Mohammed V Rabat (Maroc), 2017.
- [60] L. Yang, J. Chen, K. Ge, J. Guo, Q. Duan, F. Li, Y. Xu, Y. Mai, *J. Phys. Chem. C* 122 (2018) 23371–23376.
- [61] L. Chen, J. Deng, H. Gao, Q. Yang, L. Kong, M. Cui, Z. Zhang, *Appl. Surf. Sci.* 388 (2016) 396–400.
- [62] K. Kim, M.K. Kim, H.S. Kang, M.Y. Cho, J. Joo, J.H. Kim, K.H. Kim, C.S. Hong, D. H. Choi, *Synth. Met.* 157 (2007) 481–484.
- [63] M. Yamada, S. Naka, H. Okada, *Electrochemistry Tokyo* 85 280 (2017) 282.
- [64] P.S. Jo, D.T. Duong, J. Park, R. Sinclair, A. Salleo, *Chem. Mater.* 27 (2015) 3979–3987.
- [65] V. Podzorov, *MRS Bull.* 38 (2013) 15–24.
- [66] M.A. Reyesmartinez, A.J. Crosby, A.L. Briseno, *Nat. Commun.* 6 (2011) 6948.
- [67] W. Xie, P.L. Prabhumirashi, Y. Nakayama, K.A. McGarry, M.L. Geier, *ACS Nano*, 7 10245–10256.
- [68] H. Tsunoyama, A. Nakajima, *J. Phys. Chem. C* 121 (2017) 20680–20686.
- [69] N. Aggarwal, A. Patnaik, *J. Phys. Chem. B* 121 3190–3201.
- [70] R. Li, J. Deng, L. Chen, L. Kong, X. Wang, J. Meng, J. Sun, X. Zhang, J. Zhang, G. Wang, Q. Yang, H. Gao, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* 231 (2022) 1215–1219.
- [71] S. Wali, Q. Yin, J. Li, G. Si, M. Shafi, J. Ren, H. Zhang, *J. Mater. Chem. C* 10 (2022) 1289–1301.
- [72] K. Takada, K. Yoshimi, S. Tsutsui, K. Kimura, K. Hyashi, I. Hamada, S. Yanagisawa, N. Kasuya, S. Watanabe, J. Takeya, Y. Wakabayashi, *Phys. Rev. B* 105 (2022), 205205.
- [73] M. Zhang, Z. Hua, W. Liu, H. Liu, S. He, C. Zhu, Y. Zhu, *J. Mol. Model.* 26 (2020) 1–8.
- [74] A. Musa, A.S. Gidado, L. Mohammed, K. Yunusa, A.B. Suleiman, *J. Appl. Phys.* 11 (2019) 10–18.
- [75] L. Chen, J. Lu, G. Long, F. Zheng, J. Zhang, Y. Zhao, *J. Chem. Phys.* 481 (2016) 198–205.

- [76] L. Tsetseris, S.T. Pantelides, *Phys. Rev. B* 78 (2008), 115205.
- [77] C. Greenwell, G.J. Beran, *J. Mater. Chem. C* 9 (2021) 2848–2857.
- [78] Y. Zhang, D.R. Manke, S. Sharifzadeh, A.L. Briseno, A. Ramasubramaniam, K. J. Koski, *Appl. Phys. Lett.* 110 (2017), 071903.
- [79] J. Strečka, M. Jašćur, M. Hagiwara, Y. Narumi, J. Kuchar, S. Kimura K. Kindo, *J. Phys. Chem.Solids.* 66 (2005) 1828.
- [80] R.L. Serrano, D.J. Garcia, D. Betancourth, R.P. Amaral, N.S. Camilo, E.E. Rams, L. A. Ortellado, Z. G, P.G. Pagliuso, *J. Magn. Magn Mater.* 405 (2016) 304.
- [81] C.L. Zou, D.Q. Guo, F. Zhang, J. Meng, H.L. Miao, W. Jiang, *Physica* 104 (2018) 138–145.
- [82] X.S. Wang, F. Zhang, N. Si, J. Meng, Y.L. Zhang, W. Jiang, *Physica A* 527 (2019), 121356.
- [83] N. Si, F. Zhang, W. Jiang, Y.L. Zhang, *Physica A* 510 (2018) 641–648.
- [84] Z. Fadil, M. Qajjour, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, W.O. Benomar, *Physica B* 578 (2020), 411852.
- [85] W. Jiang, Y.N. Wang, A.B. Guo, Y.Y. Yang, K.L. Shi, *Carbon* 110 (2016) 41–47.
- [86] D. Lv, Y. Yang, W. Jiang, F. Wang, Z.Y. Gao, M. Tian, *Phys. Met.: Stat. Mech. Appl.* 514 (2019) 319–335.
- [87] D. Lv, D.Z. Zhang, M. Yang, F. Wang, J. Yu, *Superlattice. Microst.* 151 (2021), 106833.
- [88] D. B. Mitzi, O. Gunawan, T. K. Todorov, K. Wang and S. Guha, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells.* 95, 1421 (2011).
- [89] B. Shin, O. Gunawan, Y. Zhu, N. A. Bojarczuk, S. J. Chey and S. Guha, *Prog. Photovolt.* 21, 72 (2013).
- [90] V. A. Madiraju, K. Taneja, M. Kumar and R. Seelaboyina, *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* 27, 3152 (2016).
- [91] L. Choubrac, A. Lafond, C. Guillot-Deudon, Y. Moëlo and S. Jobic, *Inorg. Chem.* 51, 3346 (2021).
- [92] S. Schorr, *Sol. Energy. Mater. Sol. Cells.* 95, 1482 (2011).
- [93] A. Lafond, L. Choubrac, C. G. Deudon and S. Jobic, *J. Inorg. General Chem.* 638, 2571 (2012).
- [94] L. O. Brochway, *Z. Kristallogr. NCS.* 89, 434 (1934).
- [95] S. Schorr, *Thin Solid Films* 515, 5985 (2007).

- [96] X. Li, S. Wang, H. Liao, S. Yang, T. Wang, X. Liu, Q. Li and J. Li, *Opt. Mater.* 111, 110698 (2021).
- [97] K. S. Gour, O. P. Singh, A. K. Yadav, R. Parmar and V. N. Singh, *J. Alloy Compd.* 718, 231 (2017).
- [98] M. Nakashima, T. Yamaguchi, S. Yukawa, J. Sasano and M. Izaki, *Thin Solid Films* 621, 47 (2016).
- [99] K. J. Tiwari, R. Chetty, R. C. Mallik and P. Malar, *Solar Energy* 153, 173 (2017).
- [100] Z. Zao, G. Niehues, S. Funkner, E. Estacio, Q. Han, K. Yamamoto, J. Zhang, W. Shi, Q. Guo and M. Tani, *Appl. Phys. Lett.* 105, 231104 (2014).
- [101] W. Wang, M. T. Winkler, O. Gunawan, T. Gokmen, T. K. Todorov, Y. Zhu and D. B. Mitzi, *Adv. Energy Mater.* 4, 1301465 (2014).
- [102] M. H. Sayed, J. Schoneberg, J. Parisi and L. Gütay, *Mater. Sci. Semicond. Process.* 76, 31 (2018).
- [103] R. Prajapat and Y. C. Sharma, *Chalcogenide Lett.* 16, 565 (2019).
- [104] S. Padhy, R. Mannu and U. P. Singh, *Sol. Energy.* 216, 601 (2021).
- [105] D. M. T€obbens, G. Gurieva, S. Niedenzu, G. Schuck, I. Zizak and S. Schorr, *Acta Cryst. B* 76, 1027 (2020).
- [106] L. Sun, H. Shen, L. Hao and W. Wang, *Vaccum.* 187, 110098 (2021).
- [107] C. Persson, *J. Appl. Phys.* 107, 053710 (2010).
- [108] N. Beigom, M. Amiri and A. Postnikov, *Phys. Rev.* 82, 205204 (2010).
- [109] T. Gurel, C. Sevik and T. Cagin, *Phys. Rev.* 84, 205201 (2011).
- [110] X. He and H. Shen, *Physica B Condens. Matter.* 406, 4604 (2011).
- [111] Y. Zhao, D. Li and Z. Liu, *J. Alloys Compd.* 696, 86 (2017).
- [112] S. Kahloui, B. Belhorma, H. Labrim, M. Boujnah and M. Regragui, *Heliyon.* 6, e3713 (2020).
- [113] S. P. Kandare, M. N. Rao, S. S. Dahiwal, R. Rao, S. D. Dhole and S. L. Chaplot, *J. Phys. Chem. Solids* 150, 109819 (2021).
- [114] H. Ahmoum, M. S. Su'ait, G. Li, S. Chopra, M. Boughrara, Q. Wang, M. Kerouad and D. P. Rai, *Ind. J. Phys.* 95, 281 (2021).
- [115] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva and A.A. Firsov, *Science*, **306** 666 (2004)
- [116] Y. Liu, N.O. Weiss, X.D. Duan, H.C. Cheng, Y. Huang and X.F. Duan, *Nat. Rev. Mater.*, **1** 16042 (2016)

- [117] S. Manzeli, D. Ovchinnikov, D. Pasquier, O.V. Yazyev and A. Kis, *Nat. Rev. Mater.* **2** 17033 (2017)
- [118] K.S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T.J. Booth, V.V. Khotkevich, S.V. Morozov and A.K. Geim, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **102** 10451 (2005)
- [119] K.S. Novoselov, A. Mishchenko, A. Carvalho and A.H.C. Neto, *Science*, **353** 9439 (2016)
- [120] B. Xu and Y. Gogotsi, *Adv. Funct. Mater.*, **30** 2007011 (2020)
- [121] M. Gibertini, M. Koperski, A.F. Morpurgo and K.S. Novoselov, *Nat. Nanotechnol.* **14** 408 (2019)
- [122] K.S. Burch and D. Mandrus, J.G. Park, *Nature*, **563** 47 (2018)
- [123] B. Huang, M.A. McGuire, A.F. May, D. Xiao, P. Jarillo-Herrero and X. Xu, *Nat. Mater.*, **19** 1276 (2020)
- [124] S. Heguri and M. Kobayashi, *Chemical Physics Letters*, **490** 34-37 (2010)
- [125] F. Borondics, G. Oszlányi, G. Faigel and S. Pekker, *Solid state communications*, **127** 311-313 (2003)
- [126] E. Meirzadeh, A. M. Evans, M. Rezaee, M. Milich, C. J. Dionne, T. P. Darlington and X. Roy, *Nature*, **613** 71-76 (2023)
- [127] C. Morales, N. Kojima, Y. Ohshita, M. Yamaguchi, S. Nishi, G. García and A. Romero, *In Journal of Nano Research*, **28** 21-28 (2014)
- [128] D. P. Landau and K. Binder, *A guide to Monte Carlo simulations in statistical physics*. Published in the United States of America by Cambridge university press, New York, Date published: Novembre 2014. ISBN: 9781107074026.
- [129] W. Wang, H.J. Wu, P.N. Xie, J.H. Lv and Z. Peng, *Eur. Phys. J. Plus*, **135** 605(2020)
- [130] C.L. Chang, W. Wang, H. Ma, H. Huang, J.C. Liu and R.Z. Geng, *Commun. Theor. Phys.* **73** 095702 (2021)
- [131] T.H. Dong, X.D. Zhang, L.M. Yang and F. Wang, *Vacuum*, **191** 110349 (2021)
- [132] L. Sun, D. Lv, W. Wang, Z.Y. Gao and B.C. Li, *Phys. Scr.* **96** 075809 (2021)
- [133] W. Wang, L. Sun, Q. Li, D. Lv, Z.Y. Gao and T. Huang, *J. Magn. Magn. Mater.*, **527** 167692 (2021)
- [134] Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi and L. Bahmad, *Chin. J Phys.* **64** 295 (2020)
- [135] B. C. Li, D. Lv, W. Wang, T. L. Wang and F. Wang, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **560** 169607 (2022).

- [136] A. S. Erchidi Elyacoubi, R. Masrour, A. Jabar, *Solid State Communications*, **271** 39-43 (2018).
- [137] A. Kitanovski and P. W. Egolf. *Int. J. Refrig.* **29** 3–21 (2006)
- [138] F. Heusler, W. Starck, E. Haupt, *Magnetisch-chemische Studien, Verh. Dtsch. Phys. Ges.*, **5** (1903) 219.
- [139] G. Rogl, S. Ghosh, L. Wang, J. Bursik, A. Grytsiv, M. Kerber, E. Bauer, R. C. Mallik, X.Q. Chen, M. Zehetbauer and P. Rogl, *Acta Materialia*, **183** (2020) 285.
- [140] S. Idrissi, S. Ziti, H. Labrim, L. Bahmad, I. El Housni, R. Khalladi, S. Mtougui and N. El Mekkaoui, *Journal of Alloys and Compounds*, **820** (2020) 153373.
- [141] M. I. Khan, H. Arshad, M. Rizwan, S. S. A. Gillani, M. Zafar, S. Ahmed and M. Shakil, *Journal of Alloys and Compounds*, **819** (2020) 152964.
- [142] S. A. Khandy and J.D. Chai, *Journal of Applied Physics*, **127** (2020) 165102.
- [143] R. Djelti, A. Besbes and B. Bestani, *Optical and Quantum Electronics*, **52** (2020) 1.
- [144] Y. Zhang, W. Zhang, X. Yu, C. Yu, Z. Liu, G. Wu and F. Meng, *Materials Science and Engineering: B*, **260** (2020) 114654.
- [145] G. Forozani, A. A. Mohammad Abadi, S. M. Baizae and A. Gharaati, *Journal of Alloys and Compounds*, **815** (2020) 152449.
- [146] A. Ahmad, A.K. Das and S.K. Srivastava, *The European Physical Journal B*, **93** (2020) 1.
- [147] F. Dahmane, Y. Mogulkoc, B. Doumi, A. Tadjer, R. Khenata, S.B. Omran, D.P. Rai, G. Murtazag and D. Varshney, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **407** (2016) 167.
- [148] R. Paudel and J. Zhu, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **453** (2018) 10.
- [149] Dahmane, B. Doumi, Y. Mogulkoc, A. Tadjer, Deo Prakash, K.D. Verma, Dinesh Varshney, M.A. Ghebouli, S. Bin Omran and R. Khenata, *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, **29** (2016) 809.
- [150] R. Paudel and J. Zhu, *Vacuum*, **164** (2019) 336.
- [151] R. Paudel and J. Zhu, *Physica B: Condensed Matter*, **557** (2019) 45.
- [152] Z. Fadil, M. Qajjour, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad, and W. Ousi Benomar, *Physica B: Condensed Matter*, **564** (2019) 104.
- [153] M. Qajjour, N. Maaouni, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, W. Ousi Benomar and L. Bahmad, *Chinese Journal of Physics*, **63** (2020) 36.
- [154] M. Qajjour, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad and W. Ousi Benomar, *Integrated Ferroelectrics*, **212** (2020)120.

- [155] Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad and W. Ousi Benomar, *Solid State Communications*, **316-317** (2020) 113944.
- [156] J.M. Silveyra, E. Ferrara, D.L. Huber and T.C. Monson, *Soft magnetic materials for a sustainable and electrified world*. *Science* 362 (2018), pp. eaao0195.
- [157] R.S. Sundar and S.C. Deevi, *Soft magnetic FeCo alloys: alloy development, processing, and properties*. *Int. Mater. Rev* 50 (2005), pp. 157–192.
- [158] M.A. Milayaev, N.S. Bannikova, L.I. Naumova, V.V. Proglyad, E.I. Patrakov, N.P. Glazunov and V.V. Ustinov, *Effective Co-rich ternary CoFeNi alloys for spintronics application*. *J. Alloys Compd* 854 (2020), pp. 157171.
- [159] X. Li, J. Xiang, X. Zhang, H. Li, J. Yang, Y. Zhang, K. Zhang and Y. Chu, *Electrospun FeCo nanoparticles encapsulated in N-doped carbon nanofibres as self-supporting flexible anodes for lithium-ion batteries*. *J. Alloys Compd* 873 (2021), pp. 159703.
- [160] A.L. Kozlovskiy, I.E. Kenzhina and M.V. Zdorovets, *FeCo-Fe₂CoO₄/Co₃O₄ nanocomposites: phase transformations as a result of thermal annealing and practical application in catalysis*. *Ceram. Int* 46 (2020), pp. 10262–10269.
- [161] X. Cui, P. Ren, D. Deng, J. Deng and X. Bao, *Single layer graphene encapsulating nonprecious metals as high-performance electrocatalysts for water oxidation*. *Energy Environ. Sci* 9 (2016), pp. 123–129.
- [162] N. Mansouri, N.B. Cherief, E. Chainet, F. Charlot, T. Encinas, S. Boudinar, B. Benfedda, L. Hamadou and A. Kadri, *Electrodeposition of equiatomic FeNi and FeCo nanowires: structural and magnetic properties*. *J. Magn. Mater* 493 (2020), pp. 165746.
- [163] K. Akedo, T. Ishizaki and K. Yatsugi, *Structural and magnetic properties of size-controlled Fe–Ni nanoparticles synthesized by diffusing Fe atoms into preformed Ni nanoparticles*. *J. Nanoparticle Res* 23 (2021), pp. 1–12.
- [164] E.Y. Kaniukov, A.E. Shumskaya, A.L. Kozlovskiy, M.V. Zdorovets, A.V. Trukhanov, T.I. Zubar, D.I. Tichkevich, D.A. Vinnik, D.R. Khairtadinova, S.A. Evstigneeva, V.S. Rusakov, B.Z. Rameev and L.V. Panina, *Structure and magnetic properties of FeCo nanotubes obtained in pores of ion track templates*. *Nano-Struct. Nano-Objects* 26 (2021), pp. 100691.
- [165] A.E. Shumskaya, A.L. Kozlovskiy, M.V. Zdorovets, S.A. Evstigneeva, A.V. Trukhanov, D.A. Vinnik, E.Y. Kaniukov and L.V. Panina, *Correlation between structural and magnetic properties of FeNi nanotubes with different lengths*. *J. Alloys Compd* 810 (2019), pp. 151874.

- [166] T. Sahdane, M. Qajjour, N. Maaouni, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad and W.O. Benomar, Thermal and magnetic property behaviors of a binary alloy borophene structure: A Monte Carlo study. *Mater. Today Commun* 25 (2020), pp. 101508.
- [167] A. Shaabani and R. Afshari, *J. Colloid Interface Sci.* 510, 384 (2018).
- [168] P. Chen, N. Li, X. Chen, W. J. Ong and X. Zhao, *2D Mater.* 5, 014002 (2017).
- [169] C. Zhang, X. L. Hao, C. X. Wang, N. Wei and T. Rabczuk, *Sci. Rep.* 7, 41398 (2017).
- [170] J. Ren, C. Zhang, J. Li, Z. Guo, H. Xiao and J. Zhong, *Phys. Lett. A* 380, 3270 (2016).
- [171] L. B. Drissi and S. Zriouel, *J. Stat. Meca. Theorie Exp.* 5, 053206 (2016).
- [172] O. V. Yazyev, *Rep. Prog. Phys.* 73, 056501 (2010).
- [173] X. Y. Wang, X. Yao and K. Müllen, *Sci. China Chem.* 62, 1099 (2019).
- [174] Y. Zhu, B. Liang, W. Xia, M. Gao, H. Zheng, J. Chen, Y. Chen and M. Tian, *Environ. Pollut.* 294, 118620 (2022).
- [175] X. Zhang, X. Wang, X. Zhao, Z. Tang, T. Zhao, M. Teng, W. Liang, J. Wang and L. Niu, *J. Clean. Prod.* 331, 129811 (2022).
- [176] J. P. Hill, W. Jin, A. Kosaka, T. Fukushima, H. Ichihara, T. Shimomura and T. Aida, *Science* 304, 1481 (2004).
- [177] W. Pisula, A. Menon, M. Stepputat, I. Lieberwirth, U. Kolb, A. Tracz and K. Müllen, *Adv. Mater.* 17, 684 (2005).
- [178] J. Wu, M. D. Watson, L. Zhang, Z. Wang and K. Müllen, *J. Am. Chem. Soc.* 126, 177 (2004).
- [179] D. Chen, J. Akroyd, S. Mosbach, D. Opalka and M. Kraft, *Combust. Flame* 162, 486 (2015).
- [180] P. Mocchi, R. Cardia and G. Cappellini, *J. Phys. Conf. Ser.* 956, 012020 (2018).
- [181] P. Mocchi, R. Cardia, A. Bosin and G. Cappellini, *J. Phys. Conf. Ser.* 1548, 012028 (2020).
- [182] M. Buragohain, A. Pathak, P. Sarre, T. Onaka and I. Sakon, *Planet. Space Sci.* 133, 97 (2016).
- [183] E. V. Bogdanov, B. B. Kovalev, L. A. Skipetrova, A. V. Knotko, A. V. Emelyanov, A. N. Taldenkov and V. E. Slynko, *J. Alloys Compd.* 893, 162330 (2022).
- [184] M. Arucu, Muhammet. *Turk. J. Phys.* 41, 20 (2017).
- [185] M. Reza, M. Mohammad, A. Kashi and M. Ghaffari, *J. Alloys Compd.* 894, 162286 (2022).
- [186] Q. Yang, Z. Zhou, L. Wang, H. Zhang, Y. Cheng, Z. Hu, B. Peng and M. Liu, *Adv. Mater.* 30, 1800449 (2018).

- [187] R. L. Serrano, D. J. Garcia, R. P. D. Betancourth, N. S. Amaral, N. S. Camilo, E. E. Rams, L. A. Ortellado, G. Z. and P. G. Pagliuso, *J. Magn. Magn. Mater.* 405, 304 (2016).
- [188] J. Strečka, M. Jaščur, M. Hagiwara, Y. Narumi, J. Kuchar, S. Kimura and K. Kindo, *J. Phys. Chem. Solids.* 66, 1828 (2005).
- [189] A. Mhirech, S. Aouini, A. Alaoui-Ismaili and L. Bahmad, *J. Supercond. Novel Magn.* 30, 3189 (2017).
- [190] M. Zare, F. Parhizgar and R. Asgari, *J. Magn. Magn. Mater.* 456, 307 (2018).
- [191] T. Sahdane, A. Mhirech, L. Bahmad and B. Kabouchi, *Int. J. Mod. Phys. B* 32, 1850031 (2018).
- [192] Z. Fadil, M. Qajjour, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad and W. O. Benomar, *J. Magn. Magn. Mater.* 491, 165559 (2019).
- [193] P. Mathe and E. Novak, *J. Compl.* 23, 673 (2007).
- [194] T. Kasuya, *Theor. Phys.* 16, 45 (1956).
- [195] K. Yosida, *Phys. Rev.* 106, 893 (1957).
- [196] F. Y. Wu, *Reviews of modern physics*, 54 (1982) 235.



Dilution Concentration Effects on Magnetic Properties of Three Nano-Heusler Ru_2MnX ($X = \text{Nb}, \text{Ta}, \text{V}$) Compounds: Monte Carlo Study

N. Saber¹ · Z. Fadil¹ · A. Mhirech¹ · B. Kabouchi¹ · L. Bahmad¹ · W. Ousi Benomar¹

Received: 20 February 2021 / Accepted: 23 April 2021

© The Author(s), under exclusive licence to Springer Science+Business Media, LLC, part of Springer Nature 2021

Abstract

The paper discusses the dilution concentration effect on the magnetic properties of the three nano-Heusler Ru_2MnX ($X = \text{Nb}, \text{Ta}, \text{V}$) compounds using the Blume–Capel Ising model. The studied nano-Heusler compounds are composed of a mixed atom spins. In this work, we use Monte Carlo simulations under the Metropolis algorithm. The diluted effects on the magnetic properties of the three nano-Heusler compounds have been explored. Antiferromagnetic to superparamagnetic phase was well examined around the blocking temperature. Besides, the total magnetizations of each nano-Heusler compound behaviors as a function of the temperature and the external magnetic field by varying the dilution concentration have been investigated.

Keywords Blocking temperature · Dilution concentration · Magnetic hysteresis cycles · Magnetic properties · Monte Carlo simulations · Nano-Heusler compounds

1 Introduction

Since the discovery of Heusler alloys [1], the substances in these alloys have attracted the attention of scientific researchers due to the wide variety of their applications [2–9]. Hence, technical and experimental attempts have been made to discover new Heusler alloys such as the structural, electronic and magnetic properties of Fe_2 -based full-Heusler alloys [10], the co-based equiatomic quaternary Heusler alloys [11], the half-metallic behavior of Co_2MnZ ($Z = \text{Al}, \text{Ge}, \text{Si}, \text{Ga}$) full-Heusler compounds [12], the investigation of the half-metallicity and magnetism of bulk and (111)-surfaces of Fe_2MnP full-Heusler alloy [13] and the study of half-metallicity

✉ Z. Fadil
fadilzakaria604@gmail.com

¹ Laboratoire de Matière Condensée Et Sciences Interdisciplinaires (LaMCScl), Faculty of Sciences, Mohammed V University, P.O. Box 1014, Rabat, Morocco

Magnetic Behaviors of the Kesterite and the Stannite Nanostructures: Monte Carlo Study

N. Saber*, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad and W. Ousi Benomar

*Laboratoire de Matière Condensée et Sciences
Interdisciplinaires (LaMCSi), Faculty of Sciences
P. O. Box 1014, Mohammed V University in Rabat, Morocco
sabernouredine68@gmail.com

Received 20 May 2021
Accepted 3 March 2022
Published 29 April 2022

In this work, the Monte Carlo simulations have been performed to investigate the magnetic properties of the kesterite and the stannite nanostructures with mixed spins. The Blume–Capel model has been adopted to study the $\text{Cu}_2\text{ZnSnSe}_4$ nanostructures. Furthermore, we have examined different transitions as a function of the temperature, the crystal field, and the exchange coupling interactions. Also, the behavior of the magnetizations and magnetic susceptibilities are investigated as a function of the different physical parameters. A comparison of the magnetic properties of each nanostructure has been studied and discussed.

Keywords: Kesterite; stannite; nanostructures; magnetic properties; Monte Carlo simulations; magnetization; susceptibility; transition temperature.

1. Introduction

In the last decade, the copper-based chalcogenide quaternary compounds $\text{Cu}_2\text{-II-IV-(S,Se)}_4$ (CZTSSe: Copper Zinc Tin Sulfide or Selenide) have received a lot of coverage, which has a similar structure to Cu (In, Ga) (S, Se)₂ (CIGS) and is composed of the earth-abundant and nontoxic elements such as Cu, Zn, and Sn.^{1–3} The compound (CZTSSe) presents two structures: kesterite (space group I-4) and the stannite (space group I-42m).^{4,5} These compounds are tetragonal crystal structures derived from ZnS sphalerite, and their names are derived from a general formula of natural minerals $\text{Cu}_2\text{ZnSn(S,Se)}_4$.⁶ The structures have the same atoms at tetrahedral sites, while the difference lies in the positions of the Cu and Zn cations in each structure.^{1,5,7,8} Besides,

experimentally, there are several works that have used a variety of techniques for synthesizing the CZTSe material such as magnetron sputtering, thermal evaporation, e-beam evaporation, sol-gel, hydrazine solution, spray pyrolysis, solid-state reaction and evaporated CdS layer.^{9–16} In addition, it has a good bandgap ($E_g \sim 1\text{--}1.5\text{ eV}$) and a high absorption coefficient in the visible range of the electromagnetic spectrum for solar energy applications.^{17,18} In addition, researchers have recently studied elastic vibrational, mechanical, thermoelectric, structural, electronic, electric and optical properties of $\text{Cu}_2\text{ZnSn(S,Se)}_4$ with density functional theory (DFT).^{19–27}

Moreover, the magnetic properties of different structures or nanostructures have been studied using Monte Carlo simulations and have given

*Corresponding author.



Magnetic properties of the ternary $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$ alloy: Monte Carlo simulations

N. Saber, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad & W. Ousi Benomar

To cite this article: N. Saber, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad & W. Ousi Benomar (2022): Magnetic properties of the ternary $\text{FeCo}_x\text{Ni}_{1-x}$ alloy: Monte Carlo simulations, Philosophical Magazine, DOI: [10.1080/14786435.2022.2079748](https://doi.org/10.1080/14786435.2022.2079748)

To link to this article: <https://doi.org/10.1080/14786435.2022.2079748>



Published online: 30 May 2022.



Submit your article to this journal [↗](#)



Article views: 7



View related articles [↗](#)



View Crossmark data [↗](#)

Full Terms & Conditions of access and use can be found at
<https://www.tandfonline.com/action/journalInformation?journalCode=tphm20>



Magnetic Properties and Compensation Temperature Behaviors in the Hexacene-like Nanostructure: A Monte Carlo Study

N. Saber¹ · Z. Fadil¹ · A. Mhirech¹ · B. Kabouchi¹ · L. Bahmad¹ · W. Ousi Benomar¹

Received: 29 December 2021 / Accepted: 29 August 2022

© The Author(s), under exclusive licence to Springer Science+Business Media, LLC, part of Springer Nature 2022

Abstract

In this work, we study the ground state phase diagrams and the magnetic properties of the mixed spins ($S=1$, $\sigma=7/2$) of the Hexacene-like nanostructure. In the first step, the ground state phase diagrams have been established to show the more stable configurations corresponding to different physical parameters. Besides, the Monte Carlo simulations are used to investigate the effects of the temperature, the exchange coupling interactions, the crystal field, and the external magnetic field on the magnetization. Moreover, the hysteresis cycle behaviors have been investigated. It is found that the studied system exhibits two compensation temperatures ($T_{\text{comp}1}$; $T_{\text{comp}2}$) which depend on the exchange coupling parameters and the external magnetic field.

Keywords Magnetic Hexacene Nanostructure · Monte Carlo simulations · Compensation temperature · Exchange coupling interaction · Phase diagrams · Hysteresis cycle

1 Introduction

The acenes or poly-acenes are a group of organic compounds ranked as polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) which are obtained by the continuous and linear fusion of the benzene cycles, where their general molecular formula is $C_{4n+2}H_{2n+4}$ [1]. They are molecules made of atoms of carbon and hydrogen. The acenes have attracted much attention from physical, organic chemists and materials scientists for their fascinating properties and potential applications in organic electronics and optoelectronics [2, 3]. The research literature on the theory of acenes is extremely rich. Furthermore, the Hexacene structure with the formula $C_{26}H_{16}$

✉ N. Saber
sabemoureddine68@gmail.com

¹ Laboratoire de Matière Condensée Et Sciences Interdisciplinaires (LaMCScl), Faculty of Sciences, Mohammed V University in Rabat, 1014 Rabat, Morocco

Magnetic Properties and Compensation Temperature of a Mixed Monolayer Coronene-Like Nanostructure: Monte Carlo Study

Z. Fadil*, N. Saber, H. Eraki, A. Mhirech, B. Kabouchi and L. Bahmad
Laboratoire de Matière Condensée et Sciences Interdisciplinaires (LaMCSi)
Faculty of Sciences. P.O.Box 1014, Mohammed V University in Rabat, Morocco
*fadilzakaria604@gmail.com

Received 13 April 2022

Accepted 2 August 2022

Published 31 August 2022

In this study, the ground-state phase diagrams and magnetic properties of mixed spin ($S=1$, $\sigma=7/2$) of the monolayer coronene-like nanostructure have been investigated using Monte Carlo simulations (MCS) in the frame of the Blume Capel model. In the first part, ground-state phase diagrams have been analyzed in order to show the more stable configurations of spins corresponding to various planes. In addition, MCS is applied to study the behavior of the compensation and blocking temperatures by varying the exchange coupling interaction values. Finally, the hysteresis cycle behaviors have been investigated for selected values of exchange coupling parameters, temperature and crystal field. The theoretical results obtained in this study can enrich the magnetic properties of nanosystems and pave the way for researchers to experimentally study monolayer coronene-like nanostructure for future applications in nanotechnology.

Keywords: Monolayer coronene-Like nanostructure; magnetic properties; phase diagrams; Monte Carlo simulations; compensation temperature; hysteresis cycles.

1. Introduction

Recently, two-dimensional (2D) materials have been developed extensively in the field of scientific research. These materials are with important characteristics and interesting applications.^{1–4} Several scientific studies have been based on the materials like graphene and graphite.^{5–7} Coronene belongs to the class of polycyclic aromatic hydrocarbons composed of nonmagnetic atoms, namely carbon and hydrogen, which have important applications in nanotechnology.^{8–10} It is considered one of the two-dimensional materials having reports similar to those of the carbon atoms of graphite or

graphene.^{11–14} This material has been synthesized using several approaches including annihilation between two aryl units, i.e., Diels–Alder reactions of maleic anhydride, and ruthenium-catalyzed annihilation of aryl and alkynyl units.^{15–17} This structure has several potential applications in electronic devices, semiconductors and solar cells.^{18,19} Coronene is a source of infrared emission of interstellar matter.^{20,21} Besides, ferrimagnetic systems are studied to explore the compensation temperature (T_{comp}) behavior, which results in the cancelation of the total magnetization of the system, T_{comp} has been found in two-dimensional mixed systems.^{22–27}

*Corresponding author.

Dielectric Properties of Ovalene-Like Nanostructure with RKKY Interactions: Monte Carlo Study

Z. Fadil*, N. Saber, A. Mhirech, B. Kabouchi and L. Bahmad
*Laboratoire de Matière Condensée et Sciences
Interdisciplinaires (LaMCSi)
Faculty of Sciences, P.O. Box 1014
Mohammed V University in Rabat, Morocco
fadilzakaria604@gmail.com

Received 11 April 2022
Accepted 23 November 2022
Published 27 December 2022

In this study, we investigated the dielectric properties of ovalene-like nanostructure with RKKY (Ruderman–Kittel–Kasuya–Yoshida) interactions, using Monte Carlo simulations. Nanosystem consists of an ovalene-like nanostructure with mixed spins σ -7/2 and S-1, separated by non-electric layers (NEL). We investigated the effect of the non-electric layers, external longitudinal electric field and ferrielectric exchange coupling on polarization and dielectric susceptibility of the nanostructure. We find that the transition temperature is affected by an increase in the number of non-electrical layers. These results can enrich the dielectric properties of ovalene-like nanostructure for future nanotechnology applications.

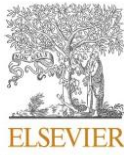
Keywords: Monte Carlo simulations; ovalene-like nanostructure; dielectric properties; transition temperature; RKKY interactions.

1. Introduction

In recent years, two-dimensional materials have been the focus of several scientific studies. The deployment of these materials which are composed of a monolayer of atoms such as graphene, graphyne and black phosphorus structures, has attracted considerable attention because of their potential applications, and next-generation spintronic devices.^{1–7} In addition, many studies scientific researches have been based on compound called: polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH).^{8,9} Indeed, these molecules have been used in nanotechnology.^{10–12} Ovalene (chemical formula $C_{32}H_{14}$) is one of these

compounds, which consists of 10 fused benzene rings. Chen *et al.* used molecular dynamics simulations to investigate the behavior of ovalene nanostructure during fusion.¹³ In addition, Mocci *et al.* reported a computational study on graphene nanostructures, focusing on coronene and ovalene molecules and their Si-substituted counterparts to evaluate the effects of chemical modifications using density functional theory (DFT).¹⁴ Likewise, they performed a comparative numerical study of the optoelectronic properties of these molecules after BN substitution using density functional theory and time-dependent DFT calculations.¹⁵ In addition, a

*Corresponding author.



Magnetic properties and thermal behavior of the monolayer Rubrene-like nano-island: Monte Carlo simulations

N. Saber^{*}, Z. Fadil, A. Mhirech, B. Kabouchi, L. Bahmad

Laboratoire de Matière Condensée et Sciences Interdisciplinaires (LaMCSel), Faculty of Sciences, P.O.Box 1014, Mohammed V University in Rabat, Morocco

ARTICLE INFO

Communicated by Asgari Reza

Keywords:

Rubrene-like nano-island
Monte Carlo simulations
Compensation temperature
Exchange coupling interactions

ABSTRACT

The magnetic properties of a mixed Rubrene-like nano-island have been extensively investigated using Monte Carlo simulations (MCs) using the Metropolis algorithm in the context of the Blume Capel model. The ground state phase diagrams have been established to display the more stable spin configurations. The effects of various physical parameters on compensation and transition temperatures have been studied. Additionally, triple loops have been found by exploring the hysteresis cycles, which is useful in many applications in multistate memory systems.

1. Introduction

Recently, the organic semiconductors have attracted enormous attentions due to their great potential applications in optoelectronic devices, organic light-emitting diodes (OLEDs), organic field-effect transistors (OFETs), organic transistors and organic solar cells (OSCs) [1–5]. Furthermore, the Rubrene with formula ($C_{42}H_{20}$, 5, 6, 11, 12 - tetraphenyl naphthalene) is one of the most researched organic semi-conductor materials for their remarkable charge carry mobility and luminous efficiency [6–10]. In fact, several studies have been performed to show all the properties of the Rubrene structure experimentally and theoretically.

Experimentally, researchers have conducted many interesting studies on the synthesis of Rubrene using different techniques. Ruidong et al. [11] prepared the Rubrene: MoO_3 film by the thermal evaporation technique. It has been found that the hole concentration and the hole carrier mobility are enhanced. Recently, Sartag et al. [12] have prepared the organic-inorganic heterostructure (OIHs) based on organic Rubrene and inorganic topological insulator Bi_2Se_3 by using simple physical vapor deposition. They have found that these films are suitable candidates for the fabrication of light-performance organic-inorganic heterostructure photodetectors (OIHPDs). In addition, Kenta et al. [13] have measured the phonon dispersion of the organic semiconductor Rubrene by the inelastic x ray scattering at room temperature. Thereby, in theory, researchers have also investigated in detail the photoelectric, the electronic, the optical, the transport, the elastic and the mechanical

properties of Rubrene based on the density functional theory (DFT) calculations [14–19]. On the other hand, Al-muntaser et al. [20] have studied the role of the Rubrene semiconductor additive for reinforcing the optical and structural properties of the polyvinyl alcohol films (PVA) towards optoelectronic applications. Moreover, Collin et al. [21] have investigated the magnetic field effect on singlet-exciton fission to demonstrate spatial imaging of magnetic fields in a thin film of Rubrene. Besides, the magnetic properties of different structures have recently been studied using Monte Carlo simulations (MCs) such as borophene nanoribbons with core-shell [22], Graphene-Like Nanoribbon [23], a checkerboard square [24] on honeycomb [25] and Tri-layer Graphyne-Like Structure [26]. Moreover, diverse Ising models have been applied to computational modeling to predict magnetic phenomena. Shi et al. studied the magnetism of a Kagome-like nanoparticle [27], a bilayer graphene-like [28] by approximate method called effective-field theory (EFT) with correlations. In addition, this method has been successfully proposed by Wang et al. [29] in order to examine the magnetic properties of the double-layer structure of graphyne-like.

On the other hand, it is important to note that the Ising model is a classical model that has been used extensively to examine ferroelectric or ferrimagnetic systems, such as the anti-ferroelectric/ferroelectric $BiFeO_3/YMnO_3$ bilayer system [30], the Gd_2O_3 nanorods/nanowire [31], the monolayer nano-graphyne structure [32] and the ferrielectric nanowires [33]. From the perspective of scientific research or technology, the study of the Ising systems is crucial. Furthermore, a significant amount of attention has been shown in the mixed-spin (1, 7/2) Ising

^{*} Corresponding author.

E-mail address: sabernouredline68@gmail.com (N. Saber).

<https://doi.org/10.1016/j.ssc.2023.115084>

Received 27 December 2022; Received in revised form 19 January 2023; Accepted 21 January 2023

Available online 25 January 2023

0038-1098/© 2023 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1
2
3
4
5
6 **Magnetic properties and magnetocaloric effects of the**
7 **graphullerene-like 4-(Mg₄C₆₀) nanostructure: A Monte Carlo study**
8
9

10 N. Saber*[‡], S. Zriouel[†], A. Mhirech*, B. Kabouchi*, L. Bahmad* and Z. Fadil*

11 *Laboratory of Condensed Matter and Interdisciplinary Sciences (LaMCS*I*),
12 Research Unit Labelled CNRST, URL-CNRST-17, Faculty of Sciences,
13 P. O. Box 1014, Mohammed V University, Rabat, Morocco

14 [†]Faculty of Sciences and Technology (FST), CADI AYYAD University,
15 Marrakech, Morocco

16 [‡]sabernouredine68@gmail.com

17 Received 12 April 2023

18 Revised 10 May 2023

19 Accepted 11 June 2023

20 Published

21 This work presents a study of the magnetic and magnetocaloric properties of mixed spins
22 ($\sigma = 1$, $S = 3/2$) in a Graphullerene-like nanostructure. Monte Carlo simulations (MCs) were

23 conducted using the Metropolis algorithm in the Blume-Capel model. The ground state phase
24 diagrams were established and illustrated for different physical parameters. Additionally, the
25 corresponding magnetizations, susceptibilities, specific heat, Binder cumulant, magnetic and
26 change entropies were examined versus temperature. The critical temperature was determined,
27 and hysteresis cycles were presented for specific physical parameter values. The results suggest
28 that the structure shows potential as a candidate for magnetic refrigeration.

29 *Keywords:* Graphullerene-like 4-(Mg₄C₆₀) nanostructure; magnetic properties; magnetocaloric
30 properties; phase diagrams; Monte Carlo simulations; exchange coupling interaction; hysteresis
31 cycle; magnetic entropy change.

32 **1. Introduction**

33 Since the development of graphene, the first two-dimensional material,¹ researchers
34 have been attracted to the intrinsic properties of 2D materials. The discovery of
35 other 2D materials²⁻⁶ including those with intriguing magnetic properties, has
36 further fueled research in this field.⁷⁻⁹ Our research focuses on a type of 2D crystalline
37 C₆₀ polymer called Graphullerene, which bridges molecular and extended carbon
38 materials. This structure consists of interconnected fullerene subunits arranged in a
39 hexagonal pattern, forming a molecular sheet. One of the most studied fulleride
40 polymers is the magnesium fulleride with the formula Mg₄C₆₀. The authors of this
41 study have conducted numerous experimental studies on the synthesis and
42

43 [‡]Corresponding author.

Monte Carlo Study on the Magnetic Properties of the Silicene–Germanene Junction-Like Nanostructure

H. Eraki ^{*}, N. Saber , Z. Fadil , A. Mhirech , B. Kabouchi 
and L. Bahmad 

*Laboratoire de Matière Condensée et Sciences
Interdisciplinaires (LaMCSi)
Faculty of Sciences, P.O. Box 1014
Mohammed V University, Rabat, Morocco
hicham_eraki@um5.ac.ma

Received 23 December 2022

Accepted 24 July 2023

Published

In this work, we study the ground state phase diagrams and the magnetic properties of the mixed spins ($S = 3/2$, $G = 5/2$) of the silicene–germanene junction-like nanostructure. In the first step, the ground state phase diagrams have been established to show the more stable configurations corresponding in different physical parameter planes. Besides, we have used the Monte Carlo simulations in order to study the magnetization and the susceptibility as a function of the temperature and the exchange coupling interaction and external magnetic field effects. Finally, we have presented and discussed the hysteresis cycles for specific values of the studied physical parameters.

Keywords: Magnetic silicene–germanene junction-like nanostructure; phase diagrams; Monte Carlo simulations; exchange coupling interaction; hysteresis cycle.

1. Introduction

Years after the discovery of the graphene, a monoatomic layer of carbon, the two-dimensional (2D) materials of group IVA arranged in a honeycomb lattice (including silicene Si, germanene Ge, stanene Sn, and plumbene Pb) have been a major research focus of scientists around the world due to their remarkable properties.^{1–3} These crystals are among the most promising materials for the electronic and the mechanical devices,⁴ for Li-ion battery,⁵ electronics, transistors (FET), junctions⁶ and

solar cells.⁷ The Silicene (Si) is the equivalent of graphene; it has a weakly deformed honeycomb structure.⁸ In 1994, Takeda and Shiraishi theoretically studied the Silicene and the Germanene analogues of the graphite and discussed the planarity of the 2D mono-layers.⁹ Later, the single layer of the Si semiconductor was given the name Silicene.¹⁰ Until now, the method to successfully synthesize Silicene is epitaxial growth on some substrates, including Ag (111),¹¹ Ir(111),¹² MoS₂,¹³ Ru(0001)¹⁴ and graphite.¹⁵ In addition, from the theoretical perspective, Bohayra *et al.* investigated the mechanical

^{*}Corresponding author.

AQ: Please check and verify whether title of the article, sequence and spelling of author names, placement of given name and surname in each author name, linked ORCID identifiers, email addresses, affiliation details, symbols linked with authors and affiliations, location details (city names, postcodes, country names), indication of corresponding author, spellings are correct and complete as given and set.
AQ: Please check and ensure whether keywords/codes, left running head on even pages (i.e. last name of author(s)), right running head on odd pages (i.e. shortened version of article's full title), all section headings and its hierarchy, in-text citations/call outs/cross-references, footnotes, equations, tables, figures, artwork images (in good quality, not blurred), part labels and its descriptions, captions, declaration statements, nomenclature, supplementary materials, appendix, funding, references are correct as given and set. Please verify that all figures, tables, and equations are correctly labelled and referenced.
AQ: Please check throughout the text for any spelling errors/typographical errors.

SPIN
(2024) 2450007 (8 pages)
© World Scientific Publishing Company
DOI: 10.1142/S2010324724500073

1
2
3
4
5
6
7
8
9



Investigating the Dielectric Behavior of Zethrene-Inspired Nanoscale System: Monte Carlo Approach

6
7
8
9
10
11
12
13

AQ: Please provide ORCID ID for each author in the affiliation section using the following format: Author Name as given in affiliation followed by ORCID ID (format example: Zhanhui Peng <https://orcid.org/0000-0003-1000-258X>). Please be aware that each http address should be in correct and valid format without errors and should lead to correct webpage and that the ORCID information is kept public. Also, please ensure that the same ORCID ID is not repeated.

H. Eraki*, N. Saber*, Z. Fadil*[¶], A. Mhirech*, B. Kabouchi*,
L. Bahmad*, Steve Karam[†], Chaitany Jayprakash Raorane[‡]^{||},
Abdulrahman A. ALSayyar[§] and Seong-Cheol Kim[‡]

**Faculty of Sciences
Laboratoire de Matière Condensée et Sciences Interdisciplinaires (LaMCSi)
Unité de Recherche Labellisée CNRST
URL-CNRST-17, Mohammed V University in Rabat
P.O. Box 1014, Morocco*

*†College of Engineering and Technology
American University of the Middle East
Egaila 54200, Kuwait*

*‡School of Chemical Engineering
Yeungnam University, Gyeongsan 38541
Republic of Korea*

*§Department of Radiologic Technology
College of Applied Medical Science, Qassim University
Buraydah 51452, Saudi Arabia*

*¶fadilzakaria604@gmail.com
||chaitanyaraorane22@ymu.ac.kr*

AQ: Kindly provide the first affiliation detail in English.
AQ: Kindly provide the department details for 2nd and 3rd affiliations.

23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51

Received 16 October 2023
Accepted 13 April 2024
Published

21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51

The dielectric properties of a mixed Zethrene-inspired nanoscale system ($S_z^z-1, \sigma_k^z-5/2$) have been analyzed in detail using the Monte Carlo approach (MCa) in this study. First, the most stable configurations in different planes were investigated. Then, the influences of the physical factors, namely the coupling interaction factor, on the thermal behaviors of the polarization and the susceptibility of the studied nanostructure have been examined for nonzero temperatures and fixed external electric field values. It was found that the obtained transition temperature point relies weakly on the coupling interaction. Finally, the effects of the physical factors on the electric hysteresis cycles were discussed.

Keywords: Zethrene-inspired nanoscale system; Monte Carlo approach; compensation temperature; stable spin configurations; hysteresis loops.

^{¶||}Corresponding authors.



Study of the Blume–Emery–Griffiths Model for Mixed Carbon-Like Nanotube: Monte Carlo Study

Z. Fadil¹ · N. Saber¹ · H. Eraki¹ · A. Mhirech¹ · B. Kabouchi¹ · L. Bahmad¹

Received: 17 September 2022 / Accepted: 8 November 2022 / Published online: 2 December 2022
© The Author(s), under exclusive licence to Springer Science+Business Media, LLC, part of Springer Nature 2022

Abstract

Monte Carlo study under the Metropolis algorithm is performed to investigate the ground state phase diagrams and hysteresis electric cycles by using the Blume–Emery–Griffiths (BEG) model with the mixed spins ($S=1$, $\sigma=3/2$). Firstly, the ground state phase diagram has been established to show the more stable configurations corresponding to the physical parameter E_z/J_C . Moreover, the hysteresis electric cycle behaviors have been investigated by varying temperature, exchange coupling interactions, crystal field and biquadratic parameters of the carbon-like nanotube. It is found that the increase in the crystal field and the biquadratic exchange parameters decrease the surface of the loops leading to the apparition of the polarization plateaus.

Keywords Carbon nanotube · Dielectric properties · Monte Carlo simulations · Hysteresis electric cycles · Blume–Emery–Griffiths Model

1 Introduction

Currently, nanotechnology has become one of the richest fields of scientific research, focusing its growing interest on different nano-magnetic materials due to their unique magnetic properties that have enabled multiple applications [1, 2]. Moreover, magnetic nanostructures are at the base of the latest scientific research [3–5]. Among the nanostructures that have attracted the attention of researchers, there is the structure of nanotubes [6, 7]. Magnetic nanotubes are important nanostructures for researchers because of their exceptional characteristics [8–10]. Several techniques have been discovered so far for producing carbon nanotubes. Such techniques for producing carbon nanotubes

✉ Z. Fadil
fadilzakaria604@gmail.com

¹ Laboratoire de Matière Condensée et Sciences Interdisciplinaires (LaMCSdI), Unité de recherche labellisée CNRST, Faculty of Sciences, Mohammed V University, P.O.Box 1014, Rabat, Morocco



The effect of vacant sites on the magnetic properties of a germanene nanostructure: Monte Carlo simulations

N. Saber · H. Eraki · Z. Fadil · A. Mhirech ·
B. Kabouchi · L. Bahmad · W. Ousi Benomar ·
Chaitany Jayprakash Raorane

Received: 1 May 2023 / Accepted: 2 October 2023
© The Author(s), under exclusive licence to Springer Nature B.V. 2023

Abstract In this paper, we investigated the effect of vacant sites on the magnetic properties of the germanene nanostructure. The Blume-Capel model was utilized to investigate the nano-system with the spin- $7/2$. Moreover, we employed Monte Carlo simulations (MCS) with the Metropolis algorithm to explore how the presence of vacant sites influences the magnetic properties under varying parameters such as temperature, exchange coupling interaction, crystal field, and external magnetic fields. It has been found that the transition from the ferromagnetic phase to the superparamagnetic one takes place more quickly by increasing the value of the vacancy number (VN). Besides, increasing the parameter VN leads to a decrease in the remanent magnetization while the coercive field remains constant. These findings can improve the examined system for potential nanotechnology applications.

Keywords Germanene nanostructure · Magnetic properties · Monte Carlo simulations · Vacant sites · Critical temperature · Magnetic hysteresis cycles

Introduction

Nanomaterials have many applications in various fields: catalyst that supports in the automotive industry, ceramic membranes, fuel cells, photocatalysis, propellants and explosives, scratch-resistant coatings, structural ceramics and thermal spray coatings [1–4]. Also, the use of 2D materials could be advantageous for a huge variety of applications in nanotechnology [5, 6] and in-memory technology [7]. After the successful synthesis of silicene followed by a wave of studies of new two-dimensional (2D) elementary materials beyond graphene, an intimidating quest was obtained for germanene. The graphene analog made from germanium, while its fully hydrogenated form, germanane, was made by using a wet chemistry method [8–12]. Germanium-based materials such as a germanene structure, have attracted wide attention since their high carrier mobility [13, 14]. The vacancies frequently caused by ions or electrons [15, 16] have a considerable effect on the electronic and mechanical properties of 2D materials [17]. A study on the vacancy of the silicene structure shows that a single gap can modify the physical properties of the silicene from semi-metallic to metallic structure [18, 19]. On the other hand, Monte Carlo simulations

N. Saber (✉) · H. Eraki · Z. Fadil · A. Mhirech ·
B. Kabouchi · L. Bahmad · W. O. Benomar
Laboratory of Condensed Matter and Interdisciplinary
Sciences (LaMCSi). Research Unit Labelled CNRST,
URL-CNRST-17, Faculty of Sciences, Mohammed V
University, P.O.Box 1014, Rabat, Morocco
e-mail: sabernouredine68@gmail.com

C. J. Raorane (✉)
School of Chemical Engineering, Yeungnam University,
Gyeongsan 38541, Republic of Korea
e-mail: chaitanyaraorane22@ynu.ac.kr

Published online: 20 October 2023

Springer



Monte Carlo Simulations Revealing Ground State Characteristics and Magnetic Hysteresis in Perylene-Like Nanostructure

Z. Fadil¹ · Rajesh Haldhar² · Chaitany Jayprakash Raorane² · N. Saber¹ · R. El Fdil¹ · Steve Karam³ · P. Rosaiah⁴ · Mohamed Ouladsmane⁵ · Seong-Cheol Kim²

Received: 14 September 2023 / Accepted: 1 December 2023

© The Author(s), under exclusive licence to Springer Science+Business Media, LLC, part of Springer Nature 2023

Abstract

The current study is motivated by the interest in understanding the magnetic properties of Perylene-like nanostructures and to explore their behavior, using Monte Carlo simulations. The investigation begins by examining the ground state phase diagrams, aiming to identify stable spin configurations under different physical parameters. Furthermore, the study investigates magnetic hysteresis cycles, focusing on the presence of multi-loops and multiple magnetization plateaus. The coercive and saturation fields were carefully analyzed in relation to exchange coupling interactions, temperature, and crystal field parameters. By delving these magnetic characteristics, this research sheds light on the intricate nature of Perylene-like nanostructures and provides insights into their potential applications in the field of magnetism.

Keywords Perylene-like nanostructure · Ground state phase diagrams · Monte Carlo simulations · Hysteresis cycles

1 Introduction

2D materials are a captivating area of nanotechnology [1–4]. Their ultrathin structure, composed of one or a few layers of atoms, gives them unique properties distinct from bulk materials [5, 6]. They hold great promise for various applications in electronics, sensors, and energy storage, though challenges in fabrication and integration remain. One of the most promising applications of 2D materials is in electronics and optoelectronics [7–10]. Graphene has shown great potential in creating faster and more efficient transistors due to its high electron mobility [10–13]. Additionally,

Z. Fadil, Rajesh Haldhar and Chaitany Jayprakash Raorane have contributed equally to this work.

Extended author information available on the last page of the article

Published online: 30 December 2023

Springer

Exploring dielectric phenomena in sulflower-like nanostructures via Monte Carlo technique

N Saber¹, Z Fadil^{1,*}, Hussein Sabbah², A Mhirech¹, B Kabouchi¹,
L Bahmad¹, Chaitany Jayprakash Raorane^{3,*}, Siva Sankar Sana³,
Hassan Fouad⁴ and Mohamed Hashem⁵

¹Laboratory of Condensed Matter and Interdisciplinary Sciences (LaMCScI), Research Unit Labelled CNRST, URL-CNRST-17. Faculty of Sciences. PO Box 1014, Mohammed V University in Rabat, Morocco

²College of Engineering and Technology, American University of the Middle East, Egaila 54200, Kuwait

³School of Chemical Engineering, Yeungnam University, Gyeongsan, 38541, Republic of Korea

⁴Applied Medical Science Department, Community College, King Saud University, PO Box 11433, Riyadh Saudi Arabia

⁵Department of Dental Health, College of Applied Medical Sciences, King Saud University, PO Box 12372, Riyadh, Saudi Arabia

E-mail: fadilzakaria604@gmail.com and chaitanyaraorane22@ynu.ac.kr

Received 25 September 2023, revised 6 February 2024

Accepted for publication 8 March 2024

Published 18 April 2024



Abstract

This research focuses on the electric behavior of a mixed ferroelectric sulflower-like nanostructure. The structure includes a core with spin $S_i^Z = 1$ atoms and a shell with spin $\sigma_i^Z = 5/2$ atoms. The Blume–Capel model and the Monte Carlo technique (MCT) with the Metropolis algorithm are employed. Diagrams are established for absolute zero, investigating stable spin configurations correlated with various physical parameters. The MCT method explores phase transition behavior and electric hysteresis cycles under different physical parameters.

Keywords: sulflower-like nanostructure, dielectric characteristics, Monte Carlo technique, phase transition, phase diagrams, electric hysteresis

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

Efflorescence in science and nanotechnology have allowed for the successful synthesis of nanomaterials with diverse sizes and structures as well. In particular, carbon-sulfur compounds have gained colossal attention due to the possibility of using them in a myriad of organic electronic devices, including organic field-effect transistors, light modulators, light-emitting diodes, photovoltaic cells and hydrogen-storage devices [1–4]. One of the recently discovered carbon-sulfur compounds that have attracted attention is sulflower [5–7]. This compound has a unique molecular symmetry resulting

from anti-aromaticity and orbital degeneracy, combined with its intermolecular packing due to exposed sulfur atoms, making it a promising material for organic electronics [8–10]. Sulflower is chemically stable [11], making it an archetypal candidate for electronic devices. Studies have shown that thin-film OFETs made with a sulflower exhibit promising characteristics, containing a gateway threshold voltage of 45 V and a hole mobility of $9.10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ Vs}^{-1}$ [12]. Additionally, researchers have investigated the potential of sulflower systems decorated with Be^{2+} and Mg^{2+} to adsorb molecular hydrogen using density-functional theory (DFT) calculations [13]. The decorated systems consist of cyclic polythiophene rings. In addition, DFT and time-dependent density functional theory (TD-DFT) computations have

* Authors to whom any correspondence should be addressed.



Exploring Dielectric Responses in Nano Kagome Bilayers Through Monte Carlo Simulations

H. Eraki,¹ D. Kabouchi,¹ Z. Fadil,^{1,z} N. Saber,¹ R. El Fdil,¹ A. Mhirech,¹ E. Salmani,¹ Abdulrahman A. Alsayari,² S. Saadaoui,³ and Chaitany Jayprakash Raorane^{4,z}

¹Laboratory of Condensed Matter and Interdisciplinary Sciences (LaMCSi), Research Unit Labelled CNRST, URL-CNRST-17, Faculty of Sciences, Mohammed V University in Rabat, Morocco

²Department of Radiologic Technology, College of Applied Medical Sciences, Qassim University, Buraydah 51452, Saudi Arabia

³Applied College at Mahail Aseer, King Khalid University, Abha, Saudi Arabia

⁴School of Chemical Engineering, Yeungnam University, Gyeongsan, 38541, Republic of Korea

This study uses Monte Carlo simulations to investigate the dielectric properties of a mixed nano Kagome lattice. The investigation explores the effects of exchange coupling interactions, temperature variations, and the crystalline field on blocking temperature and hysteresis loop characteristics. By conducting in-depth analysis and simulation, the study aims to provide a nuanced understanding of the dielectric behavior within a mixed nano Kagome lattice. The dielectric response in a nano Kagome lattice has potential applications in spintronics and nanotechnology.

© 2024 The Electrochemical Society ("ECS"). Published on behalf of ECS by IOP Publishing Limited. [DOI: 10.1149/2162-8777/ad5869]

Manuscript submitted November 22, 2023; revised manuscript received May 29, 2024. Published June 25, 2024.

The creation and study of two-dimensional (2D) materials are highly valued in materials science their exceptional physical properties and wide-ranging application possibilities, as evidenced by numerous studies.¹⁻¹⁵ These materials are recognized for their exceptional thickness and strength, playing a crucial role in driving advancements in different fields. Specifically, they are fundamental in driving innovation in areas such as electronics,¹⁶ spintronics,¹⁷ solar cell technology,¹⁸ rechargeable batteries,¹⁸ and the development of energy storage solutions.^{19,20} The synthesis and exploration of 2D materials have become a crucial aspect of modern materials research. This is because these materials have innovative applications and provide new perspectives for understanding unique physical phenomena. They pave the way for groundbreaking technological advancements. Prominent examples of such materials are borophene,²¹ graphene,²² graphyne,^{23,24} and black phosphorus.²⁵ Each of these materials has distinct properties and potential uses, prompting intensive research and applications in various technological fields. Advances in 2D materials are not only changing our understanding of materials science but also leading to breakthrough applications across various industries and technology practices. Studying bi-layer materials has become an important part of modern science, particularly in the fields of nanotechnology and advanced material science. The bi-layer structures offer improved features and functionalities not seen in single-layer or three-layer counterparts.²⁶ Their unique characteristics render them indispensable components in the ongoing advancement of science and technology at the nanoscale. The Kagome lattice stands out from other lattice structures because of its distinct geometric configuration among the several nanostructures being studied. Recently, significant progress was made when a $S = 5/2$ Kagome antiferromagnet was synthesized hydrothermally.²⁷ After this progress, the material was thoroughly characterized both structurally and magnetically by means of methods such as powder X-ray diffraction in conjunction with IR and Raman spectroscopy.²⁷ In another study, dielectric properties of the $S = 1/2$ Kagome staircase compound $\text{PbCu}_3\text{TeO}_7$ were measured using electrometers and capacitance bridges in controlled magnetic fields and temperatures.²⁸ Due to the distinctive pattern and symmetry of the Kagome lattice, it is now easier to discover novel physical properties, particularly in the nanoscale domain. The various approaches used in its investigation demonstrate the expanding scientific interest in the Kagome lattice. One commonly used method to gain important insights into the electrical,

optical, and thermal properties of a lattice is density functional theory (DFT).²⁹⁻³¹ This approach has significantly contributed to our understanding of the fundamental principles of the Kagome structure and its potential applications. Furthermore, research on this material has advanced with the utilization of Monte Carlo simulations, providing valuable insights into the magnetic characteristics of the bi-layer Kagome lattice. Also, these simulations have been very helpful in examining the bi-layer Kagome lattice's magnetic characteristics. To learn more about the magnetic interactions inside the Kagome lattice, researchers have used a range of spin values, both up and down.³²⁻³⁴ Additionally, the application of the Mean-Field theory technique has provided significant insights into the magnetic response exhibited by the antiferromagnetic Kagome lattice.³⁵

Also, these diverse theoretical approaches have helped to better understand the Kagome lattice. Besides this, the intricate spin interactions of the Kagome lattice can be used to thoroughly examine compensation temperatures and transition, which is helpful when determining the materials' thermal stability and functional temperature range for experimental applications.³⁶ The efficiency of Monte Carlo simulations, especially those utilizing the Metropolis algorithm, is well-known when examining the characteristics of nanostructures.³⁷ Furthermore, the Ising model's simple representation of spin states makes it a very useful tool for studying complex systems, such as Kagome bilayers, as it sheds light on how they behave under different conditions. The mixed-spin (1, 7/2) Ising system has attracted a lot of attention recently in different 2D materials,^{38,39} but the investigation of its dielectric characteristics is still largely unexplored, providing a wealth of opportunities for scientific study. Moreover, the theoretical work presented in this paper has the potential to significantly advance our understanding of the dielectric properties of Nano Kagome Bilayers, providing valuable insights into their applications in nanotechnology. By deepening our knowledge of Nano Kagome-systems and their practical implications in nanotechnology endeavors, this research fosters the development of new models and complementary theories, while offering insightful perspectives for further exploration in related fields. Besides, the study of Nano Kagome systems holds intrinsic scientific interest and potential for emerging phenomena, making them valuable for various device technologies and materials design. This research aims to deepen our understanding of mixed-spin nanosystems, potentially leading to transformative advances in materials science and technology. Our results provide crucial insights into the complex behaviors exhibited by dielectric performance in Nano Kagome systems, particularly in terms of

^zE-mail: fadilzakaria604@gmail.com; chaitanyaraorane22@ynu.ac.kr