

## **Etude des cobaltates fortement dopés par méthodes premiers principes et théorie du champ moyen dynamique étendue.**

### Résumé :

Comme de nombreux autres oxydes de métaux de transition lamellaires, les cobaltates dopés au sodium,  $\text{Na}_x\text{CoO}_2$ , présentent un riche diagramme de phase. Les nombreuses instabilités (magnétiques, de charge) qui les caractérisent seraient notamment le fruit des corrélations électroniques. Dans cette thèse, nous nous intéressons au cas fortement dopé  $x=2/3$  (proche de la limite de l'isolant de bande). Expérimentalement, ce composé est sujet à une disproportion de charge locale sur les atomes de cobalt, ce qui en fait un terrain d'étude privilégié pour le calcul des fonctions de corrélation de charge. Le traitement théorique de ce système est difficile à bien des égards. D'abord, la corrélation électronique demande de recourir à des approximations avancées. Ensuite, le système est sensible aux détails microscopiques, tels que transcrits dans la structure électronique réelle. Dans cette thèse, nous abordons ces deux aspects, à travers une approche sur modèle et une approche *ab initio*.

Nous examinons d'abord l'effet des corrélations au niveau d'un modèle sur réseau triangulaire, pertinent pour les cobaltates. La compétition entre les interactions de Coulomb locale et non-locale sur un modèle de Hubbard étendu donne lieu à des fluctuations de charge, que nous traitons grâce à la théorie du champ moyen dynamique étendue. Nous dressons le diagramme de phase de notre modèle en fonction des interactions locales et non-locales. Celui-ci présente une transition du second ordre entre un état métallique homogène et une phase ordonnée de charge. Nous calculons les observables à une et deux particules dans la phase homogène, et nous déterminons l'effet des corrélations sur ces deux types d'observables. Nous interprétons ces résultats comme des conséquences du fort dopage. Nous identifions une région du diagramme de phase où la partie statique de l'interaction de Coulomb écrantée devient négative. Enfin, nous montrons comment incorporer un terme de Fock non-local à ces calculs, et nous détaillons son effet sur le diagramme de phase et sur les observables physiques.

En complément de notre approche sur modèle, nous étudions les détails microscopiques du matériau réel grâce à la théorie de la fonctionnelle de la densité. Nous analysons le rôle de l'hybridation avec l'oxygène et des processus de saut électronique sur la structure de bandes pour les plans de cobalt-oxygène. Nous clarifions l'effet de certains paramètres physiques, tels que le dopage au sodium, l'arrangement cristallin ou le magnétisme, sur la structure électronique. Puis nous calculons la susceptibilité de charge selon les premiers principes, selon des approximations suggérées par notre étude de modèle sur réseau.

La comparaison entre les calculs sur modèle et *ab initio* montre que ces approches se complètent l'une l'autre. D'une part, le modèle permet de dégager les approximations pertinentes pour le calcul des fonctions de corrélation de charge. D'autre part, les calculs *ab initio* et la compréhension des processus microscopiques sont le préalable à la construction d'un modèle réaliste et prédictif.