

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE**  
**MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA**  
**RECHERCHE SCIENTIFIQUE**  
**UNIVERSITE MOULOU MAMMARI DE TIZI – OUZOU**



**FACULTE DES SCIENCES**  
**DEPARTEMENT DE PHYSIQUE**



**MEMOIRE DE MASTER**  
**SPECIALITE : PHYSIQUE DE LA MATIERE**  
**DE DIMENSIONALITE REDUITE**

**Présenté par :**  
**Samy BRAHIMI**

**Transition de phase magnétique. Fonction de contrainte, compétition  
d'interactions et calculs d'excitations dans des configurations Heisenberg  
frustrées.**

**Mémoire de master dirigé par le professeur Mokrane TAMINE**

**Soutenue le / / 2012**

**Jury :**

<b>M. Mouloud BENAKKI</b>	<b>Professeur</b>	<b>U.M.M.T.O</b>	<b>Président</b>
<b>M. Mokrane TAMINE</b>	<b>Professeur</b>	<b>U.M.M.T.O</b>	<b>Rapporteur</b>
<b>M. Mourad ZEMIRLI</b>	<b>Professeur</b>	<b>U.M.M.T.O</b>	<b>Examineur</b>

## ***Remerciements***

Ce travail a pu voir le jour grâce à l'extrême bienveillance de M. TAMINE Mokrane qui a bien voulu le diriger. Je lui exprime particulièrement ma gratitude pour ses orientations fructueuses et parce qu'il m'a initié à la recherche et a su m'orienter dans mon travail. Avec patience, il a guidé mes pas, m'a prodigué des conseils judicieux. La réussite de ce travail est en partie la sienne.

Je voudrais également exprimer ma gratitude à M. BENAKKI Mouloud et à M. ZEMIRLI Mourad et à M. LAMROUS Omar, professeurs à la faculté des Sciences de Tizi-Ouzou, pour leur disponibilité ainsi que pour nos discussions scientifiques fructueuses.

Merci à M. BOUARAB Saïd, directeur du Laboratoire de Physique et Chimie Quantique où nous avons pu réaliser ce modeste travail, ainsi qu'aux secrétaires et ingénieurs de cet organisme.

Merci enfin aux membres du jury pour avoir accueilli ce mémoire et accepter de l'examiner.

# Dédicaces

Je dédie ce modeste travail :

- A mes parents qui n'ont jamais cessé de croire en moi et de m'encourager,
- A ma sœur Samira et son mari Amrane,
- A ma grand-mère maternelle
- A mes tantes et mes oncles (maternels et paternels),
- A la mémoire de mes grands-parents paternels.
- A la mémoire de mon grand-père maternel.

## Table des matières

Introduction générale .....	1
-----------------------------	---

### Chapitre I : Quelques aspects généraux sur la frustration magnétique

Introduction.....	3
I.1 Définition.....	3
I.2 Frustration topologique ou géométrique.....	3
I.3 Les réseaux magnétiques à frustration géométrique.....	5
I.4 Frustration d'interactions.....	7
I.5 Frustration et dégénérescence des états de plus basse énergie.....	7
I.6 Connectivité et dégénérescence.....	8
Conclusion.....	11

### Chapitre II : Composé étudié et paramètres susceptibles de mettre en évidence la frustration magnétique

Introduction.....	13
II.1 Paramètres susceptibles de mettre en évidence la frustration magnétique.....	13
II.1.1 Définition des différents paramètres.....	13
II.1.1.1 Fonction de frustration $\Phi_{\mathbf{k}}$ .....	13
II.1.1.2 Le rapport $ \Theta_P/T_N $ .....	14
II.1.1.3 Fonction de contrainte.....	14
II.2 Rappels sur la structure du composé $\mathbf{FeF}_3$ .....	15
II.2.1 Les variétés cristallines.....	16

II.2.2 Propriétés magnétiques des différentes phases du fluorure $\text{FeF}_3$ .....	18
II.2.3 Modélisation des structures magnétiques par simulation numérique.....	19
II.2.3.1 Représentation à 3 dimensions de la fonction de contrainte $\mathbf{F}_c$ .....	21
Conclusion.....	23

### Chapitre III : Calcul d'excitations magnétiques

Introduction.....	25
III.1 Théorie des ondes de spins.....	25
III.2 Formalisme mathématique des excitations magnétiques.....	26
III.3 Résultats et discussion.....	32
III.3.1 Direction $[1\ 0\ 0]$ .....	32
III.3.2 Direction $[1\ 1\ 0]$ .....	33
III.3.3 Direction $[1\ 1\ 1]$ .....	34
III.3.4 Interprétation.....	35
III.4 Introduction de l'Hamiltonien de Dzyaloshinskii-Moriya (D-M).....	35
III.4.1 Mécanisme de superéchange.....	35
III.4.2 Interaction Dzyaloshinskii-Moriya.....	37
III.4.3 Théorie de l'influence du couplage antisymétrique sur les ondes de spins.....	38
III.4.4 Résultats et discussion.....	43
III.4.4.1 Direction $[1\ 0\ 0]$ .....	43
III.4.4.2 Direction $[1\ 1\ 0]$ .....	44
III.4.4.3 Direction $[1\ 1\ 1]$ .....	45
III.4.4.4 Interprétation et conclusion.....	46
<b>Conclusion générale</b> .....	48
<b>Bibliographie</b> .....	49

## **Index des tableaux et des figures**

**Figure 1** : page 4.

**Figure 2** : page 5.

**Figure 3** : page 6.

**Figure 4** : page 7.

**Figure 5** : page 9.

**Figure 6** : page 10.

**Figure 7** : page 13.

**Figure 8** : page 16.

**Figure 9** : page 17.

**Figure 10** : page 19.

**Figure 11** : page 20.

**Figure 12** : page 21.

**Figure 13** : page 22.

**Figure 14** : page 25.

**Figure 15** : page 32.

**Figure 16** : page 33.

**Figure 17** : page 34.

**Figure 18** : page 36.

**Figure 19** : page 38.

**Figure 20** : page 43.

**Figure 21** : page 44.

**Figure 22** : page 45.

**Tableau I** : page 18.

## Introduction générale :

Depuis le développement de la théorie microscopique de l'antiferromagnétisme par Louis Néel dans les années 1930, la recherche dans le domaine du magnétisme a connu un essor éblouissant. En effet, grâce à la mise au point et à l'amélioration d'outils expérimentaux adaptés tels que l'utilisation de neutrons comme sonde du magnétisme, ainsi que de prédictions théoriques assorties d'outils de calcul puissants, toute une variété de nouveaux états magnétiques originaux ont été découverts.

La frustration magnétique, dont l'une des principales incidences est de retarder ou même d'empêcher un système de condenser dans un état de Néel jusqu'aux températures les plus basses, est à la frontière de la recherche dans cette discipline. Elle permet entre autre d'engendrer des états magnétiques, dans lesquels les corrélations de spins restent à très courte portée, et caractérisés par une entropie par spin finie à température nulle, et possédant un état fondamental fortement dégénéré. Certains exemples populaires de tels états magnétiques sont les liquides de spins, ou encore les verres de spins.<sup>1</sup>

Le présent travail qui relate l'étude réalisée pendant ce mémoire sur la frustration magnétique et un calcul d'excitation, est organisé en trois chapitres.

Dans le premier chapitre, nous aborderons la frustration en magnétisme de manière générale.

Le second chapitre est quand à lui consacré à la présentation du composé étudié, ainsi qu'à l'ensemble des paramètres susceptible de mettre en valeur la frustration dans les systèmes magnétiques. Des états de transition de phases magnétiques sont alors décrits.

Dans le troisième chapitre, nous entreprendrons un calcul d'excitations magnétiques à l'effet de mettre en évidence ces différentes transitions.

Enfin nous clôturerons ce travail par une conclusion générale assez détaillée, qui sera entre autre l'occasion de mettre en évidence les différents résultats obtenus pendant ce modeste travail.

---

<sup>1</sup> J. Robert, *Systèmes magnétiques à frustration géométrique : approches expérimentale et théorique*, Université Joseph Fourier- Grenoble1, 2007, iramis. Cea. Fr/llb/phocea/file. Php, www. Google.fr, p. 1.

# **Chapitre I :**

## **Quelques aspects généraux sur la frustration magnétique**

## Introduction :

Le terme de frustration a été introduit pour la première fois en 1977 par Toulouse<sup>\*1</sup>, dans le cas de systèmes présentant des gels de type verre de spins. Cependant, nous pouvons considérer que la notion de frustration est apparue en 1935 lorsque Pauling<sup>\*2</sup>, en étudiant la phase solide de l'eau, a montré que l'entropie d'un tel système était finie à température nulle.<sup>1</sup>

### I-1) Définition :

La frustration de manière très générale dans un système donné, correspond à un état d'insatisfaction caractérisé par la propagation d'informations pouvant être contradictoires. Dans le cas de systèmes magnétiques, elle est due à l'incapacité du système à minimiser simultanément toutes les énergies d'interaction individuelles, menant ainsi à la présence de multiples états de plus basse énergie (dégénérescence de l'état fondamental).<sup>2</sup> Cette incapacité peut être induite par la topologie du système ou du réseau, nous parlerons alors de frustration topologique ou géométrique. La frustration d'interactions, est quand à elle due à la compétition entre les interactions.

### I-2) Frustration topologique ou géométrique :

Dans le cas de la frustration topologique, c'est la géométrie du réseau qui est responsable de la frustration du système.<sup>3</sup> En effet, elle se produit quand l'arrangement spatial des atomes ne permet pas de satisfaire simultanément toutes les interactions<sup>4</sup>. L'exemple classique du triangle avec des interactions antiferromagnétiques entre spins d'Ising illustre

---

<sup>\*1</sup> G. Toulouse, «Theory of the frustration effect in spin glasses: I», *Communications on Physics*, 2:115, 1977.

<sup>\*2</sup> L. Pauling, «The structure and entropy of ice and of other crystals with some randomness of atomic arrangement», *Journal of the American Chemical Society*, 57:2680, 1935.

<sup>1</sup> Idem, p. 7.

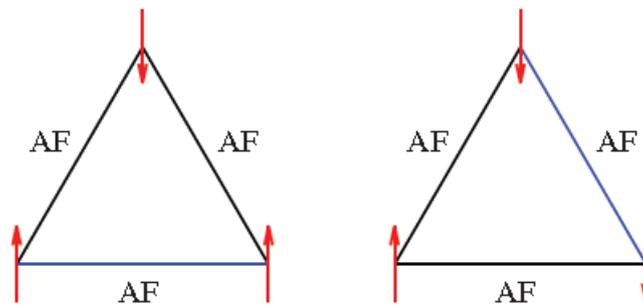
<sup>2</sup> Idem, pp. 7 - 8.

<sup>3</sup> K. Marty, *Etude des Langasites magnétiques. De la frustration magnétique au multiferroïsme*, Université Joseph Fourier, institut Néel, 2008, hal. Inria. Fr/docs/00/35/15/75/PDF/Thèse Karol. PDF, www. Google. Fr, p. 4.

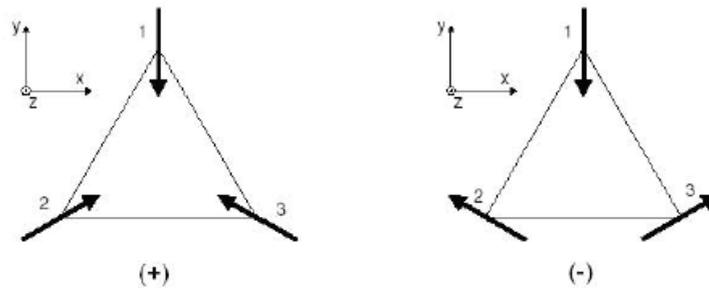
<sup>4</sup> Y. Chapis, *Frustration géométrique, transitions de phase et ordre dynamique*, Université Joseph Fourier-Grenoble1, 2009, tel. Archives-ouvertes. Fr/docs/00/46/36/43/.../Chapis-Yann-manuscrit. PDF, www. Google. Fr, pp. 1 - 2.

bien ce phénomène <sup>1</sup> (**figure 1**<sup>\*</sup>). Nous remarquons alors qu'il est possible de minimiser la première interaction en anti-alignant deux des spins, après quoi le troisième spin ne saura pas comment s'orienter.<sup>2</sup> On dit qu'il est frustré, ce qui explique l'impossibilité de minimiser toutes les énergies d'interactions. Avec un seul type d'interaction entre premiers voisins, c'est bien la géométrie du réseau qui conduit à la frustration.<sup>3</sup>

(a)



(b)



**FIG. 1** : frustration géométrique à deux dimensions : dans le cas Ising (a), en bleu est représentée l'interaction qui n'est pas satisfaite, XY (b), avec les deux chiralités autorisées.

Un autre exemple d'existence de frustration est illustré dans une configuration à trois dimensions. C'est la configuration de spins d'Ising couplés par des interactions antiferromagnétiques, se trouvant aux sommets d'un tétraèdre régulier (même une structure tétraédrique peut être le siège de la frustration géométrique, puisque celle-ci est constituée de

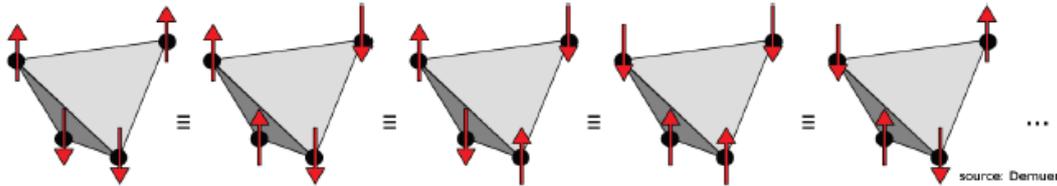
<sup>1</sup> K. Marty, op. cit, p. 4.

<sup>\*</sup> La figure 1(a) est empruntée à Y. Chapuis (op. cit, p. 3.) et (b) à K. Marty (op. cit, p. 5.).

<sup>2</sup> J. Robert, op. cit, p. 8.

<sup>3</sup> K. Marty, op. cit, p. 5.

triangles). Dans cette optique, nous avons représenté dans la **figure 2**<sup>\*</sup> quelques configurations équivalentes ; toutes les interactions antiferromagnétiques ne peuvent pas être satisfaites.



**FIG. 2 :** Exemple de spins antiferromagnétiques de type Ising : cas à trois dimensions. Les spins sont aux sommets d'un tétraèdre régulier ; on représente ici quelques configurations équivalentes.

D'après ces deux exemples cités ci-dessus, nous constatons la dégénérescence de l'état fondamental qui est une conséquence de la présence d'une frustration géométrique. En fait, nous pouvons avancer l'idée que la frustration magnétique en général est une dégénérescence de l'état fondamental du système. De plus, cette dernière a des conséquences sur l'entropie. En effet, si nous notons  $\Omega$  le nombre d'états accessibles, l'entropie  $S$  s'écrit alors ( $k_B$  la constante de Boltzmann) :

$$S = k_B \ln \Omega \quad (1)$$

Dans le cas des systèmes frustrés,  $\Omega$  est supérieur à 1, et l'entropie est ainsi supérieure à zéro.<sup>1</sup>

Notons que de telles situations (**FIG.1.a**) et **FIG. 2**) ont juste le mérite d'être des exemples simples pour illustrer le phénomène de frustration.<sup>2</sup> La réalité est toute autre, effectivement si nous minimisons l'énergie sur un lien (**FIG.1.a**), alors, nous ne pouvons pas placer le troisième spin en minimisant simultanément les énergies des deux liens restants. Le meilleur compromis est la configuration en étoile avec des spins à  $120^\circ$  les uns des autres (**FIG.1.b**).<sup>3</sup>

### I-3) Les réseaux magnétiques à frustration géométrique :

Nous pouvons induire de la frustration géométrique dans un réseau de spin, en

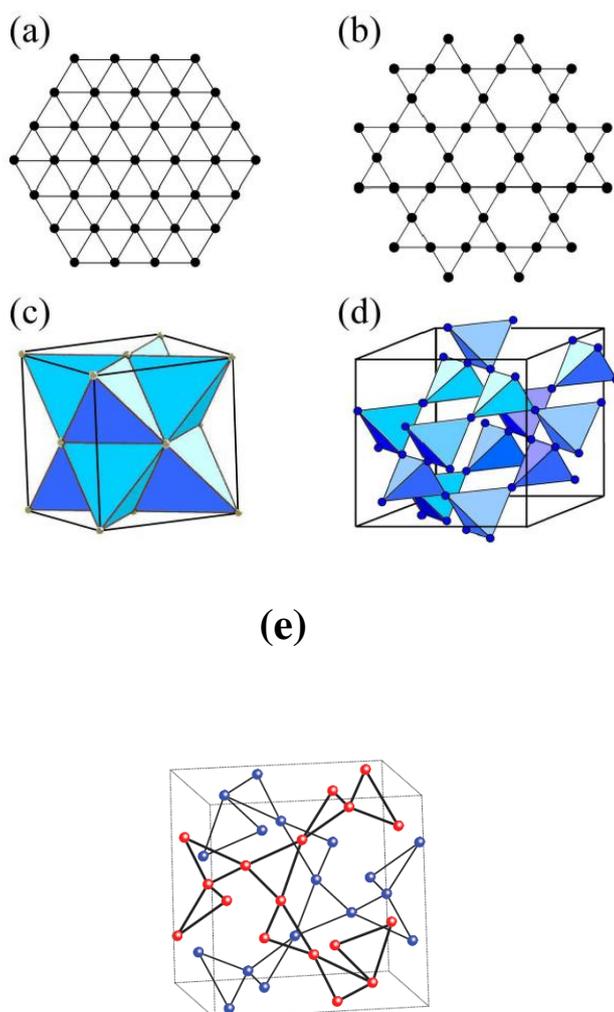
\* La figure 2 est empruntée à Y. Chapuis, op. cit, p. 3.

<sup>1</sup> Y. Chapuis, op. cit, pp. 2 - 3.

<sup>2</sup> Idem, p. 3.

<sup>3</sup> L. Messio, *Etats fondamentaux et excitations de systèmes magnétiques frustrés, du classique au quantique*, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2010, ipht. Cea. Fr/docsphd//articles/t10/144/public/Thèse-Messio. PDF, www. Google. Fr, p. 3.

considérant des interactions antiferromagnétiques entre les premiers voisins uniquement. Tout réseau à base de triangles, tel que le réseau triangulaire ayant des cotés en commun décrit par la **figure 3.a**, ainsi que le réseau Kagomé (**FIG.3.b**) où chaque sommet est partagé entre deux triangles, peut présenter le phénomène de frustration. Cette remarque est valable aussi pour les réseaux à trois dimensions : la structure pyrochlore (**FIG.3.d**), qui correspond à un réseau de tétraèdres reliés entre eux par leurs sommets, et le réseau cubique faces centrées (**FIG.3.c**) aussi à base de tétraèdres, connectés par leurs arêtes,<sup>1</sup> et le grenat (**FIG.3.e**), dans lequel les triangles partagent également un sommet (à noter que pour le grenat, il existe deux réseaux de triangles non coplanaires).<sup>2</sup>



**FIG. 3\*** : Réseaux géométriquement frustrés à base de triangles et tétraèdres : (a) réseau triangulaire ; (b) réseau Kagomé ; (c) réseau cubique faces centrées ; (d) réseau pyrochlore ; (e) le grenat.

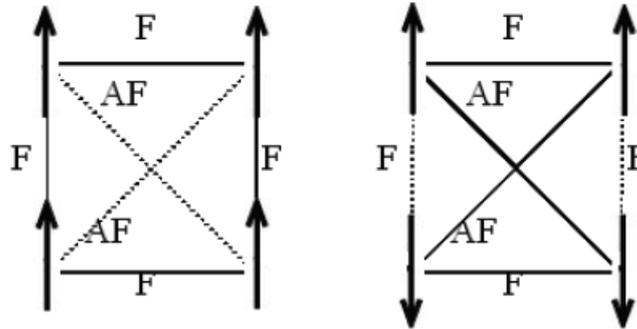
<sup>1</sup> J. Robert, op. cit, pp. 8 – 10.

<sup>2</sup> Y. Chapis, op. cit, p. 6.

\* La figure 3 (a,b,c,d) est empruntée à J. Robert (op. cit, p. 9.) et (e) à Y. Chapis, (op. cit, p. 6.).

### I-4) Compétition d'interactions :

Dans le cas où la frustration naît de la compétition d'interactions, ce phénomène est induit par l'existence de plusieurs chemins d'échange. Considérons le cas de spins d'Ising (un degré de liberté) placés au sommet d'un carré, avec des interactions ferromagnétiques (**F**) entre premiers voisins, et antiferromagnétiques (**AF**) entre seconds voisins (**figure 4**<sup>\*</sup>). Si l'on satisfait les interactions entre premiers voisins, tous les spins seront orientés dans le même sens, ce qui défavorise les interactions entre seconds voisins. Si nous respectons ces dernières, alors certaines des interactions entre premiers voisins ne seront plus satisfaites. Aucune des configurations de spins ne peut satisfaire simultanément les six interactions.<sup>1</sup> La frustration apparaît dans ces systèmes du fait de la compétition entre les interactions premiers et seconds voisins.



**FIG. 4 :** Frustration d'interactions dans le cas Ising : Les pointillés représentent les interactions non satisfaites.

### I-5) Frustration et dégénérescence des états de plus basse énergie :

Considérons un système de spins  $\mathbf{S}_i$ , avec des interactions antiferromagnétiques ( $\mathbf{J} < \mathbf{0}$ ) entre spins plus proches voisins uniquement. Dans le cas de l'échange isotrope et symétrique, l'Hamiltonien de Heisenberg  $\mathbf{H}$  d'un tel système s'écrit alors :

$$\mathbf{H} = - \mathbf{J}_{ij} \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{\mathbf{S}}_i \cdot \vec{\mathbf{S}}_j \quad (2)$$

<sup>\*</sup> La figure 4 est empruntée à K. Marty, op. cit, p. 4.

<sup>1</sup> Idem, p. 4.

Où  $\langle \mathbf{i}, \mathbf{j} \rangle$  désigne les couples de spins premiers voisins. Dans le cas de réseaux conventionnels (carré ou cubique), l'énergie du système est alors minimisée en anti-alignant chaque spin deux à deux. Un tel état est alors appelé état de Néel, dans lequel le système de spins se décompose en deux sous-réseaux, de sorte que l'aimantation par site de l'un des sous-réseaux soit  $g\mu_B|\vec{S}|$ , et celle de l'autre sous-réseau soit  $-g\mu_B|\vec{S}|$ .

Cependant, nous venons de voir à travers l'exemple simple de spins Ising au sommet d'un triangle, que l'état de Néel à deux sous réseaux est incompatible avec la géométrie de réseaux à base triangulaire,<sup>1</sup> c'est-à-dire que cette géométrie particulière conduit à la frustration et donc certaines interactions seront alors brisées, ce qui empêche par conséquent l'apparition d'un état de Néel.

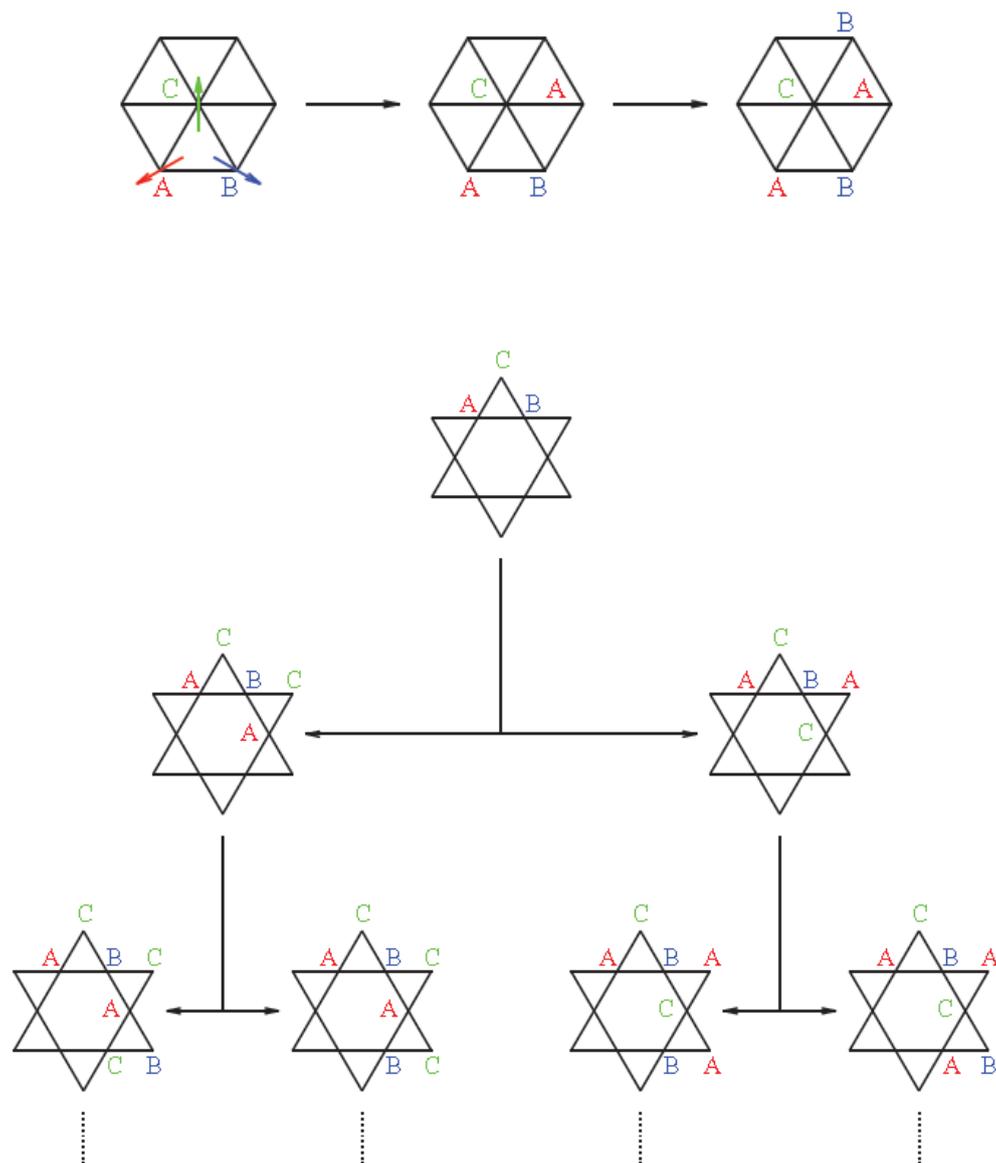
Une autre conséquence de la frustration est l'inhibition de l'état de Néel habituellement stabilisé, dans un système antiferromagnétique conventionnel. Plus prosaïquement on peut dire que le phénomène de frustration provoque l'annihilation d'un ordre magnétique à longue portée.

## I-6) Connectivité et dégénérescence :

Nous avons vu précédemment que la frustration géométrique conduisait à une dégénérescence de l'état fondamental. Nous pouvons montrer de plus que cette dégénérescence dépend de la connectivité entre les motifs de base. Considérons maintenant le cas du triangle comme motif de base ; comme nous l'avons déjà vu, un réseau de triangles peut être constitué de deux manières différentes : soit les triangles partagent leurs sommets (réseau dit Kagomé), soit ils partagent leurs cotés (réseau triangulaire). Les deux situations présentent une dégénérescence différente, comme nous pouvons le constater à la **figure 5**.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> J. Robert, op. cit, p. 10.

<sup>2</sup> Y. Chapuis, op. cit, p. 5.



**FIG. 5\*** : Relation entre connectivité et dégénérescence : en haut, le réseau triangulaire ; en bas, le réseau Kagomé : plus la connectivité est faible, plus la dégénérescence est importante.

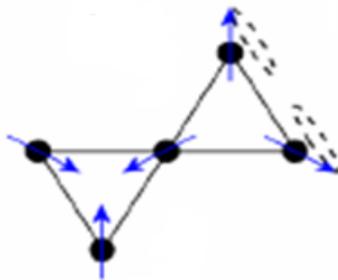
Dans cet exemple nous nous limitons au cas de spins coplanaires (ou **XY**). Considérons 3 types de spins : en rouge, les spins **A** orientés vers la gauche ; en bleu, les spins **B** orientés vers la droite ; et en vert, les spins **C** orientés vers le haut. A noter que les spins font un angle de **120°** entre eux.

\* La figure 5 est empruntée à Y. Chapuis, op. cit, p. 7.

Dans le cas d'un réseau de triangle qui partagent leurs cotés, si nous plaçons les trois spins **A**, **B** et **C** sur un des triangles, nous remarquons que la chiralité pour ce triangle détermine la chiralité de tous les autres triangles, c'est-à-dire que la disposition des spins sur ce premier triangle impose la disposition des spins sur tous les autres triangles, donc l'orientation de tous les spins du réseau. Ainsi, la dégénérescence d'un tel système est la dégénérescence d'un seul triangle, qui correspond aux différentes façons de placer les spins **A**, **B** et **C**.

En revanche, lorsque les triangles ne partagent que leurs sommets, une fois les trois spins **A**, **B** et **C** placés sur un premier triangle, il reste deux possibilités pour disposer les spins manquants sur le triangle voisin. Par conséquent, la dégénérescence d'un tel système est bien plus importante que pour un réseau triangulaire. Nous voyons ainsi que plus la connectivité entre les triangles est faible, plus la dégénérescence est importante. Notons que nous pouvons tenir le même raisonnement dans le cas de tétraèdres, qui pourraient par exemple partager leurs sommets ou leurs arêtes. Dans le cas de la structure pyrochlore (les tétraèdres partageant leurs sommets), la dégénérescence sera alors plus importante.<sup>1</sup> Soulignons que la dégénérescence dont nous parlons ici est une dégénérescence macroscopique discrète de l'état fondamentale.<sup>2</sup>

Considérons maintenant le cas de spins Heisenberg (**3** degré de liberté). Le système peut en effet passer d'un état à un autre par la rotation successive de deux spins autour du troisième sur des triangles donnés (**figure 6\***), ces opérations ne coûtant aucune énergie. La dégénérescence dans ce cas n'est plus discrète mais continue.<sup>3</sup>



**FIG. 6 :** Cas de spins Heisenberg, il est possible de tourner les spins continument pour passer d'une configuration à une autre (dégénérescence continue), ce mouvement étant représenté par les ellipses en pointillé.

<sup>1</sup> Y. Chapuis, op. cit, p. 8.

<sup>2</sup> J. Robert, op. cit, p. 13.

\* Idem, p. 12.

<sup>3</sup> Idem, p. 13.

## **Conclusion :**

La frustration magnétique se rencontre dans des réseaux à base de triangles ou de tétraèdres de moment en interaction antiferromagnétique, en particulier à faible connectivité.

Elle induit une dégénérescence des états de plus basse énergie c'est-à-dire de l'état fondamentale du système.

Une conséquence remarquable de la frustration, est l'inhibition d'un ordre magnétique à grande distance.

Après une revue assez exhaustive des origines du concept de frustration, en l'occurrence, la topologie de structure et / ou la compétition d'interaction, plusieurs paramètres physiques peuvent être proposés à l'effet de décrire ce phénomène.

## **Chapitre II :**

**Composé étudié et paramètres  
susceptibles de mettre en  
évidence la frustration magnétique**

## Introduction :

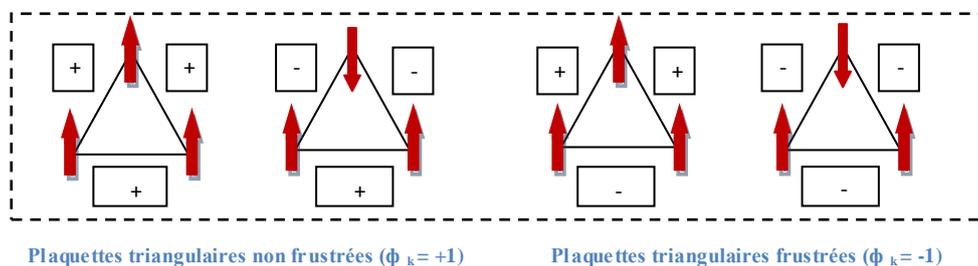
Plusieurs paramètres ont été proposés pour la mise en évidence et la mesure du degré de frustration magnétique, dans les composés gouvernés par cette dernière. Parmi eux, nous citons les plus importants à savoir : la fonction de frustration  $\Phi_k$ , le rapport  $|\Theta_P/T_N|$  et la fonction de contrainte  $F_C$ .<sup>1</sup> Le composé au quel nous nous sommes intéressés est le fluorure ferrique  $FeF_3$ . Dans ce chapitre, nous présenterons les caractéristiques structurales de ce composé. Il présente un polymorphisme comprenant **3** phases cristallines avec des topologies très différentes,<sup>2</sup> et constitue un cas d'école pour l'étude de la frustration magnétique en raison du caractère antiferromagnétique des interactions de superéchange (le superéchange sera défini dans le chapitre **III**).<sup>3</sup>

### II-1) Paramètres susceptibles de mettre en évidence la frustration magnétique :

#### II-1-1) Définition des différents paramètres :

##### II-1-1-1) Fonction de frustration $\Phi_k$ :

G.Toulouse\* a montré par le biais d'un paramètre appelée la fonction de frustration, noté  $\Phi_k$ , que le signe du produit des interactions d'échange sur le contour de la plaquette triangulaire comme illustré dans la **figure 7**, témoigne de la présence ( $\Phi_k = -1$ ) ou alors de l'absence ( $\Phi_k = +1$ ) de frustration.<sup>4</sup>



**FIG. 7 :** La fonction de frustration  $\Phi_k = \prod_{\text{cycle}} \text{signe}(J_{ij})$ , teste la présence ou non de frustration dans un cycle d'interactions.

<sup>1</sup> M. Tamine, *Contribution à l'étude des excitations magnétiques de surface des systèmes antiferromagnétiques frustrés*, Université du Maine, 1994, pp. 4 – 7.

<sup>2</sup> H. Guérault, *Propriétés structurales et magnétiques de poudres de fluorures nanostructurées  $MF_3$  ( $M=Fe, Ga$ ) obtenues par broyage mécanique*, Université du Maine, 2000, p. 35.

<sup>3</sup> M. Tamine, op. cit, p. 6.

\* G. Toulouse, op. cit.

<sup>4</sup> M. Tamine, op. cit, p. 4.

La fonction de frustration d'un cycle d'interactions  $\Phi_k$  ne peut-être considérée que comme un teste de présence de la frustration dans un système magnétique, elle ne semble pas constituer un paramètre suffisamment général pour nous renseigner sur le degré de frustration d'un système physique. D'où la problématique suivante : par quel moyen théorique ou expérimental peut-on quantifier la frustration d'un système magnétique ?<sup>1</sup>

### II-1-1-2) Le rapport $|\Theta_P/T_N|$ :

Sur le plan expérimental, la valeur du rapport  $|\Theta_P/T_N|$ , où  $\Theta_P$  est définie comme étant la température de Curie-Weiss et  $T_N$  la température d'ordre de Néel, pour tout système modélisable par une structure antiferromagnétique, permet de mettre en évidence la présence ou pas de frustration dans un composé : pour les systèmes non frustrés ce rapport est voisin de **1**, il devient bien supérieur à **1** dans le cas contraire.<sup>2</sup> Nous avons vu qu'une des conséquences de la frustration magnétique est d'empêcher l'état de Néel, et donc des états magnétiques avec un ordre à longue portée (**chapitre I, (I-2)**). On s'attend donc un comportement paramagnétique de la susceptibilité se prolongeant jusqu'aux températures les plus basses.<sup>3</sup> Ce qui signifie que le système n'arrive pas à développer de corrélations magnétiques à grande distance. Les systèmes frustrés (tels que les liquides de spins) diffèrent d'états paramagnétiques où les moments fluctuent de façon indépendante, entre autre par l'existence de corrélations à courte portée. « Ceci a conduit Villain\* à introduire la notion de *paramagnétisme coopératif*.<sup>4</sup> »

Ce rapport n'est pas vraiment rigoureux pour décrire la frustration magnétique, car le problème se pose pour tous les composés qui ne satisfont pas à la loi de Curie-Weiss (difficulté d'évaluation de la grandeur  $\Theta_P$ ). D'où la nécessité de définir une autre approche de la frustration en relation direct avec l'énergie du système, et ce nouvel outil pourra alors être définie comme étant la notion de fonction de contrainte.<sup>5</sup>

### II-1-1-3) Fonction de contrainte :

Ce paramètre appelé aussi l'énergie réduite du système, est défini comme suit :

<sup>1</sup> M. Tamine, op. cit, pp. 6 – 7.

<sup>2</sup> Idem, pp. 6 – 7.

<sup>3</sup> K. Marty, op. cit, p. 7.

\* J. Villain, «Insulating spin glasses», *Zeitschrift fur Physik B*, 33:31, 1979.

<sup>4</sup> J. Robert, op. cit, p. 16.

<sup>5</sup> M. Tamine, op. cit, p. 7.

En définissant  $E_C$  l'énergie d'échange du système de spins en interactions par la quantité

$$E_C = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \cdot \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (3)$$

et  $E_b$  l'énergie de base du système (l'énergie du système résultant de la sommation sur toutes les interactions de paires supposées non frustrées),

$$E_b = - \sum_{\langle i,j \rangle} |J_{ij}| \cdot |\vec{S}_i| \cdot |\vec{S}_j| \quad (4)$$

La fonction de contrainte  $F_C$  sera alors définie par le rapport entre l'énergie réelle du système  $E_C$  et son énergie de base  $E_b$ ,<sup>1</sup>

$$F_C = - \frac{E_C}{E_b} = - \frac{\sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \cdot \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j}{\sum_{\langle i,j \rangle} |J_{ij}| \cdot |\vec{S}_i| \cdot |\vec{S}_j|} \quad (5)$$

Les valeurs de  $F_C$  se trouvent dans la plage **-1**(système non frustré) à **+1**(système totalement frustré).

Plus l'écart entre l'énergie réelle du système et son énergie de base est grand, plus le système est frustré.<sup>2</sup>

## II-2) Rappels sur la structure du composé $FeF_3$ :

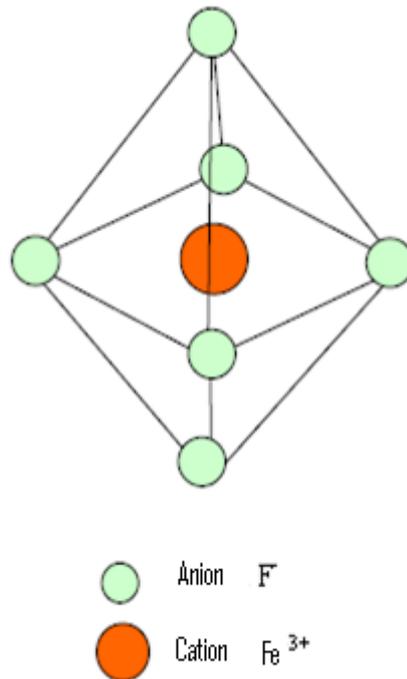
La structure idéale du fluorure  $FeF_3$  est illustrée sur la **figure 8\***. Chaque ion métallique est entouré par un octaèdre formé de six ions fluor équidistants, ces octaèdres sont liés entre eux par mise en commun des sommets  $F^-$  formant ainsi un arrangement tridimensionnel. Chaque ion fluor possède ainsi deux ions métalliques premier voisins et huit autres ions fluor équidistants.<sup>3</sup>

<sup>1</sup> M. Tamine, op. cit, p. 7.

<sup>2</sup> P. Lacorre, «The constraint functions : an attempt to evaluate the constraint rate inside structures that undergo ordered magnetic frustration», *J. Phys. C : Solid state Phys.* 20 L775, 1987, <http://iopscience.iop.org/0022-3719/20/29/004>, p.776.

\* La figure 8 est empruntée à H. Guérault, op. cit, p. 34.

<sup>3</sup> Idem, p. 34.



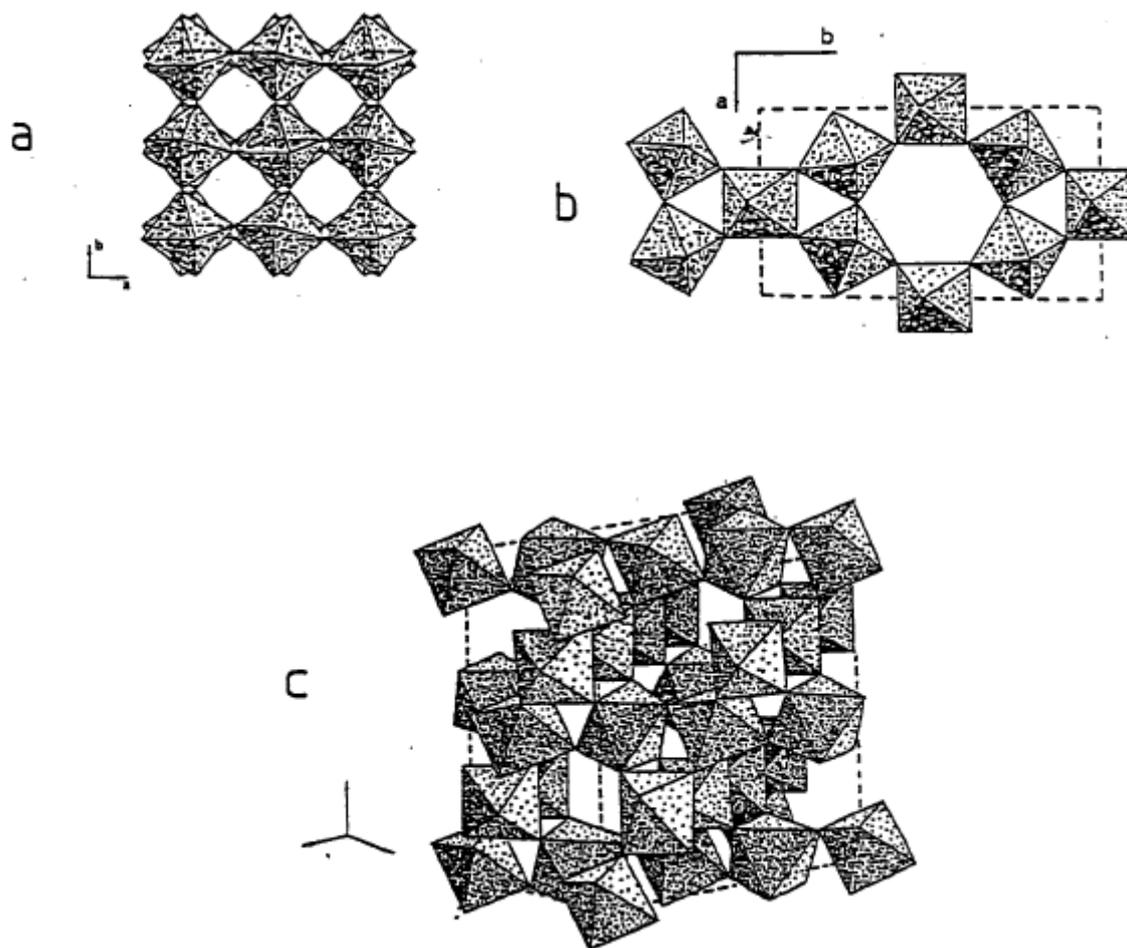
**FIG. 8 :** Unité de base du fluorure **FeF<sub>3</sub>**.

### II-2-1) Les variétés cristallines :

Comme cité au dessus (dans l'introduction), le fluorure **FeF<sub>3</sub>** est caractérisé par un polymorphisme ayant trois phases cristallines. Effectivement de nombreux travaux ont permis de mettre en évidence ces trois variétés cristallines qui sont communément appelées rhomboédrique (**rh**), bronze de tungstène hexagonal (**H.T.B**) et pyrochlore (**PYR**) : leurs structures cristallographiques sont illustrées sur la **figure 9**\*.<sup>1</sup>

\* La figure 9 est empruntée à H. Guérault, op. cit, p. 35.

<sup>1</sup> M. Tamine, op. cit, p. 8.



**FIG. 9** : Structures des trois phases cristallines de  $\text{FeF}_3$  : (a) rhomboédrique ; (b) bronze hexagonal de tungstène ; (c) pyrochlore.

(a) la phase rhomboédrique  $\text{r-FeF}_3$ , est la plus stable à température ambiante. Elle est assimilable à un empilement d'octaèdres joints par les sommets, inclinés et centrés sur les sommets d'un réseau pseudo-cubique.<sup>1</sup>

(b) la phase bronze hexagonale de tungstène (**H.T.B**) –  $\text{FeF}_3$ , est une superposition de plans contenant des cycles hexagonaux et triangulaires d'octaèdres.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> H. Guérault, op. cit, p. 35.

<sup>2</sup> Idem, p. 35.

(c) la phase pyrochlore **Pyr-FeF<sub>3</sub>**, est un réseau de cycles triangulaires d'octaèdres uniquement. Ces derniers sont centrés sur les sommets d'un réseau de tétraèdres eux-mêmes joints par les sommets.<sup>1</sup>

## II-2-2) Propriétés magnétiques des différentes phases du fluorure FeF<sub>3</sub> :

Les propriétés magnétiques de ces phases polymorphes diffèrent d'une phase à l'autre, l'ensemble des données magnétiques est reporté sur le tableau I\*.

Structure	T <sub>N</sub> (K)	Θ <sub>P</sub> (K)	Θ <sub>P</sub> /T <sub>N</sub>	F <sub>C</sub>	μ (μ <sub>B</sub> )	Φ <sub>Fe-F-Fe</sub> (°)	Structure
r-FeF <sub>3</sub>	363	-610	1.7	-1	4.45	152.15	Antiferromagnétique
(H.T.B) FeF <sub>3</sub>	110	-300	2.7	-0.67	4.09	142.3 150.7	Antiferromagnétique Triangulaire 120°
Pyr-FeF <sub>3</sub>	20	-	-	-0.33	3.32	141.65	Antiferromagnétique 4 sous-réseaux 109°

**Tableau I :** Valeurs des paramètres décrivant les propriétés magnétiques pour les trois phases cristallines du fluorure ferrique FeF<sub>3</sub>.

Avec : T<sub>N</sub> température de Néel, Θ<sub>P</sub> température de Curie-Weiss, F<sub>C</sub> fonction de contrainte, μ est le moment à saturation d'après les études de diffraction neutronique et Φ représente l'angle de superéchange.

<sup>1</sup> H. Guérault, op. cit, p. 36.

\* Le tableau I est emprunté à M. Tamine, op. cit, p. 9.

### II-2-3) Modélisation des structures magnétiques par simulation numérique :

Des études de simulation numérique basée sur l'algorithme de Metropolis ont été entreprises, afin d'estimer les valeurs des intégrales de superéchange  $\mathbf{J}_1$  et  $\mathbf{J}_2$  dans la phase rhomboédrique  $\mathbf{r}\text{-FeF}_3$ .<sup>1</sup>

La détermination des valeurs de  $\mathbf{J}_1$  et  $\mathbf{J}_2$ , est entreprise à partir d'un Hamiltonien d'échange de type Heisenberg :

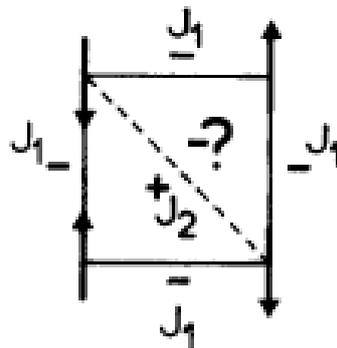
$$\mathbf{H} = - \sum_{\langle i,j \rangle}^{n_1} \mathbf{J}_1 \cdot \vec{\mathbf{S}}_i \cdot \vec{\mathbf{S}}_j - \sum_{\langle i,j \rangle}^{n_2} \mathbf{J}_2 \cdot \vec{\mathbf{S}}_i \cdot \vec{\mathbf{S}}_j \quad (6)$$

Ou  $n_1$  = nombre de premiers voisins égal à 6 dans le cas du réseau cubique,  $n_2$  = nombre de seconds voisins égal à 12 dans le cas du réseau cubique.

Les valeurs suivantes ont pu être obtenues :

$$\mathbf{J}_1 = - 12.9 \text{ K} \quad \text{et} \quad \mathbf{J}_2 = - 2.5 \text{ K}$$

Les valeurs de  $\mathbf{J}_1$  et  $\mathbf{J}_2$  négative, obtenues par simulation, induisent des interactions antiferromagnétiques et par conséquent de la frustration (**figure 10\***).<sup>2</sup>



**FIG. 10 :** Illustration de la frustration magnétique, induite par la compétition des interactions de superéchange antiferromagnétiques entre premier et seconds voisins  $\mathbf{J}_1$  et  $\mathbf{J}_2$ , respectivement.

<sup>1</sup> M. Lahlou – Mimi, «Computer simulation and magnetic frustration in cubic antiferromagnets», *journal of magnetism and magnetic materials* 150(1995)263-269, 1995, [http://www. Science direct. Com, p. 263](http://www.Science direct. Com, p. 263).

\* Idem, p. 264.

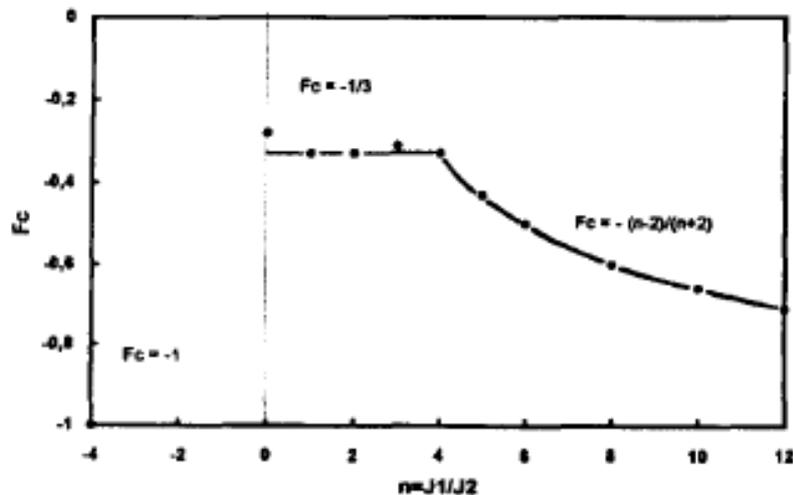
<sup>2</sup> M. Tamine, op. cit, pp. 11 – 12.

En considérant le modèle d'Heisenberg comme défini ci-dessus, la **figure 11**<sup>\*1</sup> montre l'évolution de la fonction de contrainte déduite des simulations. Différentes situations sont mises en évidence.

- Lorsque l'interaction entre second plus proche voisins est de nature ferromagnétique ( $J_2 > 0$ ), il n'existe pas de frustration ( $F_C = -1$ ), en accord avec la configuration de type **G** (spins antiparallèles deux à deux, **figure 12**<sup>\*2</sup>).

- Lorsque les interactions entre seconds plus proches voisins sont de nature antiferromagnétiques ( $J_2 < 0$ ), la configuration magnétique de type **G** se conserve pour des rapports  $J_1/J_2 \geq 4$ , les interactions sont toutefois frustrées, la fonction de contrainte  $F_C$  diminue lorsque  $J_1/J_2$  augmente (**figure 11**).

- Lorsque  $0 < J_1/J_2 \leq 4$ ,  $F_C = -1/3$ , la situation devient plus complexe. La configuration magnétique la plus stable (énergie minimale) résulte d'un modèle formé de files de spins de nature ferromagnétique couplés antiferromagnétiquement (configuration de type **C** (**figure 12**)). On peut constater que toutes les interactions entre seconds voisins sont satisfaites tandis que celles entre premiers voisins sont fortement frustrées, avec des spins disposés de manière ferromagnétique.<sup>1</sup>

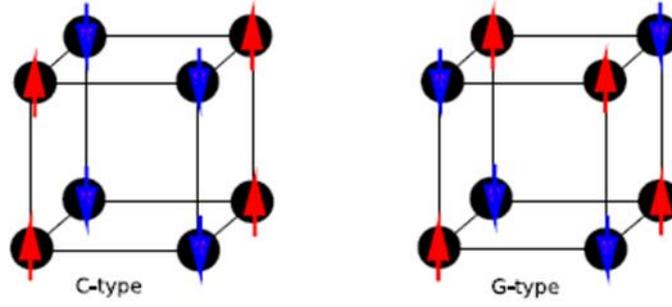


**FIG. 11** : Evolution de la fonction de contrainte  $F_C$  en fonction du rapport  $J_1/J_2$  pour un réseau cubique.

<sup>\*1</sup> La figure 11 est empruntée à M. Lahlou – Mimi, op.cit, p. 268.

<sup>\*2</sup> La figure 12 est empruntée à P. Rovillain, *Une approche optique de l'intrication entre le magnétisme et la ferroélectricité dans les multiferroïques*, Université Pierre et Marie Curie, 2011, www. Mpq. Uni v-paris 7. Fr, www. Google. Fr, p. 15.

<sup>1</sup> M. Tamine, op. cit, pp. 12 – 13.



**FIG. 12 :** Différentes configurations magnétiques possibles dans le cas du réseau cubique simple dans l'état fondamental.

### II-2-3-1) Représentation à 3 dimensions de la fonction de contrainte $F_C$ :

Considérons la structure de type **G** dans le domaine  $J_1/J_2 \geq 4$ , l'équation (3), en tenant compte des interactions entre seconds plus proche voisins, devient :

$$E_C = - [\sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \cdot \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + \sum_{\langle i,i' \rangle} J_{ii'} \cdot \vec{S}_i \cdot \vec{S}_{i'} + \sum_{\langle j,j' \rangle} J_{jj'} \cdot \vec{S}_j \cdot \vec{S}_{j'}] \quad (7)$$

Avec :  $i, i'$  des atomes appartenant au sous réseau **A**

$j, j'$  des atomes appartenant au sous réseau **B**

$J_{ij}$  Energie d'échange entre deux atomes proches voisins des 2 sous réseaux.

$J_{ii'}$  Energie d'échange entre deux atomes du même sous réseau **A**

$J_{jj'}$  Energie d'échange entre deux atomes du même sous réseau **B**

Notons que la structure de type **G** est constituée de deux sous réseaux, et que les interactions premier voisins sont des interactions inter-sous réseaux, par contre les interactions seconds voisins sont intra-sous réseau.

Donc: 
$$E_C = - [-12 J_{12} \cdot S_1 \cdot S_2 + 12 J_{11} \cdot S_1^2 + 12 J_{22} \cdot S_2^2] \quad (8)$$

L'équation (4) devient:

$$E_b = - [\sum_{\langle i,j \rangle} |J_{ij}| \cdot |\vec{S}_i| \cdot |\vec{S}_j| + \sum_{\langle i,i' \rangle} |J_{ii'}| \cdot |\vec{S}_i| \cdot |\vec{S}_{i'}| + \sum_{\langle j,j' \rangle} |J_{jj'}| \cdot |\vec{S}_j| \cdot |\vec{S}_{j'}|] \quad (9)$$

Ce qui implique:

$$\mathbf{E}_b = - [-12 J_{12} \cdot S_1 \cdot S_2 - 12 J_{11} \cdot S_1^2 - 12 J_{22} \cdot S_2^2] \quad (10)$$

Avec:  $J_{12} = J_{ij}$  ,  $J_{11} = J_{ii'}$  et  $J_{22} = J_{jj'}$  ,  $S_i = S_1$  et  $S_j = S_2$

Ce qui nous amène à réécrire l'équation (5) comme suit :

$$\mathbf{F}_C = - \frac{\mathbf{E}_C}{\mathbf{E}_b} = - \left[ \frac{- [-12 J_{12} \cdot S_1 \cdot S_2 + 12 J_{11} \cdot S_1^2 + 12 J_{22} \cdot S_2^2]}{- [-12 J_{12} \cdot S_1 \cdot S_2 - 12 J_{11} \cdot S_1^2 - 12 J_{22} \cdot S_2^2]} \right] \quad (11)$$

En divisant le numérateur et le dénominateur sur  $J_{11}$  et en posant  $x = \frac{J_{12}}{J_{11}}$  ,  $y = \frac{J_{12}}{J_{22}}$  , on aura :

$$\mathbf{F}_C = - \left[ \frac{x S_1 \cdot S_2 - S_1^2 \frac{x}{y} S_2^2}{x S_1 \cdot S_2 + S_1^2 \frac{x}{y} S_2^2} \right] \quad (12)$$

$$S_1 = S_2 = S \text{ et } J_{11} = J_{22}$$

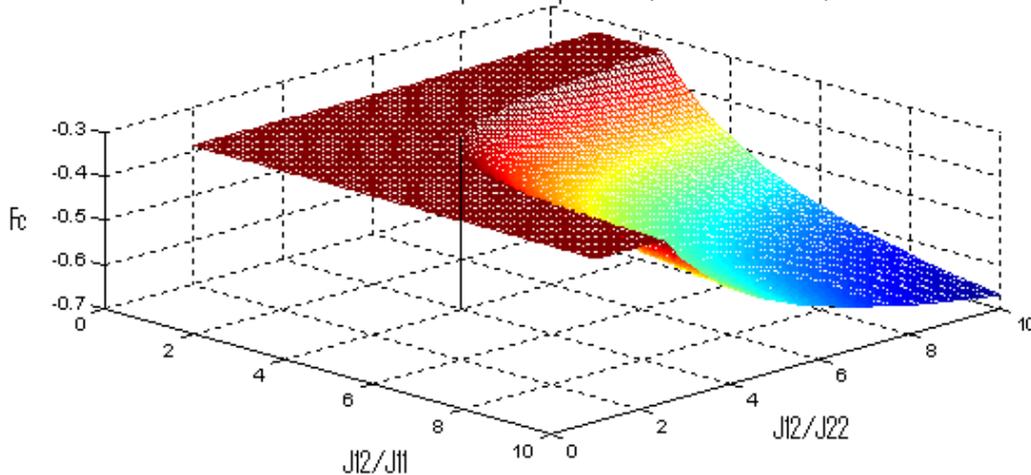
Ce qui fait que:

$$\mathbf{F}_C = - \left[ \frac{x-2}{x+2} \right] \quad (13)$$

En prenant:  $\mathbf{F}_C = - \frac{1}{3}$  , nous trouvons que  $x = 4$ , ce qui veut dire que  $\frac{J_{12}}{J_{11}} = \frac{J_{12}}{J_{22}} = 4$ .

En implémentant l'équation (12), on obtient la **figure 13** donnée ci-dessous.

Fonction de contrainte pour le composé FeF<sub>3</sub> (S<sub>1</sub>=5/2 et S<sub>2</sub>=5/2)



**FIG. 13 :** Evolution à 3 dimensions de la fonction de contrainte  $\mathbf{F}_C$  pour le composé  $\text{FeF}_3$ , en fonction des rapports,  $\frac{J_{12}}{J_{11}}$  et  $\frac{J_{12}}{J_{22}}$ .

## Conclusion :

Parmi les paramètres aptes à mettre en valeur la frustration magnétique, nous pouvons confirmer le fait que, la fonction de contrainte  $F_C$  est le meilleur moyen de mesure du degré de frustration d'un système magnétique, car elle est une quantification de cette dernière. Ajouter à cela la **figure 11** et la **figure 13** mettent communément en évidence une transition de phase, qui se manifeste par la rupture du plateau ( $F_C = -\frac{1}{3}$ , **FIG. 13**), et le début d'une avalanche, au point  $\frac{J_{12}}{J_{11}} = \frac{J_{12}}{J_{22}} = 4$ . Effectivement, il ya bien une transition de phase magnétique en passant de la phase où  $F_C = -\frac{1}{3}$ , à la quelle correspond la configuration de type **C**, à la phase où  $F_C = -\left[\frac{x-2}{x+2}\right]$ , à la quelle correspond la configuration de type **G**.

Afin de mettre en évidence ces résultats de simulation et à l'effet de rendre compte de la présence d'une transition de phase magnétique, un calcul d'excitations magnétiques a été alors entrepris.

## **Chapitre III :**

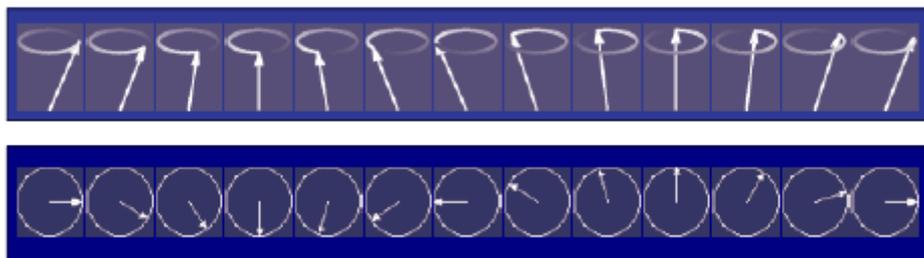
### **Calcul d'excitations magnétiques**

## Introduction :

Dans ce chapitre, nous nous proposons d'entreprendre un calcul d'excitations magnétiques (ondes de spins), basé sur le modèle d'Heisenberg, dans le but de faire apparaître des états d'excitations mous, qui sont une preuve de l'existence d'une transition de phase magnétique.

### III-1) Théorie des ondes de spins :

La théorie des ondes de spins est l'une des pierres angulaires du magnétisme. Bien que développée dans les années **50**, son importance reste fondamentale. C'est une théorie du champ, dont les quasi-particules sont appelées magnons. Ces excitations portent un spin entier et correspondent physiquement à des modes de précession des spins autour de la direction locale du moment ordonné, et caractérisées par un déphasage de site en site (**figure 14**<sup>\*</sup>).<sup>1</sup>



**FIG. 14 :** Diagramme schématisé d'une onde de spin dans un ferromagnétique.

<sup>\*</sup> La figure 14 est empruntée à S. Petit, *Neutron et Dynamique de spin*, Habilitation à diriger les recherches, LLB CE-Saclay F-91191 Gif sur Yvette, 2010, [www.Llb.Cea.Fr/habilitation/petit-2010.PDF](http://www.Llb.Cea.Fr/habilitation/petit-2010.PDF), [www.Google.fr](http://www.Google.fr), p. 7.

<sup>1</sup> S. Petit, op. cit, pp. 6 – 7.

## III-2) Formalisme mathématique des excitations magnétiques :

Dans la théorie quantique des ondes de spins, le spin est un opérateur dépendant du temps à trois composantes ; comme dans le cas classique, nous choisissons l'axe **Z** comme axe d'alignement des spins. En considérant des interactions premiers voisins et seconds voisins tel que montré par la configuration de type **G** (**FIG. 12**), nous choisissons l'Hamiltonien du système suivant le modèle d'Heisenberg à couplage isotrope et en introduisant un champ d'anisotropie et un champ extérieur. De plus, l'introduction ultérieure de l'Hamiltonien de Dzyaloshinskii-Moriya (**D-M**) témoignant de la présence de « Canting » même faible induisant de fait un ferromagnétisme faible dans les structures de **FeF<sub>3</sub>** sera aussi décrit.

Nous adopterons la convention d'écrire l'Hamiltonien total comme suit :

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_1 + \mathbf{H}_2 + \mathbf{H}_3 + \mathbf{H}_4 + \mathbf{H}_5 \quad (14)$$

Où:

$$\mathbf{H}_1 = J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (15) \quad J_{AB} = J_{ij}$$

$$\mathbf{H}_2 = J_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_{i'} \quad (16) \quad J_{AA} = J_{ii'}$$

$$\mathbf{H}_3 = J_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \vec{S}_j \cdot \vec{S}_{j'} \quad (17) \quad J_{BB} = J_{jj'}$$

$$\mathbf{H}_4 = -g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \sum_i S_i^Z \quad (18) \quad g: \text{Facteur de Landé}$$

$$\mathbf{H}_5 = -g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \sum_j S_j^Z \quad (19) \quad \mu_B: \text{Magnéton de Bohr}$$

$\sum_{\langle i,j \rangle}$  : Représente la sommation sur toute les paires de spins en interaction du système, chaque paire étant dénombrée une seule fois.

L'équation du mouvement d'un spin  $S_i$  ou  $S_j$  est alors régie par l'équation du mouvement d'Heisenberg sous la forme :

$$i \hbar \frac{dS_{ij}^+}{dt} = [S_{ij}^+, \mathbf{H}] \quad (20)$$

$[\mathbf{S}_{i,j}^+, \mathbf{H}]$ : Représente le commutateur des opérateurs de spins  $\mathbf{S}_{i,j}^+$  et de l'Hamiltonien  $\mathbf{H}$ .

De manière générale l'équation du mouvement d'un spin  $\mathbf{S}_k$ , d'indice quelconque  $k$  s'écrira :

$$\begin{aligned} i \hbar \frac{d\mathbf{S}_k^+}{dt} = [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{H}] = & [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{J}_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{\mathbf{S}}_i \cdot \vec{\mathbf{S}}_j] + [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{J}_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \vec{\mathbf{S}}_i \cdot \vec{\mathbf{S}}_{i'}] \\ & + [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{J}_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \vec{\mathbf{S}}_j \cdot \vec{\mathbf{S}}_{j'}] - g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \sum_i [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{S}_i^Z] \\ & - g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \sum_j [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{S}_j^Z] \end{aligned} \quad (21)$$

Comme dans le cas de la chaîne antiferromagnétique, en introduisant les opérateurs de déviation de spins  $\mathbf{S}_{i,j}^+$  et  $\mathbf{S}_{i,j}^-$  :

$$\mathbf{S}_{i,j}^\pm = \mathbf{S}_{i,j}^x \pm i\mathbf{S}_{i,j}^y \quad (22)$$

Nous aurons:

$$\begin{aligned} i \hbar \frac{d\mathbf{S}_k^+}{dt} = & [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{J}_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \left\{ \frac{1}{2} (\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^- + \mathbf{S}_i^- \cdot \mathbf{S}_j^+) + \mathbf{S}_i^Z \cdot \mathbf{S}_j^Z \right\}] \\ & + [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{J}_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \left\{ \frac{1}{2} (\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_{i'}^- + \mathbf{S}_i^- \cdot \mathbf{S}_{i'}^+) + \mathbf{S}_i^Z \cdot \mathbf{S}_{i'}^Z \right\}] \\ & + [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{J}_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \left\{ \frac{1}{2} (\mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_{j'}^- + \mathbf{S}_j^- \cdot \mathbf{S}_{j'}^+) + \mathbf{S}_j^Z \cdot \mathbf{S}_{j'}^Z \right\}] \\ & - g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \sum_i [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{S}_i^Z] - g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \sum_j [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{S}_j^Z] \end{aligned} \quad (23)$$

En tenant compte des règles de commutation suivante:

$$[\mathbf{A}, \mathbf{B} + \mathbf{C}] = [\mathbf{A}, \mathbf{B}] + [\mathbf{A}, \mathbf{C}]$$

$$[\mathbf{A}, \mathbf{BC}] = \mathbf{B} [\mathbf{A}, \mathbf{C}] + [\mathbf{A}, \mathbf{B}] \mathbf{C}$$

Et en utilisant les relations de commutation des opérateurs de spins :

$$[\mathbf{S}_j^+, \mathbf{S}_{j'}^Z] = -\mathbf{S}_{j'}^+ \cdot \delta_{jj'}$$

$$[\mathbf{S}_j^-, \mathbf{S}_{j'}^Z] = \mathbf{S}_{j'}^- \cdot \delta_{jj'}$$

$$[\mathbf{S}_j^+, \mathbf{S}_{j'}^-] = 2 \delta_{jj'} \cdot \mathbf{S}_{j'}^Z$$

Nous obtenons :

$$\begin{aligned}
i \hbar \frac{d\mathbf{S}_k^+}{dt} = & J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_k^Z \cdot \delta_{kj} + J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_k^Z \cdot \mathbf{S}_j^+ \cdot \delta_{ki} - J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_k^+ \cdot \delta_{kj} \\
& - J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_k^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z \cdot \delta_{ki} + J_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_k^Z \cdot \delta_{ki'} + J_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \mathbf{S}_k^Z \cdot \mathbf{S}_{i'}^+ \cdot \delta_{ki} \\
& - J_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \mathbf{S}_i^Z \cdot \mathbf{S}_k^+ \cdot \delta_{ki'} - J_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \mathbf{S}_k^+ \cdot \mathbf{S}_{i'}^Z \cdot \delta_{ki} + J_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_k^Z \cdot \delta_{kj'} \\
& + J_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \mathbf{S}_k^Z \cdot \mathbf{S}_{j'}^+ \cdot \delta_{kj} - J_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \mathbf{S}_{j'}^Z \cdot \mathbf{S}_k^+ \cdot \delta_{kj'} - J_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \mathbf{S}_k^+ \cdot \mathbf{S}_{j'}^Z \cdot \delta_{kj} \\
& + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \sum_i \mathbf{S}_i^+ \cdot \delta_{ki} + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \sum_j \mathbf{S}_j^+ \cdot \delta_{kj}
\end{aligned} \quad (24)$$

Pour un atome du sous réseau **A**, l'équation du mouvement sera régie alors en prenant

$$\mathbf{k} = \mathbf{i} \quad (\delta_{ki} = 1, \delta_{kj} = \delta_{kj'} = \delta_{ki'} = 0):$$

$$\begin{aligned}
i \hbar \frac{d\mathbf{S}_i^+}{dt} = & J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^Z \cdot \mathbf{S}_j^+ - J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z + J_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \mathbf{S}_i^Z \cdot \mathbf{S}_{i'}^+ - J_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_{i'}^Z \\
& + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \sum_i \mathbf{S}_i^+
\end{aligned} \quad (25)$$

Pour un atome du sous réseau **B**, en considérant cette fois ci :

$$\mathbf{k} = \mathbf{j} \quad (\delta_{kj} = 1, \delta_{ki} = \delta_{ki'} = \delta_{kj'} = 0)$$

$$\begin{aligned}
i \hbar \frac{d\mathbf{S}_j^+}{dt} = & J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z - J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^Z \cdot \mathbf{S}_j^+ + J_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \mathbf{S}_j^Z \cdot \mathbf{S}_{j'}^+ - J_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_{j'}^Z \\
& + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \sum_j \mathbf{S}_j^+
\end{aligned} \quad (26)$$

Dans l'approximation  $\mathbf{T} = \mathbf{0}$ ,  $\mathbf{K}$ , nous pouvons écrire :

$$\mathbf{S}_i^Z = \mathbf{S}_{i'}^Z = \mathbf{S}_A \quad \text{et} \quad \mathbf{S}_j^Z = \mathbf{S}_{j'}^Z = \mathbf{S}_B$$

Alors on peut réécrire les équations (25) et (26) sous la forme :

$$\begin{aligned}
\sum_i i \hbar \frac{d\mathbf{S}_i^+}{dt} e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} = & J_{AB} \mathbf{S}_A \sum_i \sum_{\langle i,j \rangle} e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_j^+ - J_{AB} \mathbf{S}_B \sum_i \sum_{\langle i,j \rangle} e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_i^+ \\
& + J_{AA} \mathbf{S}_A \sum_i \sum_{\langle i,i' \rangle} e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_{i'}^+ - J_{AA} \mathbf{S}_A \sum_i \sum_{\langle i,i' \rangle} e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_i^+ \\
& + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \sum_i \sum_i e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_i^+
\end{aligned} \quad (27)$$

$$\begin{aligned}
\sum_j i \hbar \frac{d\mathbf{S}_j^+}{dt} e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} &= J_{AB} \mathbf{S}_B \sum_j \sum_{\langle i,j \rangle} e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_i^+ - J_{AB} \mathbf{S}_A \sum_j \sum_{\langle i,j \rangle} e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_j^+ \\
&+ J_{BB} \mathbf{S}_B \sum_j \sum_{\langle j,j' \rangle} e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_{j'}^+ - J_{BB} \mathbf{S}_B \sum_j \sum_{\langle j,j' \rangle} e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_j^+ \quad (28) \\
&+ g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \sum_j \sum_j e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_j^+
\end{aligned}$$

En introduisant les opérateurs  $\alpha_{\vec{k}}^+$  et  $\beta_{\vec{k}}^+$ , définis dans l'espace des vecteurs d'ondes  $\vec{k}$  par :

$$\alpha_{\vec{k}}^+ = \sum_i \mathbf{S}_i^+ \cdot e^{-i\vec{k}\vec{r}_i}$$

$$\beta_{\vec{k}}^+ = \sum_j \mathbf{S}_j^+ \cdot e^{-i\vec{k}\vec{r}_j}$$

Et en tenant compte du fait que :

$$\sum_i \sum_{\langle i,j \rangle} \equiv \sum_j \sum_{\langle j,i \rangle}$$

$$\sum_i \sum_{\langle i,i' \rangle} \equiv \sum_{i'} \sum_{\langle i',i \rangle}$$

Les équations du mouvement s'écriront alors en fonction des opérateurs  $\alpha_{\vec{k}}^+$  et  $\beta_{\vec{k}}^+$  :

$$\begin{aligned}
i \hbar \frac{d\alpha_{\vec{k}}^+}{dt} &= J_{AB} \mathbf{S}_A \sum_j e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_j^+ \sum_{\langle j,i \rangle} e^{i\vec{k}(\vec{r}_j - \vec{r}_i)} - J_{AB} \mathbf{S}_B \sum_i e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_i^+ \sum_{\langle i,j \rangle} 1 \\
&+ J_{AA} \mathbf{S}_A \sum_{i'} e^{-i\vec{k}\vec{r}_{i'}} \cdot \mathbf{S}_{i'}^+ \sum_{\langle i',i \rangle} e^{i\vec{k}(\vec{r}_{i'} - \vec{r}_i)} - J_{AA} \mathbf{S}_A \sum_i e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_i^+ \sum_{\langle i,i' \rangle} 1 \quad (29) \\
&+ g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \sum_i \sum_i e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_i^+
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
i \hbar \frac{d\beta_{\vec{k}}^+}{dt} &= J_{AB} \mathbf{S}_B \sum_i e^{-i\vec{k}\vec{r}_i} \cdot \mathbf{S}_i^+ \sum_{\langle i,j \rangle} e^{-i\vec{k}(\vec{r}_j - \vec{r}_i)} - J_{AB} \mathbf{S}_A \sum_j e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_j^+ \sum_{\langle i,j \rangle} 1 \\
&+ J_{BB} \mathbf{S}_B \sum_{j'} e^{-i\vec{k}\vec{r}_{j'}} \cdot \mathbf{S}_{j'}^+ \sum_{\langle j',j \rangle} e^{i\vec{k}(\vec{r}_{j'} - \vec{r}_j)} - J_{BB} \mathbf{S}_B \sum_j e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_j^+ \sum_{\langle j,j' \rangle} 1 \quad (30) \\
&+ g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \sum_j \sum_j e^{-i\vec{k}\vec{r}_j} \cdot \mathbf{S}_j^+
\end{aligned}$$

Dans l'espace des vecteurs d'ondes  $\vec{k}$ , les équations du mouvement pourront alors s'écrire :

$$\begin{aligned} i \hbar \frac{d\alpha_{\vec{k}}^+}{dt} = & J_{AB} S_A Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) \beta_{\vec{k}}^+ - J_{AB} S_B Z_{ij} \alpha_{\vec{k}}^+ + J_{AA} S_A Z_{ii'} \gamma_{ii'}(\vec{k}) \alpha_{\vec{k}}^+ \\ & - J_{AA} S_A Z_{ii'} \alpha_{\vec{k}}^+ + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \alpha_{\vec{k}}^+ \end{aligned} \quad (31)$$

$$\begin{aligned} i \hbar \frac{d\beta_{\vec{k}}^+}{dt} = & J_{AB} S_B Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) \alpha_{\vec{k}}^+ - J_{AB} S_A Z_{ij} \beta_{\vec{k}}^+ + J_{BB} S_B Z_{jj'} \gamma_{jj'}(\vec{k}) \beta_{\vec{k}}^+ \\ & - J_{BB} S_B Z_{jj'} \beta_{\vec{k}}^+ + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \beta_{\vec{k}}^+ \end{aligned} \quad (32)$$

Avec:

$$\begin{aligned} \gamma_{ij}(\vec{k}) &= \frac{1}{Z_{ij}} \sum_{\langle i,j \rangle} e^{i\vec{k}(\vec{r}_j - \vec{r}_i)} \\ \gamma_{ii'}(\vec{k}) &= \frac{1}{Z_{ii'}} \sum_{\langle i,i' \rangle} e^{i\vec{k}(\vec{r}_{i'} - \vec{r}_i)} \\ \gamma_{jj'}(\vec{k}) &= \frac{1}{Z_{jj'}} \sum_{\langle j,j' \rangle} e^{i\vec{k}(\vec{r}_{j'} - \vec{r}_j)} \end{aligned}$$

En choisissant des solutions sous forme d'ondes de spins progressives:

$$\alpha_{\vec{k}}^+ = \alpha_{\vec{k}0}^+ e^{i\omega t}$$

$$\beta_{\vec{k}}^+ = \beta_{\vec{k}0}^+ e^{i\omega t}$$

Nous aurons les équations suivantes :

$$\begin{aligned} -\hbar\omega\alpha_{\vec{k}0}^+ = & [J_{AA} S_A Z_{ii'} \gamma_{ii'}(\vec{k}) - J_{AB} S_B Z_{ij} - J_{AA} S_A Z_{ii'} + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A)] \alpha_{\vec{k}0}^+ \\ & + [J_{AB} S_A Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k})] \beta_{\vec{k}0}^+ \end{aligned} \quad (33)$$

$$\begin{aligned} -\hbar\omega\beta_{\vec{k}0}^+ = & [J_{BB} S_B Z_{jj'} \gamma_{jj'}(\vec{k}) - J_{AB} S_A Z_{ij} - J_{BB} S_B Z_{jj'} + g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B)] \beta_{\vec{k}0}^+ \\ & + [J_{AB} S_B Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k})] \alpha_{\vec{k}0}^+ \end{aligned} \quad (34)$$

Nous obtenons sous forme d'une écriture matricielle:

$$\begin{bmatrix} \hbar\omega + J_{AA}S_A Z_{ii'} \gamma_{ii'}(\vec{k}) - J_{AB}S_B Z_{ij} - J_{AA}S_A Z_{ii'} + g\mu_B(H_0 + H_a^A) & J_{AB}S_A Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) \\ J_{AB}S_B Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) & \hbar\omega + J_{BB}S_B Z_{jj'} \gamma_{jj'}(\vec{k}) - J_{AB}S_A Z_{ij} - J_{BB}S_B Z_{jj'} + g\mu_B(H_0 + H_a^B) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha_{\vec{k}0}^+ \\ \beta_{\vec{k}0}^+ \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (35)$$

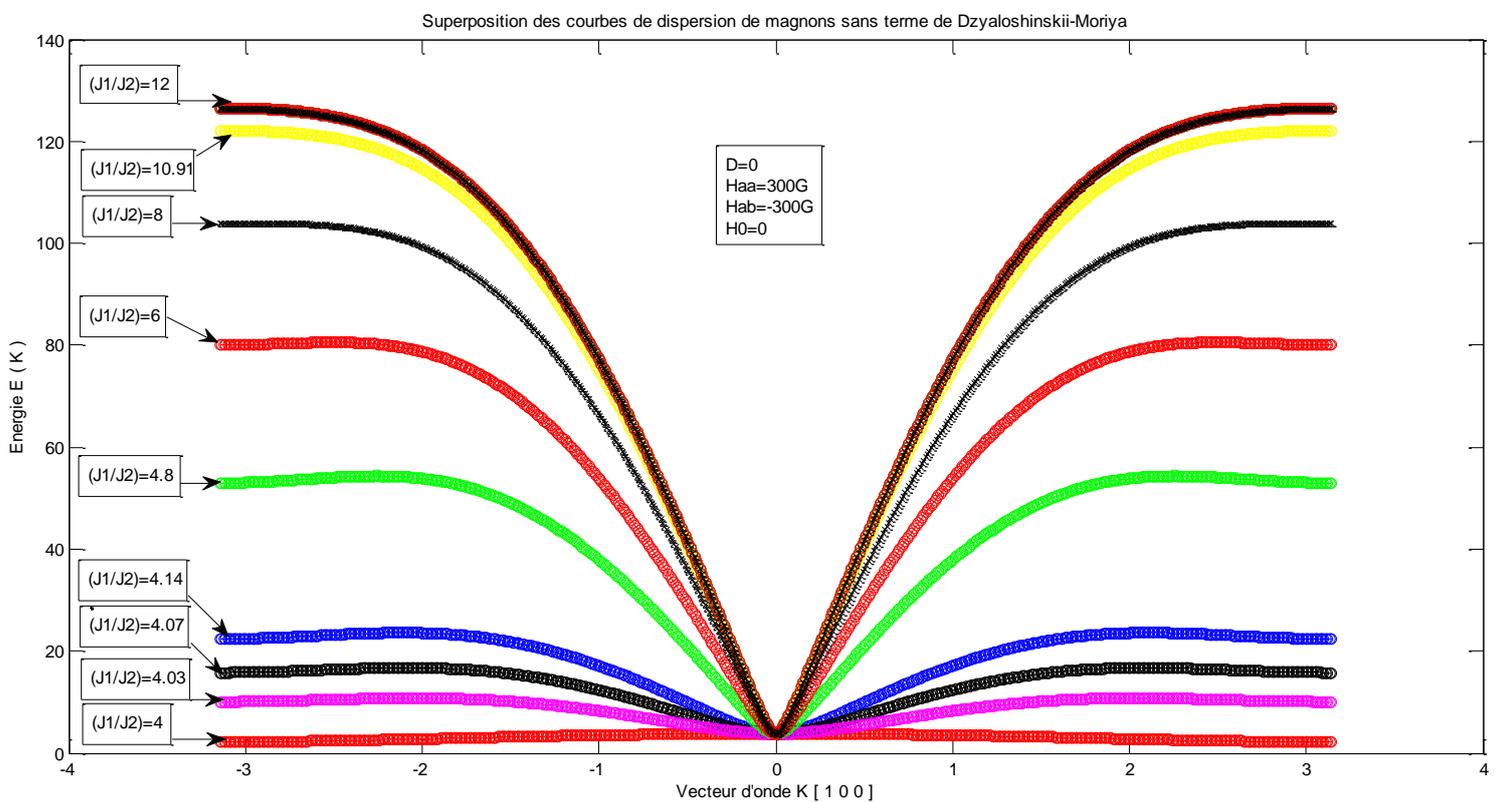
Pour avoir des solutions non triviales, l'annulation du déterminant donne alors l'équation séculaire permettant la détermination des énergies des quantums de magnons, qui s'écrit :

$$\begin{aligned} & (\hbar\omega)^2 - (\hbar\omega) [J_{AB}(S_A + S_B) Z_{ij} + J_{AA} S_A Z_{ii'} (1-\gamma_{ii'}(\vec{k})) + J_{BB} S_B Z_{jj'} (1-\gamma_{jj'}(\vec{k})) - 2 g\mu_B H_0 \\ & - g\mu_B (H_a^A + H_a^B)] + J_{AA} J_{BB} S_A S_B Z_{ii'} Z_{jj'} (\gamma_{ii'}(\vec{k}) \gamma_{jj'}(\vec{k}) - \gamma_{ii'}(\vec{k}) - \gamma_{jj'}(\vec{k}) + 1) \\ & + J_{AB}^2 S_A S_B Z_{ij}^2 (1-\gamma_{ij}(\vec{k})) + J_{AB} J_{BB} S_B^2 Z_{ij} Z_{jj'} (1-\gamma_{jj'}(\vec{k})) + J_{AA} J_{AB} S_A^2 Z_{ii'} Z_{ij} (1-\gamma_{ii'}(\vec{k})) \\ & - g\mu_B (H_0 + H_a^A) [J_{BB} S_B Z_{jj'} (1-\gamma_{jj'}(\vec{k})) + J_{AB} S_A Z_{ij}] \\ & - g\mu_B (H_0 + H_a^B) [J_{AA} S_A Z_{ii'} (1-\gamma_{ii'}(\vec{k})) + J_{AB} S_B Z_{ij}] + g^2 \mu_B^2 (H_0 + H_a^A) (H_0 + H_a^B) = 0 \quad (36) \end{aligned}$$

### III-3) Résultats et discussion:

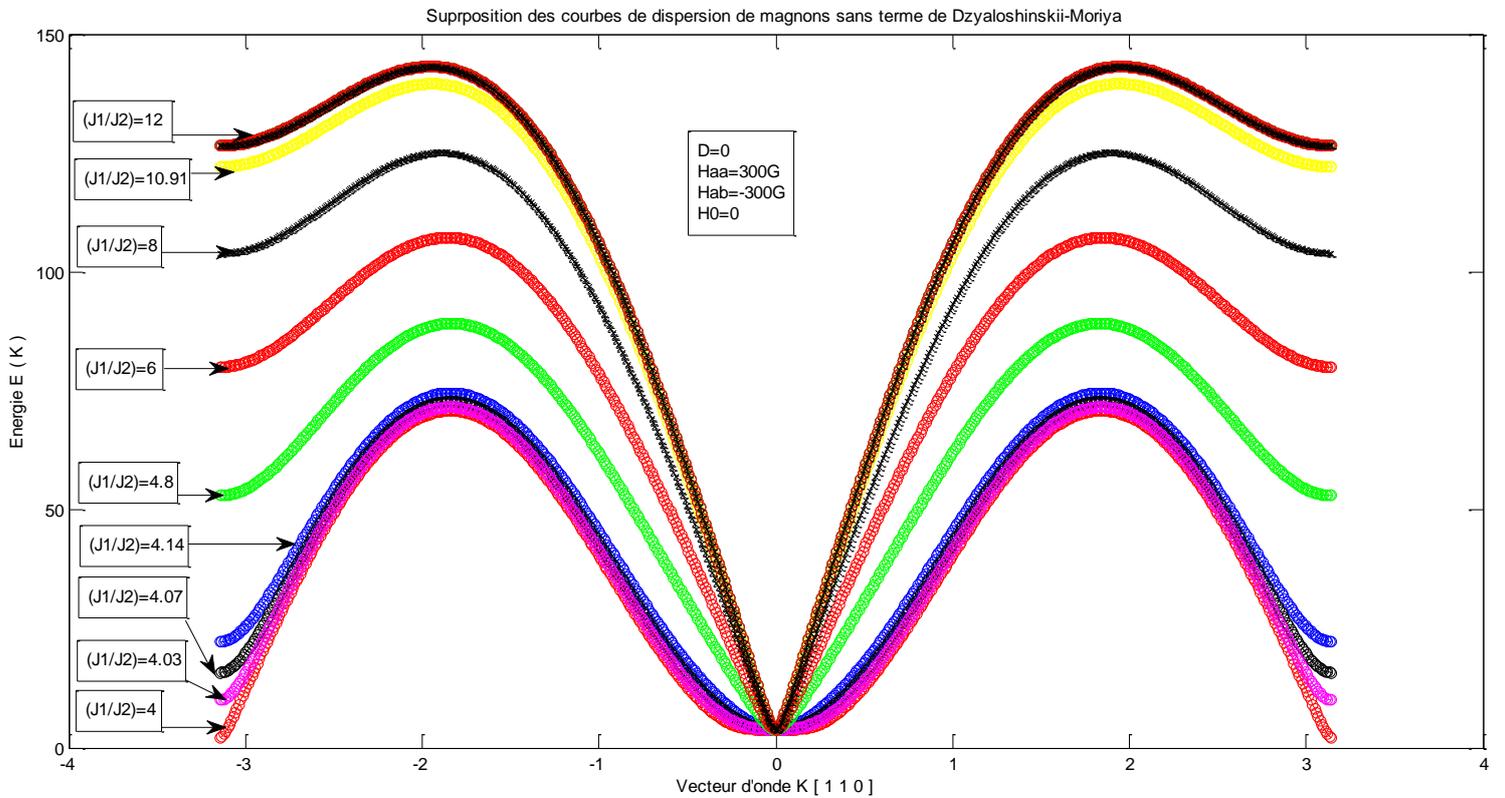
Dans cette partie nous présenterons les courbes de dispersion de magnons dans les trois directions de haute symétrie du cube, à savoir les directions  $[1\ 0\ 0]$ ,  $[1\ 1\ 0]$  et  $[1\ 1\ 1]$ .

#### III-3-1) Direction $[1\ 0\ 0]$ :



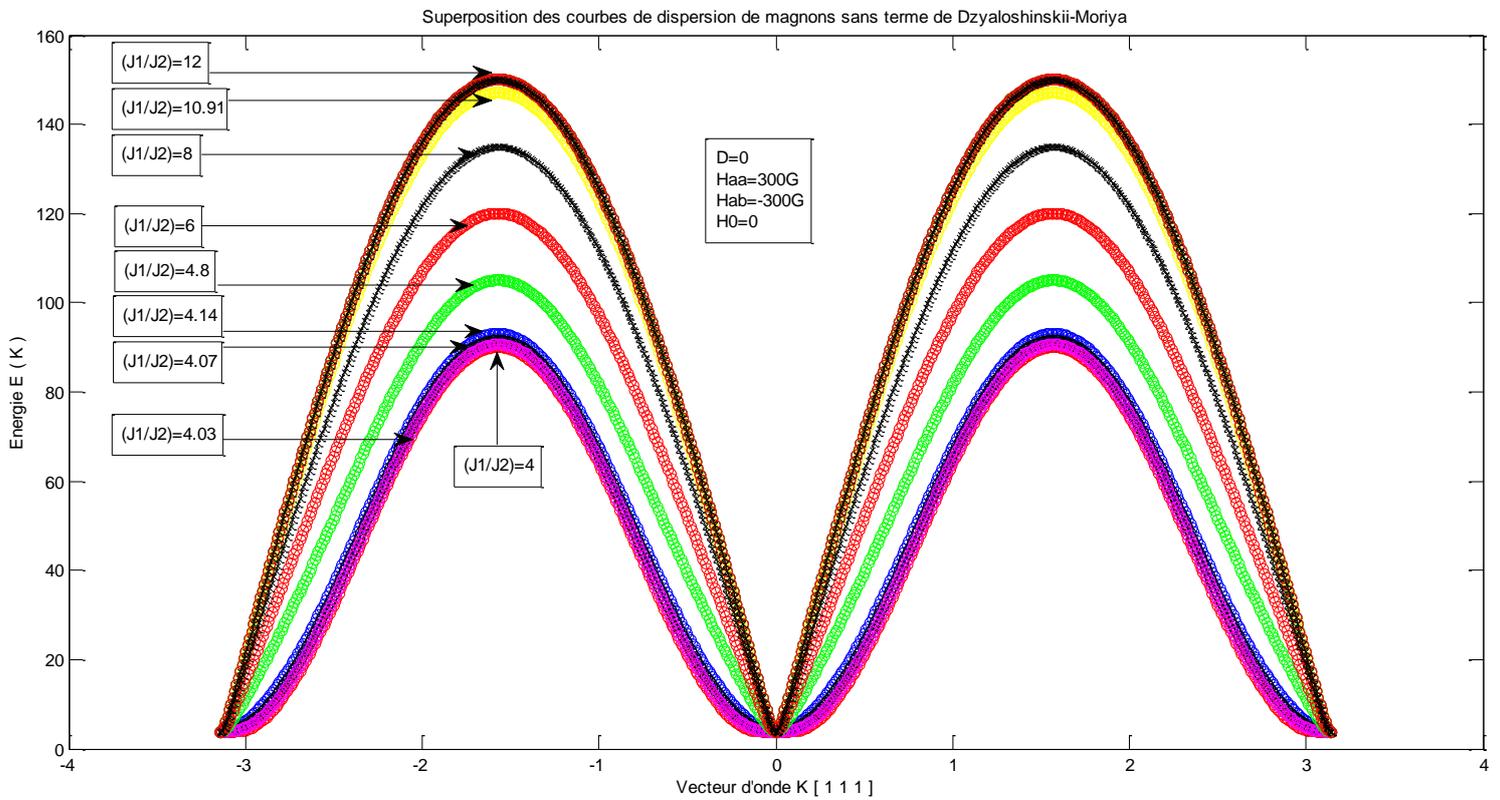
**FIG. 15 :** Superposition des courbes de dispersion de magnons sans terme de Dzyaloshinskii-Moriya, pour différentes valeurs du rapport  $J_1/J_2$ .

### III-3-2) Direction [1 1 0] :



**FIG. 16 :** Superposition des courbes de dispersion de magnons sans terme de Dzyaloshinskii-Moriya, pour différentes valeurs du rapport  $J_1/J_2$ .

## III-3-3) Direction [1 1 1] :



**FIG. 17 :** Superposition des courbes de dispersion de magnons sans terme de Dzyaloshinskii-Moriya, pour différentes valeurs du rapport  $J_1/J_2$ .

### III-3-4) Interprétation :

Dans les trois directions de haute symétrie du cube, nous constatons le même comportement des magnons, en se référant aux courbes de dispersion données ci-dessus. En effet pour des rapports  $J_1/J_2$  grand devant 4 (12, 10.91...), les énergies des magnons sont assez élevées. Situation physique qui est fondée car les ondes de spins se propagent dans la structure de type **G** (structure antiferromagnétique classique).

En se rapprochant de la valeur  $(J_1/J_2)=4$ , qui est le point où la transition de phase magnétique s'effectue (**FIG. 11**), nous remarquons que les magnons perdent de leur dynamisme, ceci s'explique par le fait que l'onde de spin rencontre un autre milieu qui lui est totalement inconnu, effectivement en dessous de la valeur  $(J_1/J_2)=4$  c'est une autre configuration de moments magnétique qui règne (structure de type **C**).

Ajouter à cela, nous observons un léger décalage des courbes par rapport à l'axe des abscisses, ceci incombe à la présence des champs d'anisotropie  $H_a^A$  et  $H_a^B$  respectivement dans les sous réseaux **A** et **B**.

### III-4) Introduction de l'Hamiltonien de Dzyaloshinskii-Moriya (D-M) :

Avant de définir l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya, nous allons d'abord introduire le concept de superéchange.

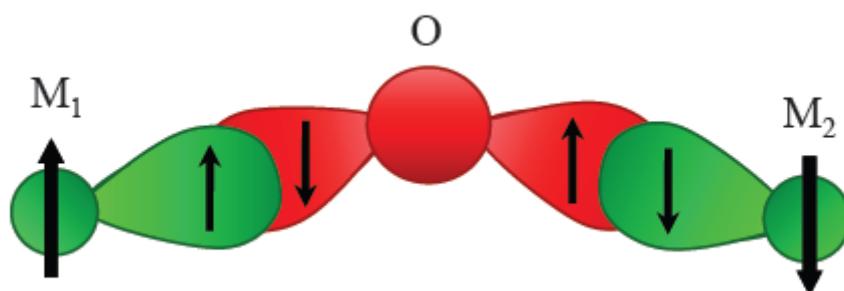
#### III-4-1) Mécanisme de superéchange :

La plupart des matériaux antiferromagnétiques sont des oxydes isolants dans lesquels les électrons sont localisés et les ions magnétiques sont séparés par d'autres ions non magnétiques. L'échange direct est donc très faible, c'est la nature des atomes séparant les ions

magnétiques qui joue alors un rôle essentiel dans l'intensité des interactions magnétiques. Ainsi dans ces oxydes, c'est le mécanisme de superéchange qui est responsable de l'antiferromagnétisme. Le superéchange est un couplage indirect médié par les ions non magnétiques.<sup>1</sup>

La **figure 18**\* traduit qualitativement le mécanisme de superéchange. Soit dans le cas générale deux atomes magnétiques  $M_1$  et  $M_2$  portant chacun un spin, séparés par un atome diamagnétique  $O$  (en générale un atome d'oxygène). Lors du recouvrement entre les orbitales électroniques des ions magnétiques (orbitale  $d$ ) et celles de l'atome d'oxygène (orbitale  $p$ ) les électrons ne seront plus localisés sur un ion. Supposant que l'ion  $M_1$  possède un spin  $+1/2$ , les orbitales de l'atome d'oxygène vont se polariser et celle occupée par un électron de spin  $-1/2$  sera plus proche de  $M_1$ . Dans ce cas,  $M_2$  sera plus proche d'une orbitale occupée par un électron de spin  $+1/2$ .

Comme les interactions entre  $M_2$  et  $O$  sont les mêmes qu'entre  $M_1$  et  $O$ , la présence d'un spin  $-1/2$  sur  $M_2$  sera favorisée. Dans ce cas, l'interaction entre les atomes  $M_1$  et  $M_2$  sera de nature antiferromagnétique.<sup>2</sup>



**FIG. 18 :** Configuration des orbitales des atomes magnétiques ( $M_1$  et  $M_2$ ) et non magnétique ( $O$ ) pour laquelle l'interaction antiferromagnétique s'effectue par un mécanisme de superéchange.

<sup>1</sup> P. Rovillain, op. cit, p. 15.

\* Idem, p. 16.

<sup>2</sup> Idem, p. 15.

Ainsi, nous concevons comment à travers une interaction d'échange indirecte nous pouvons obtenir une interaction antiferromagnétique entre les ions magnétiques. Notons que dans notre cas, le mécanisme de superéchange s'effectue entre les atomes de fer **Fe** qui sont magnétiques et l'atome de fluore **F** qui est lui diamagnétique (**Fe – F – Fe**). En plus de l'interaction de superéchange, une autre interaction peut être présente dans les composés antiferromagnétiques présentant un faible moment magnétique, il s'agit de l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya.

### III-4-2) Interaction Dzyaloshinskii-Moriya :

Certaines structures pour lesquelles l'ensemble de leurs propriétés permettrait de les classer parmi les antiferromagnétiques, présentent à basse température un moment permanent. On a longtemps attribué ce moment, qui est très petit, de l'ordre de  $10^{-2}$  ou  $10^{-3} \mu_B$  par atome à des impuretés ferromagnétiques. Cependant d'autres études ultérieures, dont la pureté a été soigneusement contrôlée, ont montrée que cette propriété existait dans le cas d'un assez grand nombre d'antiferromagnétiques, (exemple **NiF<sub>2</sub>**, **MnCo<sub>3</sub>**, **CoCo<sub>3</sub>**, **CrF<sub>3</sub>**, ...).

L'interprétation de cette propriété a été donnée par Dzyaloshinskii<sup>\*1</sup> dans une étude phénoménologique basée sur la symétrie, et il conclut qu'un ferromagnétique faible est en fait un antiferromagnétique dans lequel les moments magnétiques des deux sous réseaux, au lieu d'être rigoureusement antiparallèles, sont légèrement décalés d'un angle  $\alpha$  très petit (**figure 19<sup>\*2</sup>**). Dans ce cas on dit qu'il existe un « Canting » entre les moments magnétiques.

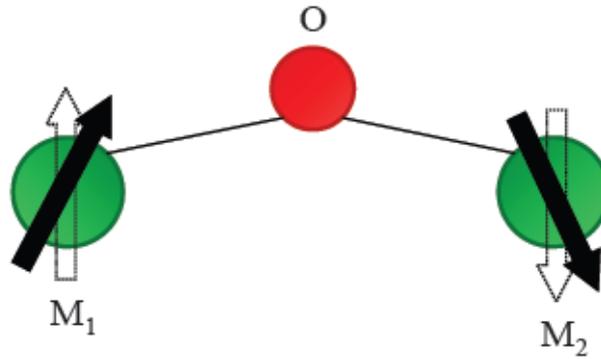
En 1960, Moriya<sup>\*3</sup> a justifié microscopiquement cette interaction à partir du couplage spin-orbite.<sup>1</sup>

<sup>\*1</sup> I. E. Dzyaloshinskii, «A thermodynamic theory of weak ferromagnetism of antiferromagnetics», *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 4, 241, 1959.

<sup>\*2</sup> La figure 19 est empruntée à P. Rovillain, op. cit, p. 17.

<sup>\*3</sup> T. Moriya, « Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism », *Physical Review*, 120, 91, 1960.

<sup>1</sup> L. Messio, op. cit, p. 115.



**FIG. 19** : Schéma illustratif du « Canting » entre les moments magnétiques.

### III-4-3) Théorie de l'influence du couplage antisymétrique sur les ondes de spins :

L'Hamiltonien de Dzyaloshinskii-Moriya s'écrit comme suit :

$$\mathbf{H}_D = \vec{\mathbf{D}}_{ij} \cdot (\vec{\mathbf{S}}_i \times \vec{\mathbf{S}}_j) \quad (37)$$

Si nous considérons que les vecteurs  $\vec{\mathbf{i}}, \vec{\mathbf{j}}, \vec{\mathbf{k}}$ , forme une base orthonormale dans un repère orthonormé, définissons alors une base dans le plan complexe dont les vecteurs seront  $\vec{\mathbf{n}}^+, \vec{\mathbf{n}}^-, \vec{\mathbf{Z}}$  tels que :

$$\vec{\mathbf{n}}^+ = \frac{\sqrt{2}}{2i} (\vec{\mathbf{j}} + i\vec{\mathbf{i}})$$

$$\vec{\mathbf{n}}^- = \frac{\sqrt{2}}{2i} (-\vec{\mathbf{j}} + i\vec{\mathbf{i}})$$

Ce qui donne:

$$\vec{\mathbf{i}} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{\mathbf{n}}^+ + \vec{\mathbf{n}}^-)$$

$$\vec{\mathbf{j}} = \frac{1}{\sqrt{2}} (i\vec{\mathbf{n}}^+ - i\vec{\mathbf{n}}^-)$$

Un vecteur de spin  $\vec{\mathbf{S}}_q$  s'écrit alors dans la base  $(\vec{\mathbf{n}}^+, \vec{\mathbf{n}}^-, \vec{\mathbf{Z}})$  :

$$\vec{\mathbf{S}}_q = S_q^+ \vec{\mathbf{n}}^+ + S_q^- \vec{\mathbf{n}}^- + S_q^Z \vec{\mathbf{Z}} \quad (38)$$

Avec :

$$\mathbf{S}_q^\pm = \mathbf{S}_q^x \pm i\mathbf{S}_q^y \quad (39)$$

Dans la base  $(\vec{\mathbf{n}}^+, \vec{\mathbf{n}}^-, \vec{\mathbf{Z}})$ , le vecteur  $\vec{\mathbf{D}}_{ij}$  s'écrira :

$$\vec{\mathbf{D}}_{ij} = D_{ij}^x \vec{\mathbf{i}} + D_{ij}^y \vec{\mathbf{j}} + D_{ij}^z \vec{\mathbf{k}} = D_{ij}^+ \vec{\mathbf{n}}^+ + D_{ij}^- \vec{\mathbf{n}}^- + D_{ij}^z \vec{\mathbf{Z}} \quad (40)$$

Nous obtenons alors :

$$\vec{\mathbf{D}}_{ij} = \frac{\sqrt{2}}{2} (D_{ij}^+ + D_{ij}^-) \vec{\mathbf{i}} + \frac{\sqrt{2}}{2i} (D_{ij}^+ - D_{ij}^-) \vec{\mathbf{j}} + D_{ij}^z \vec{\mathbf{Z}} \quad (41)$$

Posons :

$$D_{ij}^x = \frac{\sqrt{2}}{2} (D_{ij}^+ + D_{ij}^-)$$

$$D_{ij}^y = \frac{\sqrt{2}}{2i} (D_{ij}^+ - D_{ij}^-)$$

$$D_{ij}^z = D_{ij}^z$$

Alors :

$$D_{ij}^+ = \frac{1}{\sqrt{2}} (D_{ij}^x + iD_{ij}^y)$$

$$D_{ij}^- = \frac{1}{\sqrt{2}} (D_{ij}^x - iD_{ij}^y)$$

$$D_{ij}^z = D_{ij}^z$$

### \*) Remarque :

Dans le cas de  $\text{FeF}_3$  le terme  $\vec{\mathbf{D}}_{ij}$  est parallèle à l'axe  $[1\ 1\ 1]$  et a été estimé à **49 KG** à **0 K**.<sup>1</sup>

Dans la base  $(\vec{\mathbf{i}}, \vec{\mathbf{j}}, \vec{\mathbf{k}})$  l'Hamiltonien d'interaction  $\mathbf{H}_D$  s'écrira :

$$\mathbf{H}_D = D_{ij}^x (\mathbf{S}_i^y \cdot \mathbf{S}_j^z - \mathbf{S}_j^y \cdot \mathbf{S}_i^z) - D_{ij}^y (\mathbf{S}_i^x \cdot \mathbf{S}_j^z - \mathbf{S}_j^x \cdot \mathbf{S}_i^z) + D_{ij}^z (\mathbf{S}_i^x \cdot \mathbf{S}_j^y - \mathbf{S}_j^x \cdot \mathbf{S}_i^y) \quad (42)$$

<sup>1</sup> M. Lahlou – Mimi, *Etude des fluorures mixtes MF<sub>3</sub> (M=F<sub>e</sub>, Cr, V)*, Université du Maine, 1992, p. 8.

Son écriture dans la base  $(\vec{n}^+, \vec{n}^-, \vec{Z})$  sera :

$$\mathbf{H}_D = \mathbf{D}_{ij}^+ (\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z - \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^Z) - \mathbf{D}_{ij}^- (\mathbf{S}_i^- \cdot \mathbf{S}_j^Z - \mathbf{S}_j^- \cdot \mathbf{S}_i^Z) + \mathbf{D}_{ij}^Z (\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^- - \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^-) \quad (43)$$

L'écriture de l'Hamiltonien total incluant toutes les paires de spins  $\mathbf{i}$  et  $\mathbf{j}$  sera alors :

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_D &= \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{\mathbf{D}}_{ij} \cdot (\vec{\mathbf{S}}_i \times \vec{\mathbf{S}}_j) \\ &= \sum_{\langle i,j \rangle} [\mathbf{D}_{ij}^+ (\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z - \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^Z) + \mathbf{D}_{ij}^- (\mathbf{S}_i^- \cdot \mathbf{S}_j^Z - \mathbf{S}_i^- \cdot \mathbf{S}_j^Z) + \mathbf{D}_{ij}^Z (\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^- - \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^-)] \end{aligned} \quad (44)$$

L'équation du mouvement de spin régie par l'équation d'Heisenberg donnera alors :

$$\begin{aligned} i \hbar \frac{d\mathbf{S}_k^+}{dt} &= [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{H}_D] = \mathbf{D}_{ij}^+ \{ [\mathbf{S}_k^+, \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z] - [\mathbf{S}_k^+, \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^Z] \} \\ &\quad + \mathbf{D}_{ij}^- \{ [\mathbf{S}_k^+, \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_j^- \cdot \mathbf{S}_i^Z] - [\mathbf{S}_k^+, \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^- \cdot \mathbf{S}_j^Z] \} \\ &\quad + \mathbf{D}_{ij}^Z \{ [\mathbf{S}_k^+, \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^-] - [\mathbf{S}_k^+, \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^-] \} \end{aligned} \quad (45)$$

Un calcul analogue au précédent (III-2), nous amène à écrire l'équation générale suivante :

$$\begin{aligned} i \hbar \frac{d\mathbf{S}_k^+}{dt} &= [\mathbf{S}_k^+, \mathbf{H}_D] = \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^+ \{ \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^+ \cdot \delta_{ki} - \mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^+ \cdot \delta_{kj} \} \\ &\quad + \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^- \{ 2\mathbf{S}_j^Z \cdot \mathbf{S}_i^Z \cdot \delta_{kj} - \mathbf{S}_j^- \cdot \mathbf{S}_i^+ \cdot \delta_{ki} + \mathbf{S}_i^- \cdot \mathbf{S}_j^+ \cdot \delta_{kj} - 2\mathbf{S}_i^Z \cdot \mathbf{S}_j^Z \cdot \delta_{ki} \} \\ &\quad + \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^Z \{ 2\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z \cdot \delta_{kj} - 2\mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^Z \cdot \delta_{ki} \} \end{aligned} \quad (46)$$

Dans le modèle de deux sous réseaux **A** et **B**, avec canting des spins:

Pour un atome du sous réseau **A** ( $\mathbf{k} = \mathbf{i}$ ) :

$$i \hbar \frac{d\mathbf{S}_i^+}{dt} = \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^+ \{ \mathbf{S}_j^+ \cdot \mathbf{S}_i^+ \} + \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^- \{ -\mathbf{S}_j^- \cdot \mathbf{S}_i^+ - 2\mathbf{S}_i^Z \cdot \mathbf{S}_j^Z \} + \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^Z \{ -2\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z \} \quad (47)$$

Pour un atome du sous réseau **B** ( $\mathbf{k} = \mathbf{j}$ ) :

$$i \hbar \frac{d\mathbf{S}_j^+}{dt} = \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^+ \{ -\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^+ \} + \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^- \{ 2\mathbf{S}_j^Z \cdot \mathbf{S}_i^Z + \mathbf{S}_i^- \cdot \mathbf{S}_j^+ \} + \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij}^Z \{ 2\mathbf{S}_i^+ \cdot \mathbf{S}_j^Z \} \quad (48)$$

En posant  $\mathbf{D}_{ij}^+$  et  $\mathbf{D}_{ij}^- \ll \mathbf{D}_{ij}^Z$ , les équations du mouvement se réduisent alors :

$$i \hbar \frac{dS_i^+}{dt} = - \sum_{\langle i,j \rangle} 2D_{ij}^Z \{S_j^+ \cdot S_i^Z\} \quad (49)$$

$$i \hbar \frac{dS_j^+}{dt} = \sum_{\langle i,j \rangle} 2D_{ij}^Z \{S_i^+ \cdot S_j^Z\} \quad (50)$$

Dans l'approximation  $\mathbf{T} = \mathbf{0}$ ,  $\mathbf{K}$ , nous pouvons écrire :  
 $S_i^Z = S_A$  et  $S_j^Z = S_B$

Dans l'espace des vecteurs d'ondes  $\vec{k}$ , en écrivant que :

$$\alpha_{\vec{k}}^+ = \sum_i S_i^+ \cdot e^{-i\vec{k}\vec{r}_i}$$

$$\beta_{\vec{k}}^+ = \sum_j S_j^+ \cdot e^{-i\vec{k}\vec{r}_j}$$

La même méthode que le calcul effectué en (III-2) nous amène à :

$$i \hbar \frac{d\alpha_{\vec{k}}^+}{dt} = - 2 |\vec{D}| S_A Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) \beta_{\vec{k}}^+ \quad (51)$$

$$i \hbar \frac{d\beta_{\vec{k}}^+}{dt} = 2 |\vec{D}| S_B Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) \alpha_{\vec{k}}^+ \quad (52)$$

En choisissant des solutions sous forme d'ondes de spins progressives:

$$\alpha_{\vec{k}}^+ = \alpha_{\vec{k}0}^+ e^{i\omega t}$$

$$\beta_{\vec{k}}^+ = \beta_{\vec{k}0}^+ e^{i\omega t}$$

Nous aurons les équations suivantes :

$$- \hbar \omega \alpha_{\vec{k}0}^+ = - 2 |\vec{D}| S_A Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) \beta_{\vec{k}0}^+ \quad (53)$$

$$- \hbar \omega \beta_{\vec{k}0}^+ = 2 |\vec{D}| S_B Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) \alpha_{\vec{k}0}^+ \quad (54)$$

En tenant compte de toutes les interactions, le Hamiltonien totale s'écrira :

$$\begin{aligned} \mathbf{H} = & J_{AB} \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + J_{AA} \sum_{\langle i,i' \rangle} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_{i'} + J_{BB} \sum_{\langle j,j' \rangle} \vec{S}_j \cdot \vec{S}_{j'} - g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^A) \sum_i S_i^Z \\ & - g\mu_B (\mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_a^B) \sum_j S_j^Z + \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{D}_{ij} \cdot (\vec{S}_i \times \vec{S}_j) \end{aligned} \quad (55)$$

Ce qui nous amène à écrire la matrice dynamique suivante :

$$\begin{bmatrix} \hbar\omega + J_{AA}S_A Z_{ii'} \gamma_{ii'}(\vec{k}) - J_{AB}S_B Z_{ij} - J_{AA}S_A Z_{ii'} + g\mu_B(H_0 + H_a^A) & J_{AB}S_A Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) - 2|\vec{D}| S_A Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) \\ J_{AB}S_B Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) + 2|\vec{D}| S_B Z_{ij} \gamma_{ij}(\vec{k}) & \hbar\omega + J_{BB}S_B Z_{jj'} \gamma_{jj'}(\vec{k}) - J_{AB}S_A Z_{ij} - J_{BB}S_B Z_{jj'} + g\mu_B(H_0 + H_a^B) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \alpha_{\vec{k}0}^+ \\ \beta_{\vec{k}0}^+ \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (56)$$

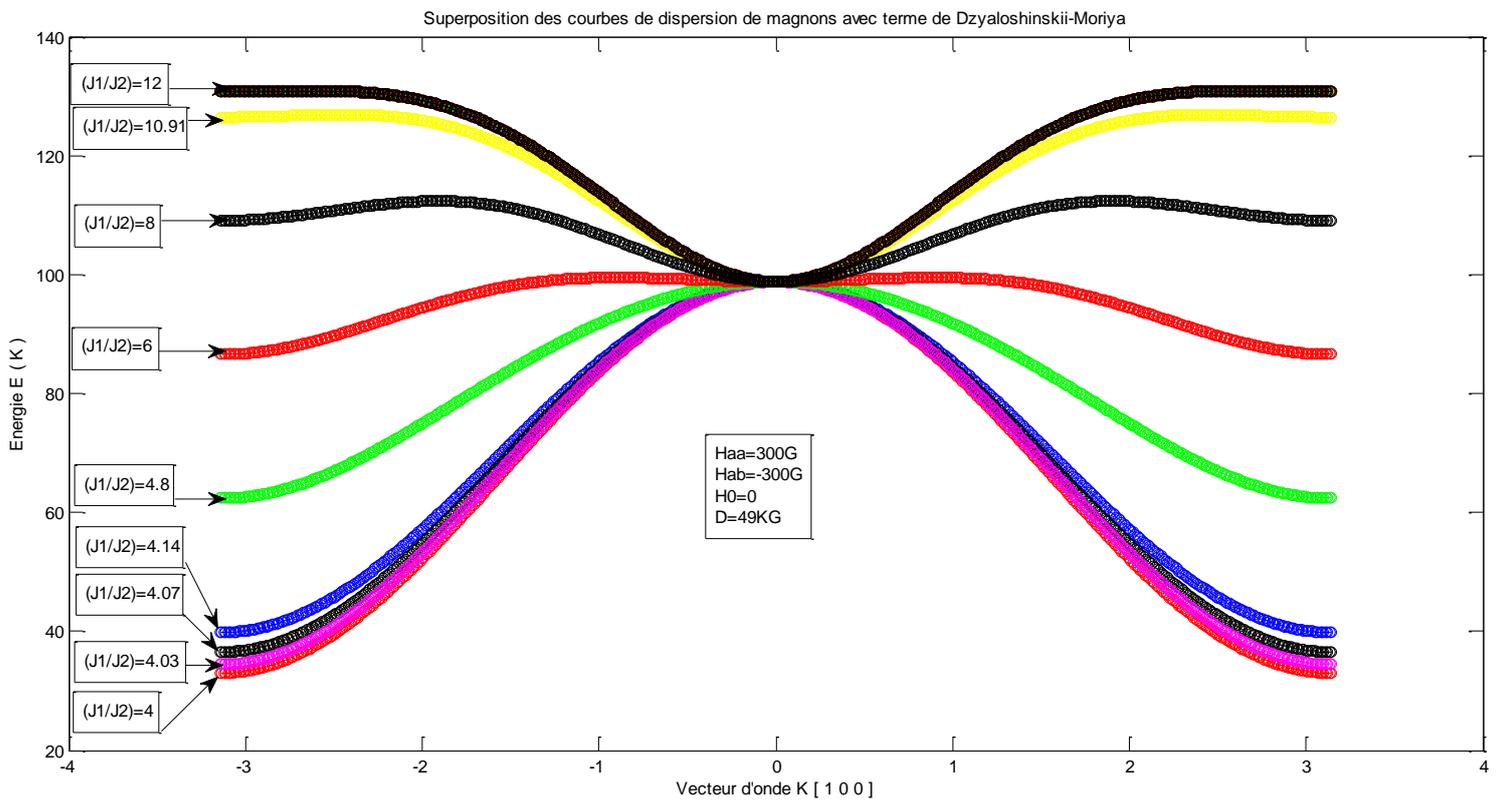
L'équation séculaire s'écrira dans ce cas :

$$\begin{aligned} & (\hbar\omega)^2 - (\hbar\omega) [J_{AB}(S_A + S_B) Z_{ij} + J_{AA} S_A Z_{ii'} (1-\gamma_{ii'}(\vec{k})) + J_{BB} S_B Z_{jj'} (1-\gamma_{jj'}(\vec{k})) - 2 g\mu_B H_0 \\ & - g\mu_B (H_a^A + H_a^B)] + J_{AA} J_{BB} S_A S_B Z_{ii'} Z_{jj'} (\gamma_{ii'}(\vec{k}) \gamma_{jj'}(\vec{k}) - \gamma_{ii'}(\vec{k}) - \gamma_{jj'}(\vec{k}) + 1) \\ & + J_{AB}^2 S_A S_B Z_{ij}^2 (1-\gamma_{ij}^2(\vec{k})) + J_{AB} J_{BB} S_B^2 Z_{ij} Z_{jj'} (1-\gamma_{jj'}(\vec{k})) + J_{AA} J_{AB} S_A^2 Z_{ii'} Z_{ij} (1-\gamma_{ii'}(\vec{k})) \\ & - g\mu_B (H_0 + H_a^A) [J_{BB} S_B Z_{jj'} (1-\gamma_{jj'}(\vec{k})) + J_{AB} S_A Z_{ij}] \\ & - g\mu_B (H_0 + H_a^B) [J_{AA} S_A Z_{ii'} (1-\gamma_{ii'}(\vec{k})) + J_{AB} S_B Z_{ij}] + g^2 \mu_B^2 (H_0 + H_a^A) (H_0 + H_a^B) \\ & + 4|\vec{D}|^2 S_A S_B Z_{ij}^2 \gamma_{ij}^2(\vec{k}) = 0 \end{aligned} \quad (57)$$

### III-4-4) Résultats et discussion:

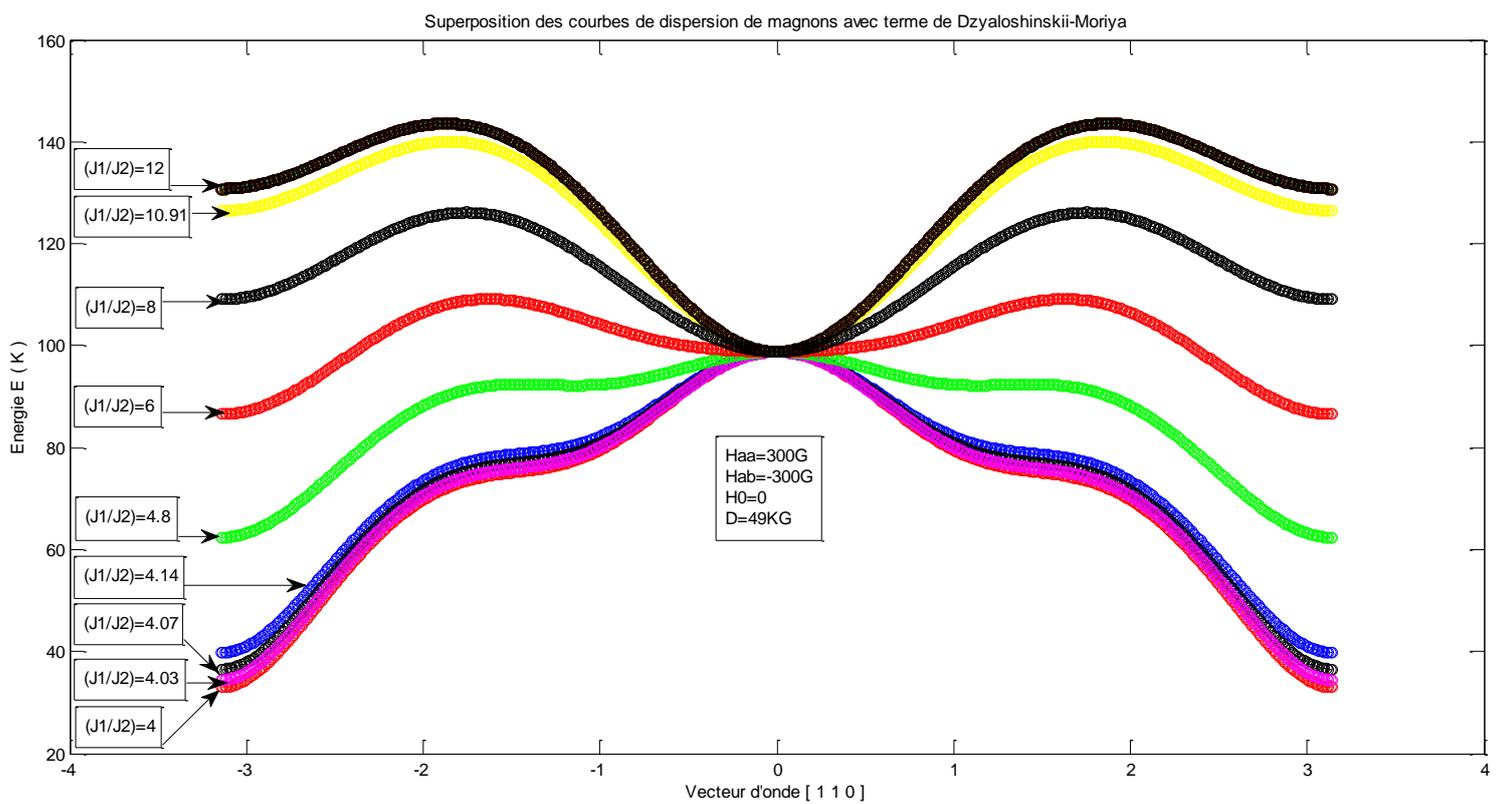
Dans les trois directions de haute symétrie du cube, nous obtenons les résultats suivants :

#### III-4-4-1) Direction [1 0 0] :



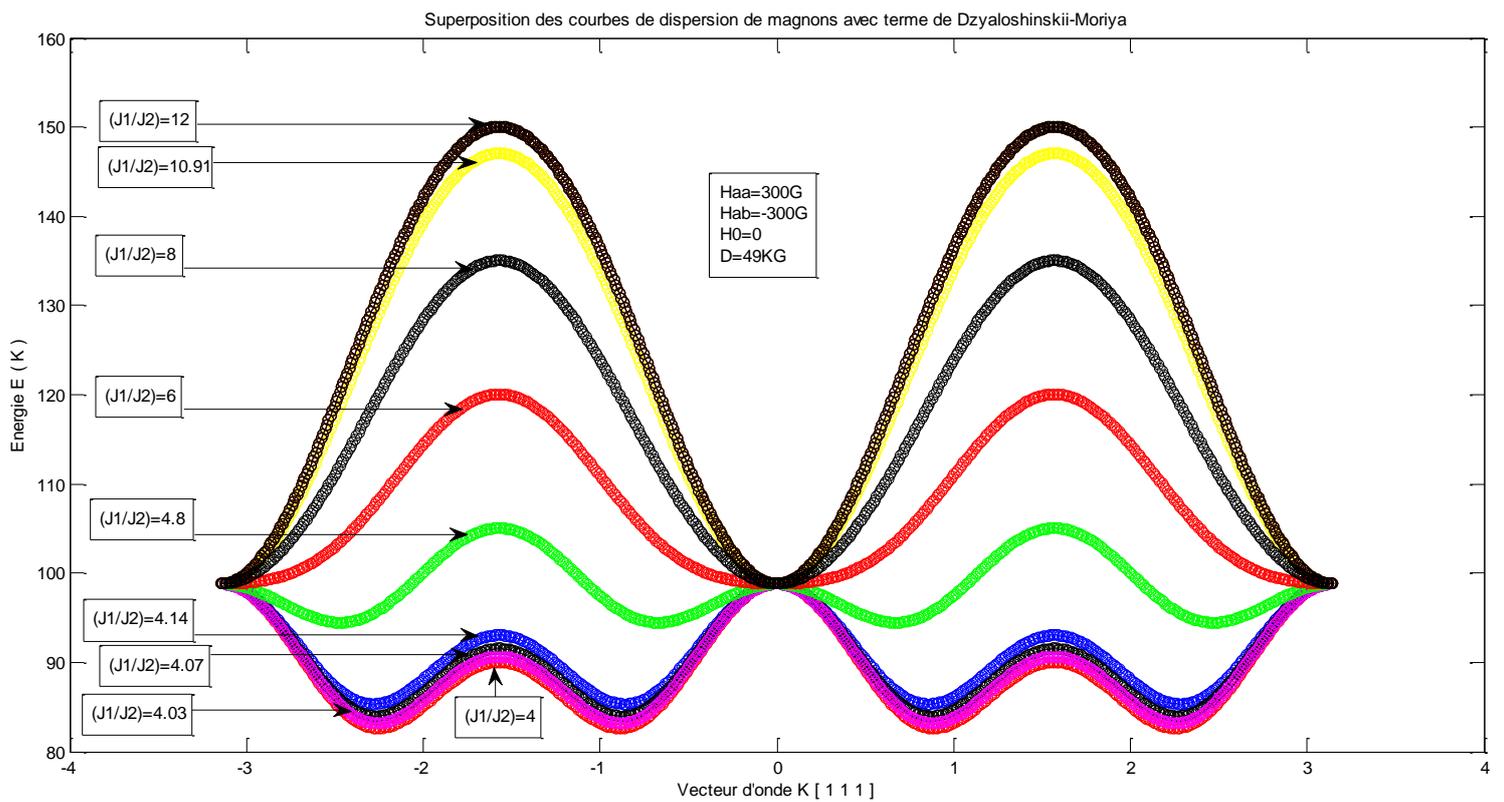
**FIG. 20 :** Superposition des courbes de dispersion de magnons avec terme de Dzyaloshinskii-Moriya, pour différentes valeurs du rapport  $J_1/J_2$ .

### III-4-4-2) Direction [1 1 0] :



**FIG. 21 :** Superposition des courbes de dispersion de magnons avec terme de Dzyaloshinskii-Moriya, pour différentes valeurs du rapport  $J_1/J_2$ .

### III-4-4-3) Direction [1 1 1] :



**FIG. 22 :** Superposition des courbes de dispersion de magnons avec terme de Dzyaloshinskii-Moriya, pour différentes valeurs du rapport  $J_1/J_2$ .

### III-4-4-4) Interprétation et conclusion :

Comparé aux résultats obtenus avant l'introduction du terme Dzyaloshinskii-Moriya, en plus de l'apparition du mode mou, qui met en évidence le fait qu'il y a bien une transition de phase magnétique, nous remarquons aussi la naissance d'une certaine énergie de gap, et ce dans les trois directions considérées.

Le changement de comportement des magnons pour des valeurs du rapport  $\mathbf{J}_1/\mathbf{J}_2$  proche de **4**, qui se manifeste par l'apparition de ce qu'on appelle le mode mou (perte de dynamisme de la part des magnons), met en exergue le fait qu'il y a bien une transition de phase magnétique, qui à lieu au point  $(\mathbf{J}_1/\mathbf{J}_2)=\mathbf{4}$  (**FIG. 11**).

L'introduction de l'Hamiltonien de Dzyaloshinskii-Moriya (D-M), induit comme répercussion sur le spectre des magnons, l'apparition d'une énergie de gap, qu'on impute à la naissance d'un ferromagnétisme dans un composé pourtant antiferromagnétique, via le « Canting » des moments magnétiques incorporé par cette même interaction.

# **Conclusion générale**

## Conclusion générale :

Au cours de ce travail, nous avons traité la question de la frustration magnétique, et principalement la frustration induite par la compétition des interactions de superéchange antiferromagnétiques entre premiers et seconds voisins.

Dans le premier chapitre, nous avons exposé un aperçu général de la frustration magnétique. Nous avons pu mettre en évidence les conséquences induite par cette dernière et constaté qu'elle mène à une dégénérescence de l'état fondamental du système, ainsi qu'à l'inhibition d'un ordre magnétique à longue portée.

Dans le second chapitre, nous avons abordé la description du composé étudié qui constitue un cas d'école pour l'étude de la frustration magnétique, et les différents paramètres susceptibles de nous renseigner sur ce mécanisme de frustration. Ceci nous a conduits à affirmer que le meilleur outil de mesure du degré de frustration d'un système magnétique peut être décrit par la fonction de contrainte  $F_C$ , puisque celle-ci représente une quantification de la frustration dans un système magnétique donné. Nous avons également pu mettre en exergue l'existence d'une transition de phase magnétique, qui se traduit par la rupture du plateau et le début d'une avalanche au point  $\frac{J_{12}}{J_{11}} = \frac{J_{12}}{J_{22}} = 4$ .

Dans le troisième chapitre, qui a fait l'objet d'un calcul d'onde de spins, nous avons remarqué dans un premier temps -sans l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya-, l'apparition d'un mode mou, qui corrobore la présence d'une transition de phase magnétique au point  $\frac{J_{12}}{J_{11}} = \frac{J_{12}}{J_{22}} = 4$ . En introduisant l'Hamiltonien de Dzyaloshinskii-Moriya (D-M), nous avons pu noter l'incidence de la naissance du ferromagnétisme dans un composé antiferromagnétique, qui se révèle par l'apparition d'une énergie de gap.

Comme perspective de ce modeste travail, nous pouvons proposer une étude sur la frustration magnétique en considérant une brisure ou une réduction de symétrie, c'est-à-dire en présence d'une surface. Nous pouvons aussi envisager l'éventualité d'aborder la problématique de la frustration dans des systèmes ferrimagnétiques.

## Bibliographie :

1. G. TOULOUSE, «Theory of the frustration effect in spin glasses : I», *Communications on Physics*, 2 :115, (1977).
2. H. GUERAULT, *Propriétés structurales et magnétiques de poudres de fluorures nanostructurées MF<sub>3</sub> (M=F<sub>e</sub>, Ga) obtenues par broyage mécanique*, Université du Maine, (2000).
3. I. E. DZIALOSHINSKII, «A thermodynamic theory of weak ferromagnetism of antiferromagnetics», *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 4, 241, (1959).
4. J. ROBERT, *Systèmes magnétiques à frustration géométrique : approches expérimentale et théorique*, Université Joseph Fourier- Grenoble1, (2007), iramis. Cea. Fr/llb/phocea/file. Php, www. Google.fr.
5. J. VILLAIN, «Insulating spin glasses», *Zeitschrift fur Physik B*, 33:31, (1979).
6. K. MARTY, *Etude des Langasites magnétiques. De la frustration magnétique au multiferroïsme*, Université Joseph Fourier - Grenoble, (2008), hal. Inria. Fr/docs/00/35/15/75/PDF/Thèse Karol. PDF, www. Google. Fr.
7. L. MESSIO, *Etats fondamentaux et excitations de systèmes magnétiques frustrés, du classique au quantique*, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, (2010), ipht. Cea. Fr/docsph/rt/articles/t10/144/public/Thèse-Messio. PDF, www. Google. Fr.
8. L. PAULING, «The structure and entropy of ice and of other crystals with some randomness of atomic arrangement», *Journal of the American Chemical Society*, 57:2680, (1935).
9. M. LAHLOU – MIMI, « Computer simulation and magnetic frustration in cubic antiferromagnets », *Journal of magnetism and magnetic materials* 150(1995)263-269, (1995), <http://www. Science direct. Com>.
10. M. LAHLOU – MIMI, *Etude des fluorures mixtes MF<sub>3</sub> (M=F<sub>e</sub>, Cr, V)*, Université du Maine, (1992).
11. M. TAMINE, *Contribution à l'étude des excitations magnétiques de surface des systèmes antiferromagnétiques frustrés*, Université du Maine, (1994).
12. P. LACORRE, « The constraint functions: an attempt to evaluate the constraint rate inside structures that undergo ordered magnetic frustration », *J. Phys. C: Solid state Phys.* 20 L775, (1987), <http://iopscience.iop.org/0022-3719/20/29/004>.

13. P. ROVILLAIN, *Une approche optique de l'intrication entre le magnétisme et la ferroélectricité dans les multiferroïques*, Université Pierre et Marie Curie, (2011), [www. Mpq. Univ-paris 7. Fr](http://www.Mpq.Univ-paris7.fr), [www. Google. Fr](http://www.Google.Fr).
14. S. PETIT, *Neutron et Dynamique de spin*, Habilitation à diriger les recherches, LLB CE-Saclay F-91191 Gif sur Yvette, (2010), [www. Llb. Cea. Fr/habilitation/petit-2010.PDF](http://www.Llb.Cea.Fr/habilitation/petit-2010.PDF), [www. Google.fr](http://www.Google.fr).
15. T. MORIYA, « Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism », *Physical Review*, 120, 91, (1960).
16. Y. CHAPUIS, *Frustration géométrique, transitions de phase et ordre dynamique*, Université Joseph Fourier- Grenoble1, (2009), [tel. Archives-ouvertes. Fr/docs/00/46/36/43/.../Chapuis-Yann-manuscrit. PDF](http://tel.Archives-ouvertes.Fr/docs/00/46/36/43/.../Chapuis-Yann-manuscrit.PDF), [www. Google. Fr](http://www.Google.Fr).