



Coherence et localisation dans les systemes d'electrons fortement correles

Serge Florens

► To cite this version:

Serge Florens. Coherence et localisation dans les systemes d'electrons fortement correles. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2003. Français. NNT: . tel-00005825

HAL Id: tel-00005825

<https://theses.hal.science/tel-00005825>

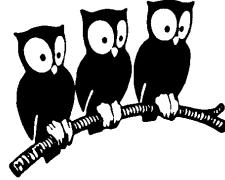
Submitted on 8 Apr 2004

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

LABORATOIRE DE PHYSIQUE THÉORIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS 6

Spécialité : **PHYSIQUE THÉORIQUE**

présentée par

Serge FLORENS

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS 6

Sujet :

**COHÉRENCE ET LOCALISATION DANS LES SYSTÈMES
D'ÉLECTRONS FORTEMENT CORRÉLÉS**

Soutenue le 17 juin 2003 devant le jury composé de :

Mr. Denis FEINBERG (Rapporteur)

Mr. Antoine GEORGES (Directeur)

Mr. Francisco GUINEA (Rapporteur)

Mr. Denis JÉROME

Mme. Claire LHUILLIER (Présidente)

Mr. Gilles MONTAMBAUX

*À mes parents et à Eugénie,
mon électron corrélé.*

Remerciements

C'est un réel plaisir de débiter cette thèse par des remerciements, car cette entreprise longue et difficile ne peut se faire tout seul. Traditionnellement, on remercie le directeur de thèse pour son encadrement et ses qualités de chercheur, les collègues pour l'ouverture sur des sujets nouveaux, le personnel du laboratoire pour l'aide logistique, et la famille et les amis pour le soutien moral et la vie non-scientifique. Je pense avoir eu la chance rare de trouver chez Antoine Georges un directeur de thèse qui a été pour moi tout cela à la fois. Pour donner un exemple, notre dernier semestre de recherche à Santa Barbara (organisé de A à Z par ses soins) a été aussi passionnant scientifiquement qu'agréable au quotidien. Avec le recul, je voudrais surtout remercier Antoine pour m'avoir encouragé avec patience et compétence pendant ces quatre années.

Le contenu de ma thèse a été fortement influencé par d'autres chercheurs. Je remercie ainsi sincèrement Olivier Parcollet, mon prédécesseur et passeur de témoin, dont les codes C++ m'ont permis de me lancer dans de nombreux projets. Le contact avec des expérimentateurs a été une source d'enseignements inégalée. Je remercie donc Patrice Limelette pour ses belles expériences et les nombreuses interactions que nous avons eues, ainsi que Marco Gioni et Luca Perfetti pour une collaboration électronique à double titre. Je suis reconnaissant aux deux postdocs du groupe pour avoir partagé avec moi plus que leur intérêt pour la physique : une belle musique avec Rahul Siddharthan et une belle maison avec Silke Biermann. J'ai particulièrement apprécié les nombreuses rencontres avec Gabriel Kotliar, qui semble toujours avoir une idée dans son sac. Au cours du "workshop" à Santa Barbara, j'ai pu rencontrer Theo Costi, Paco Guinea, Pablo San José, Sergei Pankov et Ping Sun ; cela a été un vrai plaisir de travailler avec eux. Du côté d'Orsay, je remercie Bernard Amadon, Karol Borejsza, Luca de' Medici, Nicolas Dupuis et Thierry Giamarchi pour de nombreuses discussions.

Je voudrais aussi remercier les membres du jury, Denis Jérôme, Claire Lhuillier et Gilles Montambaux, en exprimant une reconnaissance particulière envers Denis Feinberg et Francisco Guinea, qui ont accepté la lourde tâche d'être rapporteurs.

Dans le petit club des francophiles californiens, je remercie Chitra, Marcelo Rozenberg, André-Marie Tremblay et Kay Wiese. Le groupe de travail ENS/Orsay/Saclay (animé entre autres par Benoit Douçot, Pierre Le Doussal, Roderich Moessner, Edmond Orignac, Catherine Pépin) a été l'occasion de s'intéresser à d'autres problèmes. Je n'oublie pas bien sûr de saluer l'équipe très zen de la Dc13 (Giulio Biroli, Pascal Chauve, Grégory Schehr, Guilhem Semerjian et Christophe Deroulers), ainsi que les thésards du plateau d'Orsay.

Je remercie finalement la direction du LPT-ENS et du LPS d'Orsay pour leur accueil dans les meilleures conditions de travail, en particulier Michelle Lelièvre, Marcelle Martin, Nicole Ribet et Christiane Séguy pour leur aide précieuse et toujours dans la bonne humeur.

Bien entendu, rien n'aurait été possible sans les meilleurs remèdes de ma famille et belle-famille (soleil, musique, petits plats), et sans les quelques irréductibles qui ont tenté de me faire penser à autre chose que la physique (Eugénie en tête).

Table des matières

Avant-propos	11
Partie I: Transition de Mott dans les matériaux corrélés	15
1 Fermions corrélés: matériaux, modèles et techniques	17
1.1 Matériaux à fortes corrélations	17
1.1.1 Généralités	17
1.1.2 Un phénomène générique aux matériaux corrélés: la transition de Mott	18
1.1.3 Signatures des corrélations fortes dans l'état métallique	22
1.2 Modélisation des matériaux corrélés	26
1.2.1 Modèles de basse énergie	26
1.2.2 Échec des approches traditionnelles pour la transition de Mott	27
1.3 Théorie de champ moyen dynamique	28
1.3.1 Méthodologie	28
1.3.2 La transition de Mott en champ moyen dynamique	30
1.3.3 Quelques questions d'actualité	33
2 Matériaux corrélés: comparaison théorie/expérience	37
2.1 Transport dans κ -BEDT-TTF	37
2.1.1 Présentation expérimentale	37
2.1.2 Calcul de la résistivité en DMFT	43
2.1.3 Nouveau diagramme de phase	47
2.2 Transition de Mott en surface de TaSe ₂ : photoémission	48
2.2.1 Présentation de l'expérience	48
2.2.2 Lien avec la théorie	53
2.3 Conclusion	55
Article 1	59
Article 2	65

Partie II: Méthode de rotateurs esclaves et application à la transition de Mott	71
3 Les rotateurs: généralités et modèles d'impuretés quantiques	73
3.1 Dégénérescence orbitale et corrélations	73
3.1.1 Motivation physique	73
3.1.2 Problème étudié	74
3.1.3 Approches numériques du problème	74
3.1.4 Théorie de perturbation	75
3.1.5 Bosons esclaves: $U = \infty$	75
3.1.6 Bosons esclaves à U fini?	77
3.2 Introduction au rotateur esclave	79
3.3 Rotateur condensé à basse énergie: effet Kondo	80
3.4 Rotateur dynamique: équations intégrales à haute énergie	83
3.4.1 Limite multi-canal et équations intégrales	83
3.4.2 Origine de l'effet Kondo	86
3.5 Conclusion	87
4 Transition de Mott: approche de rotateurs esclaves	91
4.1 Une image simple de la transition de Mott: rotateurs condensés	91
4.1.1 Équations de champ moyen	91
4.1.2 La transition de Mott	92
4.1.3 Étude numérique des équations de champ moyen	95
4.1.4 Conclusion partielle	96
4.2 Rotateurs dynamiques et DMFT	98
4.2.1 Résolution des équations DMFT	98
4.2.2 Étude de la dégénérescence orbitale	101
4.2.3 Conclusion partielle	102
4.3 Résultats exacts sur la transition métal-isolant à grande dégénérescence orbitale	103
4.3.1 Méthode projective multi-orbitale	103
4.3.2 Solution explicite à grand N	105
4.4 Conclusion	108
Article 3	111
Article 4	129
5 Effets des fluctuations spatiales et de l'écrantage sur la transition de Mott	145
5.1 Scénario pour la transition de Mott en dimension finie	145
5.1.1 Motivation	145
5.1.2 Modèle de Hubbard à trois dimensions: rotateurs esclaves	146
5.1.3 Discussion	152
5.2 Effet de l'écrantage sur la transition métal-isolant	154
5.2.1 Introduction	154

5.2.2	EDMFT: présentation	155
5.2.3	Limite atomique dynamique	156
5.2.4	Traitement en rotateur esclave	157
5.2.5	Écrantage et transition de Mott	159
5.2.6	Perspectives	161

Partie III: Corrélations électroniques dans les structures mésoscopiques 165

6	Circuits à un électron: réalisations et théorie	167
6.1	Les points quantiques	167
6.1.1	Réalisation expérimentale	167
6.1.2	Description théorique	171
6.2	Les îles métalliques	174
6.2.1	Réalisation	174
6.2.2	Étude théorique	175
7	Compétition entre blocage de Coulomb et cohérence électronique	183
7.1	Approche théorique unifiée pour les structures à un électron	183
7.1.1	Île métallique: blocage de Coulomb	184
7.1.2	Point quantique: blocage de Coulomb et effet Kondo	185
7.2	Régimes intermédiaires de conduction dans les points quantiques	188
7.2.1	Effets de l'espacement des niveaux	189
7.2.2	Crossover inverse	191
7.3	Conclusion	194
Article 5		197

Partie IV: Fluctuations magnétiques dans les systèmes de fermions corrélés 213

8	Fluctuations magnétiques	215
8.1	Transition de phase quantique dans les fermions lourds	215
8.1.1	Présentation des résultats expérimentaux et interprétation théorique	215
8.1.2	Corrections logarithmiques dans la théorie d'Hertz-Millis $d = z = 2$	218
8.1.3	Faiblesses de l'approche EDMFT pour les phénomènes critiques	218
8.1.4	Quelques remarques finales	220
8.2	Au delà des théories locales: application au magnétisme frustré	221
8.2.1	Système de spins sur le réseau Kagomé	221
8.2.2	Approche de cluster-EDMFT	224
8.2.3	Discussion critique	226

Article 6	229
Article 7	243
Appendices:	249
A Notations et formules utiles	251
A.1 Représentation spectrale	251
A.2 Densités d'état diverses	253
B Autour de la limite atomique	255
C Résolution numérique des équations intégrales	259
C.1 Sur l'axe imaginaire	259
C.2 Méthode de calcul des fonctions spectrales	261
D Quantités à deux particules avec la méthode de rotateur	263
E EDMFT: formulations fonctionnelles	267
E.1 Première formulation	267
E.2 Seconde formulation	270
Liste de publications:	273

Avant-propos

Le bouillonnement intellectuel qui agite le sujet des fermions fortement corrélés tient probablement tant à la richesse et à la complexité des phénomènes observés dans ces matériaux, qu'à la rapidité avec laquelle de nouveaux composés intéressants sont synthétisés. Les supraconducteurs à haute température critique, découverts il y a une quinzaine d'années, attirent encore une activité expérimentale et théorique importante, mais, grâce aux progrès récents dans les méthodes de lithographie, un effort croissant va aussi dans l'étude de structures "artificielles" de taille mésoscopique comme les points quantiques, dans lesquelles les effets d'interactions électroniques sont aussi importants. Ces exemples "phares" ne doivent bien entendu pas masquer la grande diversité de ces matériaux, et l'on pourrait tout aussi bien citer les composés à fermions lourds ou à magnéto-résistance colossale, les conducteurs organiques, les nanotubes de carbone, et même les condensats de Bose (bientôt de Fermi ?) dans des pièges lumineux périodiques.

Pour le théoricien, ces divers systèmes expérimentaux présentent un défi. D'une part, il s'agit de comprendre quels phénomènes fondamentaux gouvernent le comportement collectif des électrons dans ces matériaux (qui n'est pas forcément très intuitif, si l'on pense à l'effet Hall quantique fractionnaire), et quelles excitations vont dominer la physique de basse énergie. Par cet aspect des choses, la conception de modèles et leur étude par des méthodes de physique théorique (allant de la théorie des champs aux simulations numériques) restent un travail essentiel. D'autre part, face à la myriade d'effets observés dans ces systèmes, à la variété des phases en compétition et à la diversité des échelles d'énergie en jeu, cette tâche est en pratique extrêmement ardue. On peut bien sûr espérer identifier un point fixe simple pour comprendre le comportement de basse température dans tel ou tel composé, mais en réalité les régimes universels sont souvent repoussés dans une région limitée du diagramme de phase, à des températures inférieures à l'énergie de Fermi (renormalisée) ou cachés sous les phases ordonnées. On a alors besoin de méthodes plus sophistiquées pour décrire les "crossovers" qui prennent place dans les conditions expérimentales.

Il est aussi bon de souligner que ce domaine est actuellement dans une période de transition où l'on voit le rapprochement des techniques actuelles de problème à N corps (qui constituent l'état de l'art dans le traitement des interactions entre électrons dans les solides) avec des calculs *ab-initio* de structure électronique (qui ont l'ambition, en partant de l'équation de Schrödinger, de traiter toutes les échelles d'énergie). Mis à part la naissance de nouveaux acronymes barbares tels "LDA+DMFT(QMC)", ceci offre une nouvelle voie de développement des calculs réalistes pour les matériaux corrélés. Ce domaine de recherche entraîne par ailleurs une motivation supplémentaire pour mettre au point des techniques plus simples afin de traiter les corrélations électroniques.

Cependant, la complexité des modèles de fermions corrélés est en général très grande, et les méthodes exactes envisageables pour résoudre ces modèles se trouvent être efficaces dans des contextes très limités (solution analytique de certains modèles unidimensionnels) ou ont du mal à franchir la barrière thermodynamique (calculs numériques). Il est souvent plus aisé de recourir à des approximations contrôlées par un petit paramètre, comme l'inverse du nombre de degrés de liberté orbital, de la taille du spin, ou de la dimension (méthodes grand N, grand S, grand d). Des méthodes de ce type ont été développées et étudiées au cours de cette thèse, avec l'idée de comprendre mieux les propriétés fondamentales des systèmes de fermions corrélés, mais aussi pour développer des techniques qui pourront être utiles en pratique. Parallèlement, des calculs ont été menés en relation avec des expériences récentes menées sur ces systèmes.

Cette thèse est construite autour de deux thèmes distincts, possédant toutefois des aspects physiques et méthodologiques communs : les corrélations fortes dans les solides et l'influence des interactions électroniques dans les structures mésoscopiques. Chaque thème est abordé par un chapitre introductif qui couvre les généralités à la fois expérimentales et théoriques du sujet (chapitres 1 et 6). Tous les autres chapitres sont dédiés à mes travaux de recherche, incluant si nécessaire une motivation plus détaillée des problèmes qui ont été considérés. La plupart du temps, les détails techniques sont reportés à la lecture des articles de recherche (compilés à la fin de chaque chapitre) et des appendices, sauf en ce qui concerne les travaux non encore publiés, qui sont présentés dans le corps de la thèse. L'organisation du manuscrit est la suivante :

Le chapitre 1 est une introduction générale aux systèmes de fermions corrélés, avec l'emphase sur le phénomène de la transition métal-isolant (de Mott) due aux corrélations électroniques. Ceci permettra de présenter les phénomènes de base observés dans ces matériaux, et de donner la présentation d'une approche théorique possible, la théorie de champ moyen dynamique ¹.

Le chapitre 2 illustre des calculs entrepris dans le but de comprendre le rôle des interactions entre électrons dans les solides, grâce à une comparaison directe à deux études expérimentales récentes sur ces systèmes. La première de ces expériences, réalisée par P. Limelette à Orsay, constitue une étude détaillée du transport de charge dans des composés organiques bidimensionnels. La comparaison avec les prédictions de la théorie de champ moyen dynamique a été bénéfique autant pour interpréter ces données, que pour cerner les limites de la modélisation que nous avons effectuée. La seconde expérience, menée par L. Perfetti et M. Grioni à Lausanne, propose une étude par photoémission de la transition de Mott en surface d'un échantillon de TaSe₂ et démontre, en accord avec nos calculs théoriques, la forte redistribution de poids spectral dans la densité d'état électronique qui est associée à ce phénomène.

Le chapitre 3 présente une idée qui est au coeur de la partie théorique de cette thèse : la représentation de la charge électronique par une variable collective de phase (rotateur esclave), qui permet un traitement non-perturbatif de l'interaction coulombienne. Pour illustrer l'utilité et la simplicité de cette approche, on s'intéressera ici à des problèmes d'impureté quantique, qui interviennent dans la formulation moderne de la théorie de

¹ "Dynamical Mean-Field Theory", que l'on abrègera souvent en DMFT.

champ moyen dynamique, mais aussi dans la modélisation des structures mésoscopiques (chapitre 7). Cela permettra par ailleurs d'introduire l'effet Kondo, dont on parlera à plusieurs reprises par la suite.

Le chapitre 4 est l'application de la méthode de rotateur esclave à l'étude de la transition de Mott dans le cadre du champ moyen dynamique. La question de la dégénérescence orbitale sera examinée là plus en détail, avec une comparaison de nos résultats à une nouvelle limite de N grand ainsi qu'à des calculs numériques. On s'efforcera par ailleurs de donner une image physique simple de la transition de Mott grâce à ces nouvelles variables de rotateurs.

Le chapitre 5 est l'occasion de mettre en oeuvre l'idée de rotateurs, testée dans les chapitres précédents, en vue de lever certaines limitations inhérentes à la théorie de champ moyen dynamique (dans sa formulation la plus simple). On analysera ainsi des effets physiques dus à la connectivité finie du réseau, afin de mieux comprendre les singularités associées à la limite de grande dimension. La technique de rotateur trouvera aussi une application naturelle à la solution de modèles possédant une interaction Coulombienne à plus longue portée, dans un schéma dit "Extended DMFT". Cette dernière approche a conduit à une étude la question de l'écrantage près de la transition de Mott.

Le chapitre 6 constitue l'introduction au second thème, et aborde des aspects liés aux corrélations dans les structures mésoscopiques. Avec la présentation de quelques réalisations expérimentales simples, il est détaillé les phénomènes physiques de base exhibés par ces systèmes : le blocage de Coulomb et l'effet Kondo, rencontrés dans un contexte différent au cours des chapitres précédents.

Le chapitre 7 est consacré à l'utilisation de la méthode de rotateurs esclaves appliquée aux points quantiques. La question physique que nous avons examinée est la restauration de la cohérence à basse température dans ce type de structure, ainsi que dans des matériaux macroscopiques granulaires. Nous montrerons que la théorie présentée ici permet une approche générale des effets d'interaction dans les structures à un électron.

Le chapitre 8 est un peu déconnecté des travaux précédents et concerne des questions de magnétisme. Il comprend une introduction au problème du point critique quantique dans les composés de fermions lourds, pour lequel nous avons étudié en détail l'approche de fluctuations de spins. La seconde partie de ce chapitre présente une tentative pour appliquer la théorie de champ moyen dynamique à des systèmes de spins frustrés, grâce à un schéma de "cluster-DMFT".

Partie I

Transition de Mott dans les matériaux corrélés

1. Fermions corrélés : matériaux, modèles et techniques

Ce chapitre propose une introduction générale aux systèmes de fermions corrélés, présentant certains résultats expérimentaux marquants, ainsi que la théorie de champ moyen dynamique. L'accent sera mis ici sur les effets des corrélations électroniques dans la phase normale avec l'exemple de la transition de Mott, qui sera omniprésente tout au long de cette thèse. Il faut noter que d'autres thèmes étudiés ne seront introduits que plus tard, comme les systèmes mésoscopiques (chapitre 6) ou le magnétisme quantique (chapitre 8). Le chapitre 2 sera aussi l'occasion d'examiner un peu plus en détail deux matériaux corrélés : le conducteur organique bidimensionnel κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl et le dichalcogène TaSe $_2$ (en surface).

1.1 Matériaux à fortes corrélations

1.1.1 Généralités

Pour commencer, il est bon de définir ce que l'on entend par "systèmes de fermions fortement corrélés", en se posant tout d'abord la question au niveau expérimental. On peut par exemple remarquer que deux métaux ¹, l'aluminium et l'oxyde La $_{1.8}$ Sr $_{0.2}$ CuO $_4$, présentent des propriétés physiques remarquablement différentes. Le premier montre en effet un état métallique et une phase supraconductrice à très basse température qui se comprennent dans une image d'électrons quasi-libres (formalisée par le duo des théories BCS et du liquide de Fermi). Dans le second, la force des interactions entre électrons et la bidimensionalité des plans Cu-O sont responsables de propriétés anormales dans la phase métallique (e.g. en transport), avec l'émergence d'un ordre supraconducteur à des températures assez élevées (environ 40K). Ces anomalies nous poussent à classer ce composé parmi les matériaux corrélés. Cet exemple extrême ne doit pas cacher le fait qu'une multitude de matériaux à fortes corrélations possèdent un état métallique aux propriétés très analogues à celles de métaux simples comme Al, en poussant cependant l'image du liquide de Fermi dans ses retranchements. C'est le cas des composés de fermions lourds comme UPt $_3$, et, comme on le verra en détail plus bas, de certains oxydes de métaux de transitions. On peut déjà citer les composés V $_2$ O $_3$ et Sr $_{1-x}$ La $_x$ TiO $_3$, qui présentent d'importants effets de renormalisation dus aux interactions, sans violer dramatiquement le liquide de Fermi [1].

¹On caractérise la métallicité d'un matériau par une résistivité croissante avec la température.

1.1.2 Un phénomène générique aux matériaux corrélés : la transition de Mott

On peut tout d'abord s'interroger sur l'origine des fortes interactions présentes dans ces matériaux, en soulignant toutefois l'importance de facteurs purement géométriques, comme la basse dimensionalité ou la frustration magnétique. Qualitativement, la position dans la table périodique des éléments métalliques qui composent les matériaux corrélés précédemment cités nous donne une première piste. Ils ont tous en commun la présence d'orbitales $3d$, $4f$ ou $5f$ qui donnent lieu dans le solide à des bandes étroites, partiellement remplies et proches du niveau de Fermi. Dès lors, la question se pose de façon plus quantitative, puisque les valeurs de la largeur de bande et de l'interaction Coulombienne dépendent fortement de la structure précise de chaque composé. Un facteur important est par exemple l'écrantage de l'interaction dans la bande de conduction par les bandes de valence voisines. Dans le cas des oxydes, les atomes métalliques de la structure réalisent une hybridation avec les oxygènes voisins, qui réduit en général la largeur de bande, augmentant ainsi l'effet relatif des corrélations. De tels effets mènent à donc altérer fortement à la fois la valeur de l'interaction de Coulomb ² et l'énergie cinétique des électrons. Notons W cette dernière, U l'interaction écrantée sur l'orbitale d , et Δ l'énergie de transfert de charge entre l'orbitale d et l'orbitale p voisine, dans l'exemple d'un oxyde de métal de transition. On constate qu'on peut se trouver alors dans différents régimes. Lorsque $\Delta \gg U \gg W$, les électrons se localisent sur l'orbitale d pour éviter de payer l'énergie de Coulomb et on a un état isolant (de Mott). Une autre possibilité, qui apparaît si $U \gg \Delta \gg W$, est de bloquer les électrons sur le site de l'oxygène ; c'est alors un isolant à transfert de charge ³. La destruction de ces deux types d'états isolants, qui se produit lorsque $W \gtrsim U$ ou Δ , conduit, à travers une transition de Mott isolant-métal, à la formation d'un état métallique dans lequel les effets des interactions restent importants [2]. L'exemple canonique illustrant cette transition contrôlée par la force des interactions est donné par l'oxyde V_2O_3 (figure 1.1), mais on constate que des dizaines de composés différents exhibent ce phénomène, comme par exemple le conducteur organique κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl (voir figure 1.2 et chapitre 2). La transition de Mott est donc universellement présente dans les systèmes corrélés.

Un aspect important de cette physique concerne la possibilité d'accorder de manière continue la largeur de bande sur un même composé, afin d'examiner la transition de Mott de manière progressive (plutôt qu'une simple classification des matériaux entre métal et isolant de Mott). En pratique, pour des systèmes isolants proches de la transition, l'application d'une pression de quelques kbars peut suffire à augmenter le recouvrement des orbitales de manière à retrouver un caractère métallique (comme présenté aux figures suivantes). Une autre façon d'arriver au même effet est d'utiliser des substitutions chimiques déformant la structure cristalline (voir le paragraphe suivant).

²Depuis des énergies atomiques (colossales) à des valeurs écrantées qui restent non négligeables devant la largeur de bande.

³On parle souvent de façon générique d'isolant de Mott afin de différencier un état isolant à cause des interactions avec un isolant de type Anderson (induit par le désordre), ou avec les isolants magnétiques.

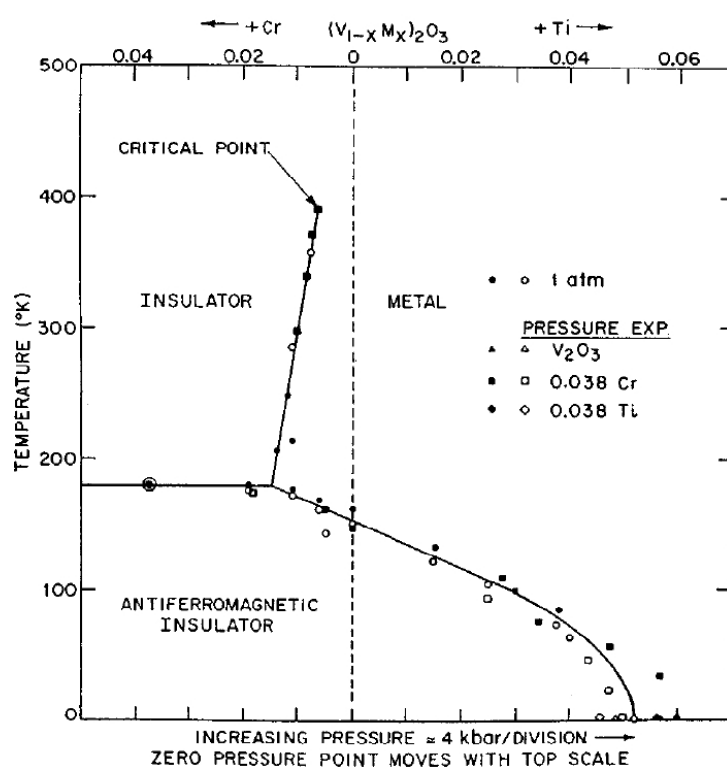


Fig. 1.1 – Diagramme de phase de l'oxyde de métal de transition V_2O_3 , d'après [3].

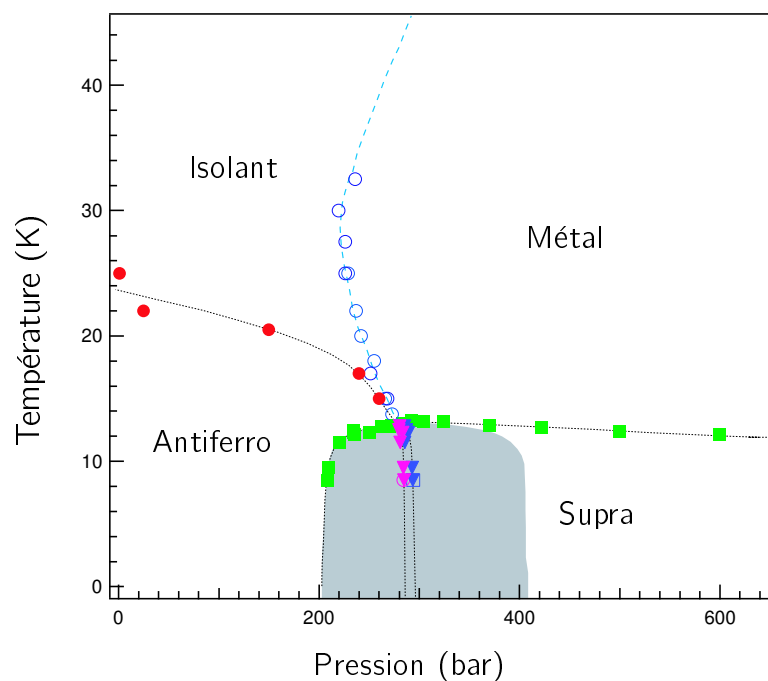


Fig. 1.2 – Diagramme de phase du conducteur organique $\kappa-(BEDT-TTF)_2Cu[N(CN)_2]Cl$, d'après des mesures de RMN [4].

□ La structure perovskite : une autre façon d'étudier la transition de Mott

La transition de Mott peut aussi être atteinte en modifiant le remplissage de la bande d , puisque l'isolant de Mott est instable vis à vis du dopage. Ceci peut se réaliser en pratique par substitution chimique progressive d'un atome de la structure avec un atome de valence différente, qui joue le rôle de réservoir de charge. On peut citer le cas du composé $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$, qui fait partie d'une série bien connue d'oxydes ternaires de la couche 3d, illustrée par le diagramme de Fujimori (Fig. 1.3). Cette grande classe d'oxydes tridimensionnels de structure perovskite (voir figure 1.4) démontre par ailleurs très clairement la généralité du phénomène en question ici.

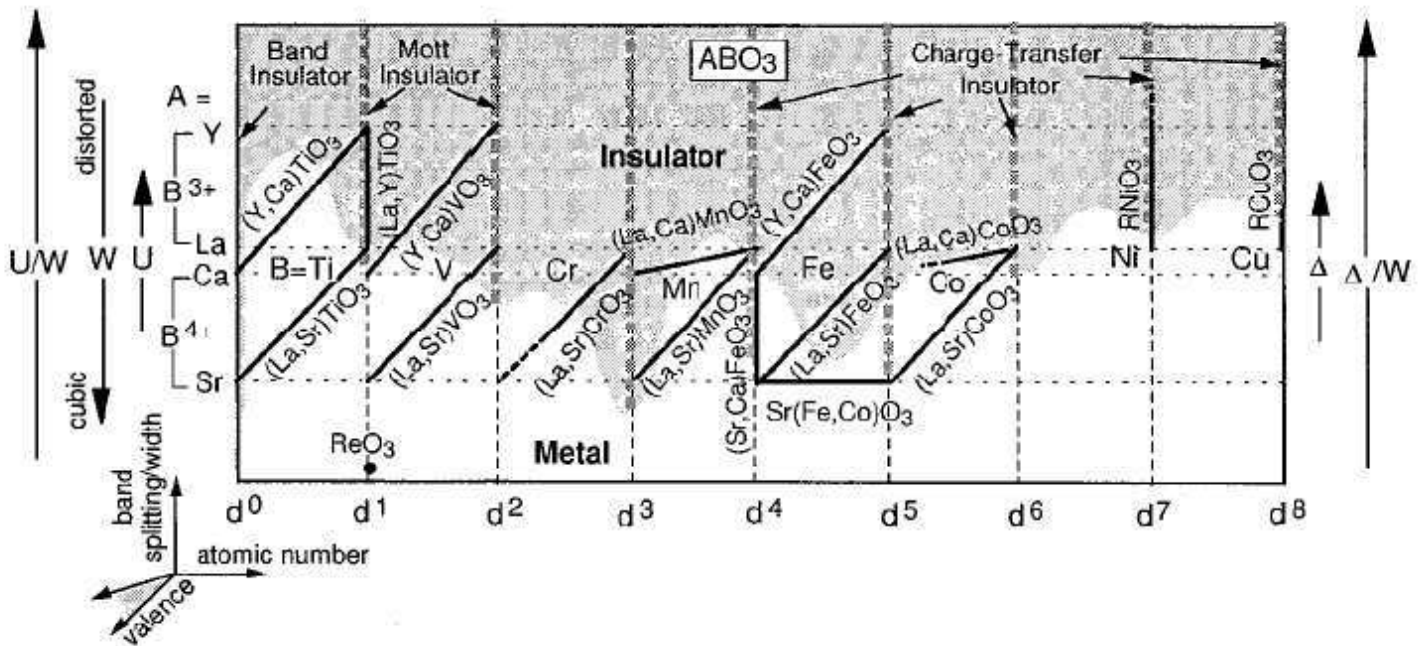


Fig. 1.3 – Classification métal-isolant en fonction de la valence (axe horizontal) et de la largeur de bande (verticalement) pour des oxydes de métaux de transition de la couche 3d, d'après [5]. Les lignes en traits gras sont celles suivies par un composé du type $A_x A'_{1-x} \text{BO}_3$ en fonction de la composition chimique x .

On remarque de plus que lorsque deux atomes de même valence ⁴ sont échangés, on dispose de la possibilité de varier continuellement la largeur de bande à remplissage constant (si l'un des deux atomes est plus gros, il produit une distorsion du réseau suffisante pour modifier légèrement le recouvrement des orbitales voisines des atomes métalliques de type B). C'est par exemple le cas de $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$, qui reste malgré tout un métal pour toute valeur de x (avec des effets des corrélations assez importants en surface [6, 7]). Cet effet de modification

⁴ Les atomes centraux de la structure perovskite ne participent pas à la conduction, et servent uniquement de réservoir de charge.

de la largeur de bande joue aussi dans le cas où l'on change le remplissage de la bande, ce qui complique l'analyse des données (le diagramme 1.3 trouve alors tout son intérêt pour visualiser qualitativement les changements produits).

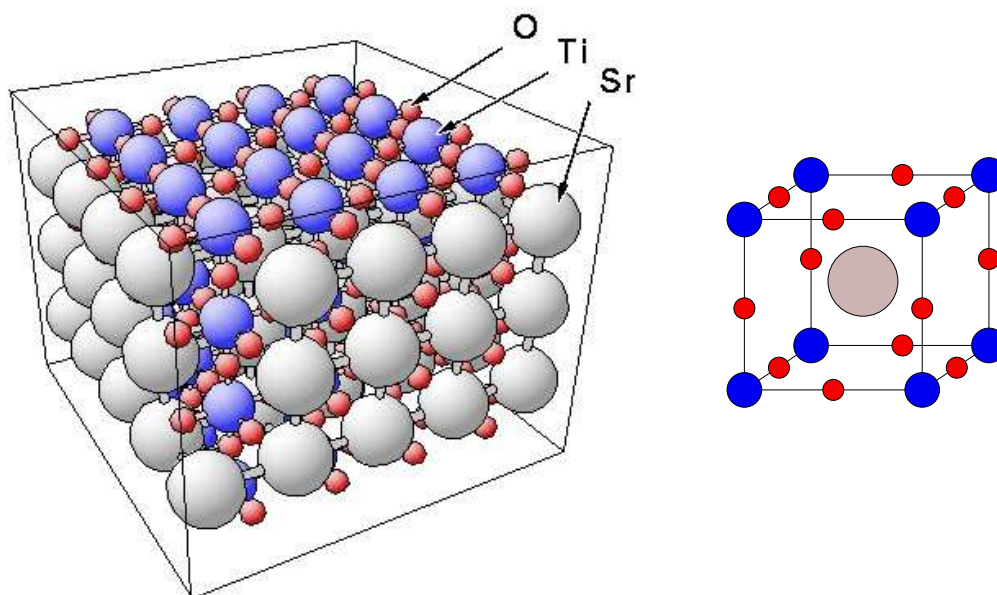


Fig. 1.4 – *Structure perovskite du composé tridimensionnel SrTiO_3 (vue globale du réseau et cellule élémentaire).*

Bien sûr, il ne s'agit pas de négliger le rôle du magnétisme dans ces systèmes. D'une part parce qu'on peut transiter directement de l'état métallique vers un isolant magnétique (transition de Mott-Heisenberg), par la présence de moments locaux dans le métal qui sont tout prêts à s'ordonner à basse température. Le type d'ordre magnétique ainsi obtenu (le plus souvent antiferromagnétique) dépend fortement de la structure du matériau considéré. D'autre part parce que le magnétisme a des effets très importants, même dans la phase normale (fluctuations magnétiques près des phases ordonnées). Finalement, les interactions diverses dans le secteur de spin (super-échange, interaction de Hund), la basse dimensionalité et la frustration de certains composés sont source de complications supplémentaires. On se contentera de dire que la complexité du problème de la supraconductivité à haute température est intimement liée à l'ensemble de ces questions, puisque la phase supraconductrice des cuprates émerge par dopage d'un isolant de Mott bidimensionnel antiferromagnétique.

1.1.3 Signatures des corrélations fortes dans l'état métallique

Nous allons maintenant entrer un peu plus dans le détail de ces matériaux particuliers, en commençant par examiner les diverses propriétés anormales qui se manifestent dans leur phase métallique (paramagnétique). Nous nous concentrerons principalement sur le composé $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$, car de nombreuses mesures expérimentales ont été menées sur ce même système, ce qui permet une caractérisation quasi-exhaustive de la physique qui nous intéresse ici (rappelez-vous qu'il s'agit d'un composé où la transition de Mott se produit par dopage et non par modification de la largeur de bande).

□ Renormalisation de la masse effective

Selon la théorie du liquide de Fermi, les excitations élémentaires dans un métal peuvent être décrites comme des quasiparticules avec des paramètres renormalisés et de faibles interactions résiduelles (même si le problème à N corps qui est en jeu reste formidablement complexe). Ainsi la localisation progressive des électrons au voisinage de la transition de Mott (du côté métallique) se manifeste par un accroissement de la masse effective, que l'on peut mettre en évidence expérimentalement par l'augmentation du coefficient γ de la chaleur spécifique à basse température $C_V = \gamma T$, comme illustré à la figure 1.5 sur le composé $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$ ⁵.

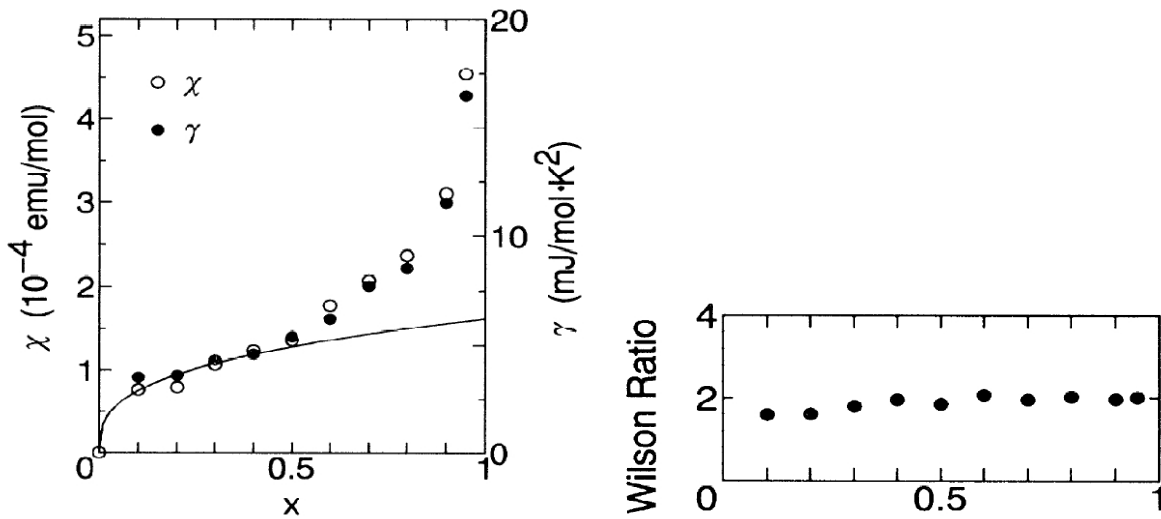


Fig. 1.5 – Coefficient du terme linéaire de la chaleur spécifique γ et susceptibilité magnétique χ en fonction du dopage dans $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$. À droite, facteur de Wilson $(\pi^2 k_B^2 \chi) / (3 \mu_B^2 \gamma)$. D'après [8].

Cette figure montre aussi l'augmentation analogue de la susceptibilité de spin χ (indépendante de la température), et permet de tracer le facteur de Wilson χ/γ (normalisé par $3\mu_B^2/(\pi^2 k_B^2)$).

⁵Cet effet a été prédit théoriquement dans les travaux pionniers de Brinkman et Rice. Nous y reviendrons au chapitre 4.

1.1. MATÉRIAUX À FORTES CORRÉLATIONS

Celui-ci reste stable autour de la valeur 2, malgré la “divergence” simultanée de γ et χ pour $x \sim 1$. Ceci indique l'absence de fluctuations magnétiques à la transition de Mott (des mesures plus récentes à très faible dopage ont cependant mis en évidence une phase antiferromagnétique qui n'est pas signalée ici [9]).

□ Transport modifié

À trois dimensions, et en l'absence de fluctuations critiques près d'une phase ordonnée ou d'un point critique quantique, un métal possède une résistivité quadratique $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$ à basse température (liquide de Fermi). Le coefficient A peut aussi présenter de fortes renormalisations dues aux interactions, en particulier à proximité de la transition de Mott, où il reflète la réduction du temps de vie des quasiparticules. Ceci est clairement montré sur les mesures de transport dans $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$ pour x proche de 1 (figure 1.6). Ces données concordent avec l'entrée correspondante dans le diagramme de Fujimori, figure 1.3, où LaTiO_3 apparaît bien comme un isolant au bord de la transition de Mott.

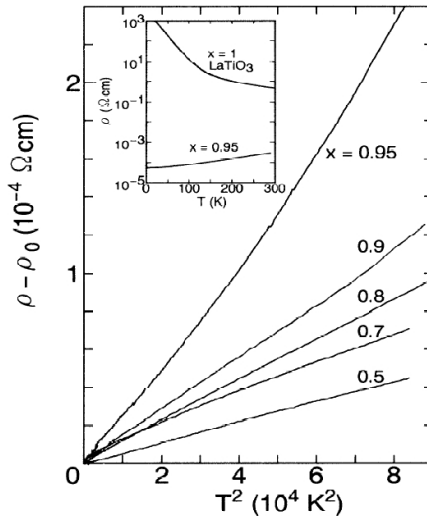


Fig. 1.6 – Résistivité [8] dans $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$ en fonction de T^2 et pour différents dopages.

□ Faible échelle de cohérence

Dans le régime corrélé, on s'attend à ce que l'énergie de cohérence ϵ_F^* soit aussi renormalisée par les interactions. Cette échelle d'énergie peut être caractérisée par une température de Fermi effective, $T^* = \epsilon_F^*/k_B$, en dessous de laquelle la théorie de Landau des liquides de Fermi s'applique. Cet effet est tout à fait visible dans les données de transport par une déviation à la loi du T^2 pour des températures supérieures à $T^*(P)$ (figure 1.6). Ce changement a bien une nature électronique, comme l'indique la décroissance rapide de T^* à l'approche de la transition de Mott.

□ Régime de “mauvais métal”

Quand la température dépasse la température de cohérence T^* , il persiste en général un régime de “mauvais métal” dans lequel la résistivité continue à augmenter avec la température (le plus souvent de façon linéaire). Il n'est cependant pas possible de parler là de quasiparticules avec un temps de vie anormal, car le libre parcours moyen ℓ que l'on extrait d'une formule de Drude et de la valeur de la résistivité dans ce régime est alors inférieure aux distances interatomiques, $k_F \ell \lesssim 1$ (k_F est le vecteur d'onde de Fermi). Ce régime est donc associé à des résistivités supérieures à la limite de Mott :

$$\rho_{3D} = \frac{3\pi}{2} \frac{1}{k_F^2 \ell} \frac{h}{e^2} \gtrsim \frac{3\pi}{2} \frac{1}{k_F} \frac{h}{e^2} \equiv \rho_{3D}^{\text{Mott}} \quad (1.1)$$

□ Transfert de poids spectral

La disparition progressive des quasiparticules à la transition de Mott doit se manifester de façon dramatique dans les quantités dépendantes de la fréquence. Ceci est observé dans des mesures de conductivité optique sur le composé que nous avons examiné tout au long de cette section, $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$. On assiste ainsi, lorsque x se rapproche de 1, à la disparition progressive du pic de Drude à basse fréquence, qui s'accompagne d'une redistribution importante de poids spectral, comme illustré sur la figure 1.7.

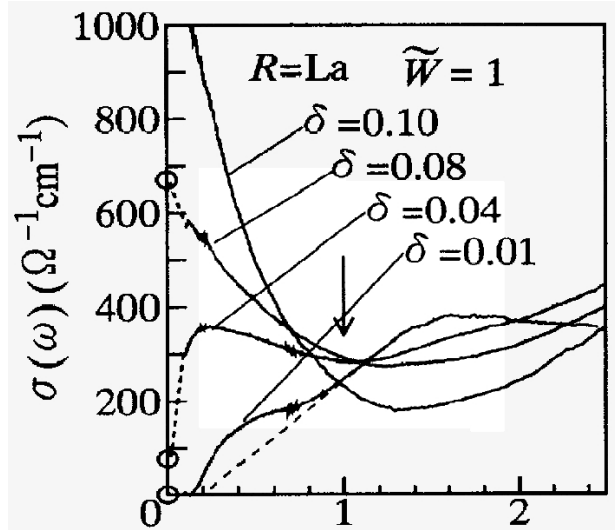


Fig. 1.7 – Conductivité optique [10] en fonction du dopage dans $\text{Sr}_\delta \text{La}_{1-\delta} \text{TiO}_3$ ($\delta = 1 - x$).

Cet effet a été aussi mis en évidence par mesure de la fonction spectrale électronique en photoémission (ARPES) sur V_2O_3 et $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ [6, 7], malgré une longue controverse à ce sujet, ainsi que sur la surface du composé TaSe_2 , que l'on étudiera à la section 2.2. Il n'existe malheureusement pas à l'heure actuelle de mesure directe de la densité d'états locale par microscopie à effet tunnel, qui pourrait merveilleusement illustrer la transition de Mott.

□ Violation du liquide de Fermi

Des déviations importantes au comportement Liquide de Fermi sont observées dans la phase normale de nombreux matériaux : oxydes comme $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ [11], composés de fermions lourds près d'un point critique quantique (voir le chapitre 8.1), et bien sûr cuprates superconducteurs. La proximité de fluctuations magnétiques importantes (sur lesquelles les électrons diffusent) est souvent avancée pour expliquer ce type d'anomalies.

1.2 Modélisation des matériaux corrélés

Cette section débute la description théorique des systèmes de fermions corrélés, en introduisant les modèles pertinents pour étudier le phénomène de la transition de Mott.

1.2.1 Modèles de basse énergie

L'idée de base est bien entendu de se ramener à la modélisation la plus simple possible, tout en gardant les degrés de liberté essentiels pour la description des phénomènes auxquels on s'intéresse. Les échelles d'énergies électroniques étant en général colossales par rapport à la température (supérieures à l'électron-Volt, donc au moins 12000 K), on se permet de négliger les orbitales localisées au coeur des atomes, ou formant des bandes dans le solide qui se trouvent loin du niveau de Fermi. Il ne faut cependant pas oublier que ces "détails" sont importants dans la mesure où ils conduisent à des renormalisations des paramètres intervenant dans un modèle de plus basse énergie (par écrantage de l'interaction Coulombienne ou par déformation des bandes de conduction). La structure cristalline est le plus généralement tirée des expériences de rayons X, mais l'on peut actuellement prédire avec plus ou moins de succès la stabilité relative entre différentes structures possibles du réseau.

On peut alors écrire un modèle pour les électrons dans des orbitales de Wannier proches des atomes, qui possède une partie liaison forte et une partie d'interaction entre électrons, couplant sites (i), orbitales (α) et spins (σ), sous la forme suivante (en seconde quantification) :

$$H = - \sum_{ij\alpha\beta\sigma} t_{ij}^{\alpha\beta} d_{i\alpha\sigma}^\dagger d_{j\beta\sigma} + \sum_{ij\alpha\beta\sigma\sigma'} V_{ij}^{\alpha\beta;\sigma\sigma'} d_{i\alpha\sigma}^\dagger d_{i\alpha\sigma} d_{j\beta\sigma'}^\dagger d_{j\beta\sigma'} \quad (1.2)$$

La détermination des paramètres de basse énergie intervenant dans un tel modèle est en fait une question extrêmement technique. En effet, on ne peut pas se contenter d'estimer la matrice d'interaction $V_{ij}^{\alpha\beta;\sigma\sigma'}$ par un calcul d'éléments de matrice des orbitales de Wannier, puisque l'écrantage par les bandes que l'on a négligé peut réduire cette valeur de manière importante. La question de l'évaluation des paramètres de bande et d'interaction nécessite donc des techniques *ab-initio* assez sophistiquées dont on ne parlera pas ici [12].

□ Modèle de Hubbard

On peut simplifier davantage l'Hamiltonien (1.2) dans le cas où il ne se trouve qu'une seule bande proche du niveau de Fermi (par exemple lorsque la dégénérescence orbitale est levée par les champs cristallins ou les déformations du réseau). En négligeant la partie à longue portée de l'interaction Coulombienne, exponentiellement décroissante dans un métal, on arrive alors au modèle de Hubbard, qui contient les ingrédients de base pour décrire les propriétés des systèmes d'électrons corrélés :

$$H = - \sum_{ij\sigma} t_{ij} d_{i\sigma}^\dagger d_{j\sigma} + U \sum_i d_{i\uparrow}^\dagger d_{i\uparrow} d_{i\downarrow}^\dagger d_{i\downarrow}. \quad (1.3)$$

Le fait que l'écrantage se dégrade progressivement à l'approche de la transition de Mott, mène à questionner la validité du modèle de Hubbard pour la description de cette transition [13, 14]

(voir section 5.2). Il faut aussi dire que la dégénérescence orbitale joue un rôle important dans de nombreux composés à un niveau quantitatif (voir section 4), mais peut conduire aussi à des effets tout à fait intéressants [15] (brisure de symétrie orbitale, possibilité de liquide d'orbitales...).

1.2.2 Échec des approches traditionnelles pour la transition de Mott

La complexité du modèle de Hubbard (1.3), à l'allure pourtant extrêmement simple, est de plusieurs ordres. Tout d'abord à cause de la multitude de phase ordonnées possibles (en fonction de l'interaction, du dopage et de la dimensionalité). Ensuite, parce que le régime qui nous intéresse plus particulièrement ici (transition de Mott) est difficilement accessible par les techniques standards. On peut remarquer aussi que le grand nombre de degrés de liberté en jeu et la nature fermionique du problème pose en général des limites importantes pour les méthodes numériques (voir cependant [16]).

□ Méthodes perturbatives

Les approches analytiques du modèle de Hubbard supposent en général qu'il est légitime de traiter l'un des deux termes dans (1.3) en théorie de perturbation. Cela offre deux voies complémentaires pour aborder le problème, qui ont eu des succès importants pour comprendre la nature des régimes se trouvant de part et d'autre de la transition de Mott. On peut par exemple citer la théorie phénoménologique des liquides de Fermi (valable à couplage faible), et la dérivation de théories effectives comme le modèle de Heisenberg (pour $U \gg t$). Ces approches cessent malheureusement d'être valides dans le régime de couplage intermédiaire, et sont donc sans utilité pour décrire la transition de Mott, qui se produit pour des valeurs de l'interaction comparables à l'énergie cinétique des électrons.

□ Autres approches : limites contrôlées

Dans la mesure où il n'y a pas de petit paramètre évident pour traiter ce problème ⁶, il a été développé diverses extensions au modèle de Hubbard (ou de ses dérivés, comme le modèle t - J) qui permettent d'obtenir une solution non perturbative. Ce sont les limites de grande dégénérescence et de grande dimension. La première approche étant assez caricaturale (on en reparlera au cours du chapitre 4), je vais présenter maintenant la limite $d = \infty$, ainsi que ses succès récents concernant la transition de Mott.

⁶Les méthodes exactes (ansatz de Bethe) ou de théorie des champs (bosonisation) sont en général limitées au cas unidimensionnel, dont la physique est de plus très particulière.

1.3 Théorie de champ moyen dynamique

1.3.1 Méthodologie

Le gain essentiel apporté par la limite de grande dimension est de s'affranchir des problèmes liés à la limite thermodynamique, en mettant l'accent sur une description locale de la physique. L'idée de base est de dériver une théorie effective pour le mouvement des électrons sur un site fixé du réseau, en espérant que cette dynamique restera suffisamment simple. Le fait que la limite "grand d " permette cette simplification peut se comprendre en théorie de perturbation : on peut voir que les contributions à la self-énergie sont purement locales dans la limite $d \rightarrow \infty$ [17].

Pour progresser, il a été crucial de construire une théorie effective qui décrit la dynamique locale des électrons [18, 19]. Pour cela, on peut partir du modèle de Hubbard, et intégrer explicitement tous les sites du réseau sauf un site donné ⁷. Considérons ainsi le calcul de la

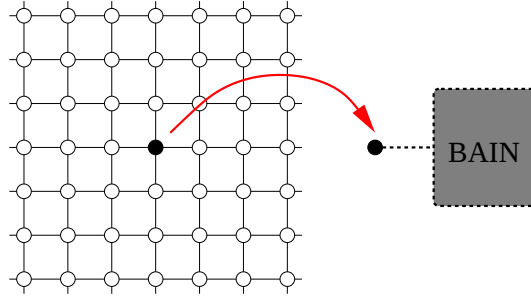


Fig. 1.8 – Cavity créée dans le réseau en éliminant un site donné, et transformation vers un problème effectif à un site.

fonction de partition (μ est le potentiel chimique) :

$$\mathcal{Z} = \int \mathcal{D}d \mathcal{D}d^\dagger e^{-S} \quad (1.4)$$

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_{i\sigma} d_{i\sigma}^\dagger (\partial_\tau - \mu) d_{i\sigma} - \sum_{ij\sigma} t_{ij} d_{i\sigma}^\dagger d_{j\sigma} + U \sum_{i\sigma} d_{i\uparrow}^\dagger d_{i\uparrow} d_{i\downarrow}^\dagger d_{i\downarrow} \quad (1.5)$$

et écrivons l'action effective locale qui décrit le comportement des électrons au site donné (par exemple $i = 0$) :

$$S_{\text{loc}} = \int_0^\beta d\tau \sum_{\sigma} d_{\sigma}^\dagger (\partial_\tau - \mu) d_{\sigma} + U d_{\uparrow}^\dagger d_{\uparrow} d_{\downarrow}^\dagger d_{\downarrow} + S_{\text{eff}} \quad (1.6)$$

$$S_{\text{eff}} = \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{i_1 j_1 \dots i_n j_n} G_{i_1 j_1 \dots i_n j_n}^{(0)}(\tau_1 \tau'_1 \dots \tau_p \tau'_p) \prod_{p=1}^n \int_0^\beta d\tau_p \int_0^\beta d\tau'_p t_{i_p 0} t_{j_p 0} d_{\sigma}^\dagger(\tau_p) d_{\sigma}(\tau'_p) \quad (1.7)$$

en notant $d_{\sigma}^\dagger = d_{i=0,\sigma}^\dagger$ le fermion au site de la cavité et $G^{(0)}$ la fonction de Green connexe à $2n$ -points, calculée dans le réseau avec le site $i = 0$ en moins. Si l'on prend maintenant la

⁷C'est la méthode de la cavité bien connue en physique statistique, figure 1.8.

1.3. THÉORIE DE CHAMP MOYEN DYNAMIQUE

limite $d \rightarrow \infty$ avec le choix judicieux $t_{ij} \propto d^{-||i-j||/2}$, on peut se convaincre que le n^{ieme} terme apparaissant dans (1.7) est d'ordre d^{1-n} , et que l'action effective est purement quadratique (mis à part le terme d'interaction local originellement présent dans (1.6)). Il n'est pas difficile d'évaluer ensuite la fonction de Green à deux points en cavité $G_{ij}^{(0)}(\tau - \tau')$, ce qui permet d'arriver au résultat final :

$$S_{\text{loc}} = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger (\partial_\tau - \mu) d_\sigma + U d_\uparrow^\dagger d_\uparrow d_\downarrow^\dagger d_\downarrow + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau') \quad (1.8)$$

$$G_d(i\omega_n) \equiv - \langle d_\sigma(i\omega_n) d_\sigma^\dagger(i\omega_n) \rangle_{S_{\text{loc}}} = \sum_k \frac{1}{G_d^{-1}(i\omega_n) + \Delta(i\omega_n) - \epsilon_k} \quad (1.9)$$

où ϵ_k est la transformée de Fourier de $-t_{ij}$. La première de ces équation correspond donc à l'action effective du problème local, dont le dernier terme signale que l'électron peut quitter à tout instant (τ) le site $i = 0$ pour se promener dans le reste du réseau, et revenir au point initial à un instant ultérieur (τ'). Ceci impose d'introduire une fonction d'hybridation $\Delta(\tau)$ qui joue le rôle d'un champ de Weiss pour ce problème et qui est déterminée de façon *autocohérente* par l'équation (1.9). Cette dernière s'interprète en remarquant que l'on peut définir une self-énergie $\Sigma_d(i\omega_n)$ pour l'action effective (1.8) par :

$$G_d(i\omega_n) \equiv \frac{1}{i\omega_n - \Delta(i\omega_n) - \Sigma_d(i\omega_n)} \quad (1.10)$$

Comme on le note sur l'équation (1.9) en substituant l'expression précédente, cette self-énergie du problème effectif est aussi la self-énergie du problème complet sur le réseau (qui est donc bien indépendante de k) ; cela permet de réécrire l'équation d'autocohérence de manière plus physique :

$$G_d(i\omega_n) = \sum_k \frac{1}{i\omega_n - \epsilon_k - \Sigma_d(i\omega_n)} \quad (1.11)$$

Nous remarquons par ailleurs que l'action effective (1.8) est celle d'un modèle d'impureté quantique d'Anderson, introduit initialement pour décrire la formation des moments magnétiques dans les métaux et les anomalies de transport qui y sont observées (effet Kondo).

□ À propos de la limite $d = \infty$

On peut d'abord s'interroger sur la forme prise par le paramètre de saut $t_{ij} \propto d^{-||i-j||/2}$. Celle-ci permet de trouver une énergie cinétique par particule d'ordre 1 quand d tend vers l'infini (cette preuve est donnée à l'appendice A.2). En utilisant ce choix, l'interaction de Coulomb et l'énergie cinétique restent comparables et peuvent entrer en compétition de manière non triviale. De plus, le fait de résoudre un modèle de manière exacte dans une limite contrôlée (même si un peu formelle) permet d'obtenir une théorie cohérente thermodynamiquement.

1.3.2 La transition de Mott en champ moyen dynamique

□ Arguments qualitatifs

On peut remarquer que par construction la limite de grande dimension décrit correctement le cas sans interaction ($U = 0$) et la limite atomique ($t = 0$) du modèle de Hubbard. Elle offre donc l'opportunité d'étudier la physique des problèmes de fermions corrélés dans le régime de couplage intermédiaire, où l'on s'attend à une transition de phase métal-isolant.

La présence d'une phase métallique à couplage faible ($U \ll D$, où D est la demi-largeur de bande) est garantie par la forme même de l'action effective (1.8) : on sait que le modèle d'Anderson est associé à la production d'une résonance Kondo près du niveau de Fermi [20], qui correspond donc à la formation de quasiparticules métalliques dans le langage du modèle de Hubbard. L'autocohérence (1.9) joue cependant un rôle important dans le sens où le bain d'électron $\Delta(\tau)$ reflète directement la structure de la fonction de Green physique. En particulier, dans le cas d'une densité d'états semicirculaire de demi-largeur $D = 2t$ (réseau de Bethe), on a simplement :

$$\Delta(\tau) = t^2 G_d(\tau) \quad (1.12)$$

L'équation d'autocohérence est ultimement responsable de la transition de Mott, puisque le modèle d'Anderson avec un bain fixe est régulier pour toute valeur de U : c'est la réduction simultanée de la largeur de bande des quasiparticules dans G_d et Δ qui conduit à la disparition de la phase métallique à $U \gg D$.

□ Diagramme de phase

Le diagramme de phase obtenu en résolvant ⁸ les équations DMFT (1.8-1.9) montre en effet l'existence d'une transition métal-isolant, du second ordre à température nulle [21,22] (on notera ce point critique par $U_{c2} \simeq 3D$). La situation à température finie est plus complexe, car la zone de transition s'étend à basse température en une région de coexistence entre métal et isolant (délimitée par les lignes en pointillés $U_{c1}(T)$ et $U_{c2}(T)$ sur la figure 1.9 ⁹), où la transition est du premier ordre [23,24] (ligne continue sur la même figure). Cette région se termine en un autre point critique du second ordre ($U_c \simeq 2D$), pour une température $T_c \simeq D/40$. Toute cette zone peut se comprendre *qualitativement* par une analogie avec la transition liquide gaz [25] ¹⁰, qui est résumée au tableau suivant :

Transition Liquide-Gaz	Transition de Mott
Pression hydrostatique	Largeur de bande (D)
Température	Température
Densité molaire	Double occupation
Liquide	Métal
Gaz	Isolant

⁸Différentes méthodes, analytiques (théorie de perturbation, bosons esclaves, équations intégrales, méthode projective) et numériques (Monte Carlo Quantique, diagonalisation exacte, groupe de renormalisation numérique) sont envisageables. Voir la section 2.1.2 et le chapitre 4.

⁹Pour $T < T_c$, la phase métallique persiste tant que $U < U_{c2}(T)$, tandis que la phase isolante existe pour $U_{c1}(T) < U$.

¹⁰Cette remarque a été formalisée [26] en analysant l'énergie libre DMFT au voisinage de la transition à T_c .

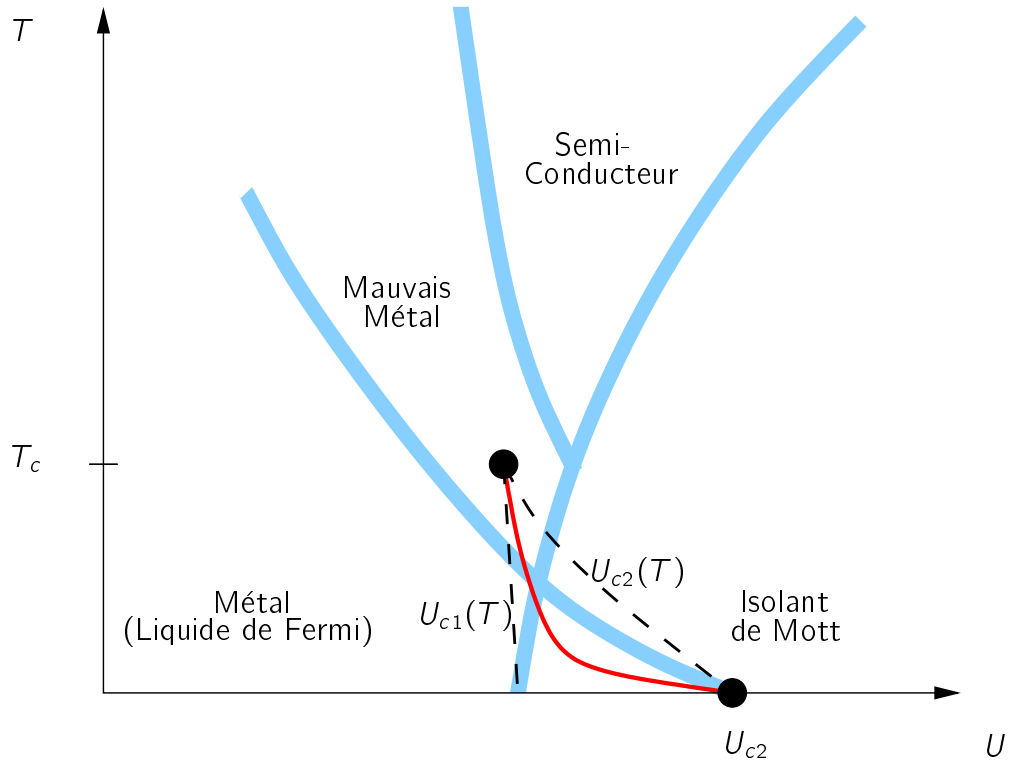


Fig. 1.9 – Diagramme de phase paramagnétique (schématisé) des différents régimes autour de la transition de Mott. Les lignes pointillées entourent la région de coexistence. La ligne de transition du premier ordre est donnée par le trait continu qui joint les deux points critiques discutés dans le texte. Les crossovers sont désignés par les lignes épaisses grises.

La phase dense correspond donc au métal, qui possède une plus grande densité de double occupations que l'isolant de Mott. Cette analogie devient par contre *quantitative* à proximité du point critique terminal, où le comportement critique est décrit par une transition continue dans la classe d'universalité du modèle d'Ising (en champ moyen). On peut en effet écrire une équation d'état, analogue à l'équation de Van der Waals (ou Ising sous champ magnétique) :

$$h(D, T) = r(D, T)\Phi + \Phi^3 \quad (1.13)$$

où Φ est un paramètre d'ordre, relié à la plupart des quantités physiques : double occupation, mais aussi conductivité ou densité d'état au niveau de Fermi. Les courbes de conductivité, dans la région autour du point critique terminal, illustrent de façon très parlante cette analogie (figure 1.10).

Un autre aspect important de la transition de Mott à température finie concerne le passage de l'état métallique (dans le sens d'une résistivité croissante en température) vers l'état isolant lorsqu'on se trouve au-dessus du point critique terminal. Ce changement d'état se fait de manière indirecte, par des crossovers intermédiaires associés à des régimes de transport différents, indiqués à la figure 1.9. On remarquera ainsi à la figure 1.11 un régime de conduction métallique avec des résistivités plus grandes que la limite de Mott (mauvais métal). Voir la section 2.1.2 pour plus de détails.

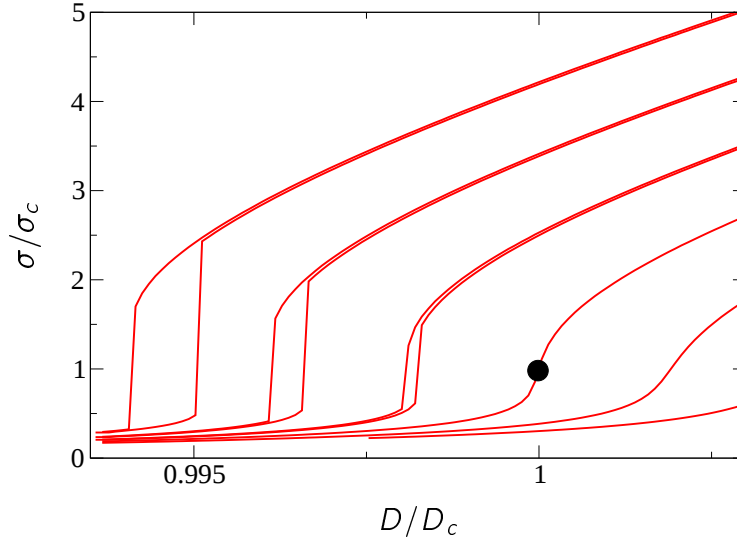


Fig. 1.10 – Conductivité $\sigma(D, T)$ en fonction de la largeur de bande D , à proximité du point critique (D_c, T_c) indiqué par le point noir; différentes températures ont été prises ($T \lesssim T_c$ en haut à gauche, et $T \gtrsim T_c$ en bas à droite). Calcul DMFT par la méthode IPT (voir section 2.1.2).

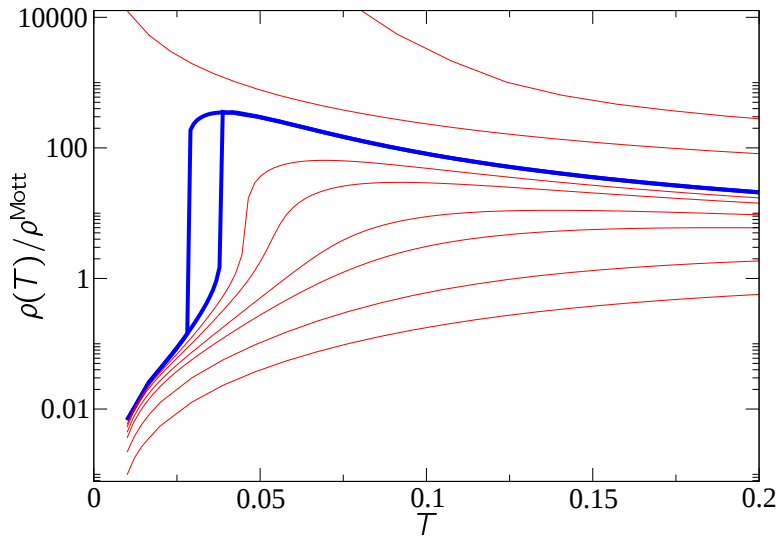


Fig. 1.11 – Calcul DMFT (IPT) de la résistivité $\rho(T)$ dans le modèle de Hubbard par la méthode IPT (remarquer l'échelle logarithmique). Une large gamme de valeurs de l'interaction U a été choisie, avec la courbe en gras prise dans le régime $U_{c1} < U < U_{c2}$, pour illustrer le caractère premier ordre de la transition de Mott.

1.3.3 Quelques questions d'actualité

□ Propriétés critiques de la transition de Mott

L'étude expérimentale de l'aspect liquide-gaz de la transition de Mott dans les systèmes de fermions corrélés nécessite une étude très fine du transport au voisinage du point critique terminal. L'utilisation d'une technique précise de balayage en pression par P. Limelette dans le groupe de D. Jérôme à Orsay a permis une première investigation de cette question sur les conducteurs organiques bidimensionnels (voir Article-1), puis sur V_2O_3 . Dans ce dernier composé, on observe une confirmation remarquable des prédictions de la théorie de champ moyen dynamique : la transition de Mott semble être une transition d'Ising (à trois dimensions), avec des lois d'échelle compatibles avec cette classe d'universalité. Notons que cette technique a été aussi utilisée pour faire l'étude en transport des crossovers mentionnés au paragraphe précédent (voir section 2.1).

Nous remarquons finalement que l'étude expérimentale de la transition de Mott à température nulle est une question difficile, à cause de la présence de phases ordonnées à basse température. Nous discuterons des aspects théoriques de cette transition dans le cadre de DMFT dans le chapitre 4 (voir aussi la section 5.1).

□ Question du couplage au réseau

La question du couplage des fermions aux vibrations élastiques du réseau est un autre aspect important de la transition de Mott. En effet, dans la plupart des composés (comme V_2O_3), la transition métal-isolant s'accompagne d'un changement abrupt de la maille (en général sans modification structurale). Bien qu'on puisse argumenter dans le sens opposé, il semble probable que cet effet soit dû à la proximité d'une singularité des propriétés électroniques. Toutefois, il est concevable que l'instabilité du réseau puisse *préempter* la transition de Mott proprement dite, selon un argument de H. Krishnamurthy [27]. Cette idée pourrait en particulier expliquer la relative mollesse du régime critique pour les composés organiques, qui sont hautement compressibles et dans lesquels la réponse du réseau aux instabilités électroniques doit être grande.

□ Questions relatives à la localité de DMFT

De nombreux effets physiques ne sont pas pris en compte dans la formulation la plus simple de DMFT (comme les renormalisations de la surface de Fermi). Il semble cependant que la localité de la self-énergie soit approximativement vérifiée dans des composés tridimensionnels comme $Ca_{1-x}Sr_xVO_3$, comme l'indique la comparaison des mesures de photoémission à des calculs de structure électronique. Il s'agit d'une bonne indication pour l'applicabilité de la théorie de champ moyen dynamique dans l'étude (qualitative et peut-être quantitative) de ces systèmes.

En deux dimensions, les fluctuations non locales sont plus importantes. On peut cependant estimer que l'approche de champ moyen dynamique est valable pour décrire les régimes loin des phases ordonnées. De plus, le formalisme peut être étendu pour prendre en compte une partie des corrélations de courte distance : méthodes Extended-DMFT [28–30] (section 8.1.3) et Cluster-DMFT [31] (section 8.2).

□ **Vers un accord quantitatif ?**

Malgré certaines limitations discutées plus haut, la théorie de champ moyen dynamique offre un cadre simplifié pour aborder l'étude des matériaux corrélés. En effet, les principales échelles d'énergies en jeu (t, U, J, ϵ_F^*) sont incorporées naturellement, et des généralisations sont possibles pour réintroduire certains effets manquants, comme les fluctuations magnétiques.

De plus, DMFT offre l'opportunité de marier les techniques modernes de problème à N corps avec des méthodes de calculs "réalistes", pour étudier plus précisément les systèmes corrélés. En effet, les méthodes *ab-initio* comme la LDA, basées sur une image d'électrons libres, ne sont pas satisfaisantes pour aborder ces matériaux ¹¹. Dans un futur proche, on peut espérer obtenir une compréhension systématique des matériaux à fortes corrélations grâce à ce type d'approches hybrides (qui sont à l'heure actuelle en stade de développement [32, 33]).

¹¹On peut en déduire une définition pratique d'un matériau corrélé : un système pour lequel les prédictions de la LDA sont grossièrement fausses (par exemple, les isolants de Mott sont prédits métalliques par la LDA).

Bibliographie du chapitre 1

- [1] **M. Imada, A. Fujimori et Y. Tokura**, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
- [2] **J. Zaanen, G. Sawatsky et J. W. Allen**, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 418 (1985).
- [3] **D. B. McWhan, J. P. Remeika, T. M. Rice, W. F. Brinkman, J. P. Maita et A. Menth**, *Phys. Rev. Lett.* **27**, 941 (1971).
- [4] **S. Lefebvre, P. Wzietek, S. Brown, C. Bourbonnais, D. Jérôme, C. Mézière, M. Fourmigué et P. Batail**, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5420 (2000).
- [5] **A. Fujimori**, *J. Phys. Chem. Solids* **53**, 1595 (1992).
- [6] **I. H. Inoue, I. Hase, Y. Aiura, A. Fujimori, Y. Haruyama, T. Maruyama, et Y. Nishihara**, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2539 (1995).
- [7] **K. Maiti, D. D. Sarma, M. J. Rozenberg, I. H. Inoue, H. Makino, O. Goto, M. Pedio et R. Cimino**, *Europhys. Lett.* **55**, 246 (2001).
- [8] **Y. Tokura, Y. Taguchi, Y. Okada, Y. Fujishima, T. Arima, K. Kumagai et Y. Iye**, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2126 (1993).
- [9] **C. C. Hays, J. S. Zhou, J. T. Markert et J. B. Goodenough**, *Phys. Rev. B* **60**, 10367 (1999).
- [10] **T. Katsufuji, Y. Okimoto et Y. Tokura**, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3497 (1995).
- [11] **F. Inaba, T. Arima, T. Ishikawa, T. Katsufuji et Y. Tokura**, *Phys. Rev. B* **52**, 2221 (1995).
- [12] **O. K. Andersen, T. Saha-Dasgupta, R. W. Tank, C. Arcangeli, O. Jepsen et G. Krier**, *Lecture notes in Physics*. Springer Verlag, (1999).
- [13] **N. F. Mott**, *Phil. Mag.* **6**, 287 (1961).
- [14] **C. M. Varma et T. Giamarchi**, *Model for oxide metals and superconductors*. Elsevier, (1991). Cours de l'école des Houches.
- [15] **Y. Tokura et N. Nagaosa**, *Science* **462**, 462 (2000).
- [16] **H. Morita, S. Watanabe et M. Imada**, *J. Phys. Soc. Jap.* **71**, 2109 (2002).
- [17] **W. Metzner et D. Vollhardt**, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 324 (1989).
- [18] **A. Georges et G. Kotliar**, *Phys. Rev. B* **45**, 6479 (1992).
- [19] **A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth et M. J. Rozenberg**, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 13 (1996).

- [20] **A. Hewson**, *The Kondo problem to heavy fermions*. Cambridge, (1996).
- [21] **M. J. Rozenberg, G. Kotliar et X. Y. Zhang**, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1236 (1992).
- [22] **A. Georges et W. Krauth**, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1240 (1992).
- [23] **M. J. Rozenberg, G. Kotliar et X. Y. Zhang**, *Phys. Rev. B* **49**, 10181 (1994).
- [24] **A. Georges et W. Krauth**, *Phys. Rev. B* **48**, 7167 (1993).
- [25] **C. Castellani, C. D. Castro, D. Feinberg et J. Ranninger**, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 1957 (1979).
- [26] **G. Kotliar, E. Lange et M. J. Rozenberg**, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5180 (2000).
- [27] **P. Majumdar et H. R. Krishnamurthy**, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1525 (1994).
- [28] **A. Sengupta et A. Georges**, *Phys. Rev. B* **52**, 10295 (1995).
- [29] **Q. Si et J. L. Smith**, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3391 (1996).
- [30] **H. Kajueter et G. Kotliar**, *Non publié* (1995).
- [31] **A. Schiller et K. Ingersent**, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 113 (1995).
- [32] **K. Held, I. A. Nekrasov, G. Keller, V. Eyert, N. Blümer, A. K. McMahan, R. T. Scalettar, T. Pruschke, V. I. Anisimov et D. Vollhardt**, *Quantum Simulations of Complex Many-Body Systems*. NIC Series, (2002).
- [33] **S. Biermann, F. Aryasetiawan et A. Georges**, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 86402 (2003).

2. Matériaux corrélés : comparaison théorie/expérience

La théorie de champ moyen dynamique, présentée au chapitre précédent, est une voie simple pour étudier les problèmes de fermions corrélés, qui donne lieu à de nombreuses prédictions concernant la transition de Mott. Nous allons ici comparer des calculs de transport en DMFT au voisinage de la transition de Mott avec une étude expérimentale menée en parallèle par P. Limelette (LPS-Orsay) sur le conducteur organique κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl¹. De façon intéressante, ces résultats expérimentaux nous ont poussé à améliorer grandement la manière de calculer les résistivités en DMFT. La seconde partie de ce chapitre concerne la mise en évidence plus directe des changements qui se produisent à la transition de Mott. Elle se base essentiellement sur des mesures de photoémission (ARPES) réalisées à Lausanne sur le composé TaSe₂, dont la surface est le jeu d'important effets électroniques révélés par cette expérience. Une comparaison des données expérimentales à la fonction spectrale calculée en DMFT sera effectuée².

2.1 Transport dans κ -BEDT-TTF

2.1.1 Présentation expérimentale

Aussi surprenant que cela puisse paraître à première vue, les matériaux organiques bâtis autour de la molécule BEDT-TTF (figure 2.1) se trouvent être de bons métaux (suivant les conditions de pression, comme on va le voir plus bas). En plus de ce fait déjà remarquable, les propriétés physiques que révèlent ces systèmes sont très riches : le diagramme de phase (figure 2.2) de cette famille de conducteurs organiques regroupe en effet un ordre antiferromagnétique, une phase supraconductrice non conventionnelle, et des phases paramagnétiques (métal et isolant) au bord de la transition de Mott³.

Nous commençons par examiner rapidement la structure de ces cristaux moléculaires avant de rentrer dans le détail de leurs propriétés physiques. Tout d'abord, la possibilité d'observer un comportement métallique dans ces composés provient de l'arrangement très spécial des molécules BEDT-TTF entre elles, qui permet un recouvrement important des orbitales moléculaires voisines. Le solide est donc composé de plans dans lesquels la conduction des

¹Ce travail a été réalisé en collaboration avec T. A. Costi, A. Georges, D. Jérôme et P. Limelette (Article-1).

²Ce travail a été réalisé en collaboration avec A. Georges, M. Gironi et L. Perfetti (Article-2).

³Pour des revues récentes, voir [1,2].

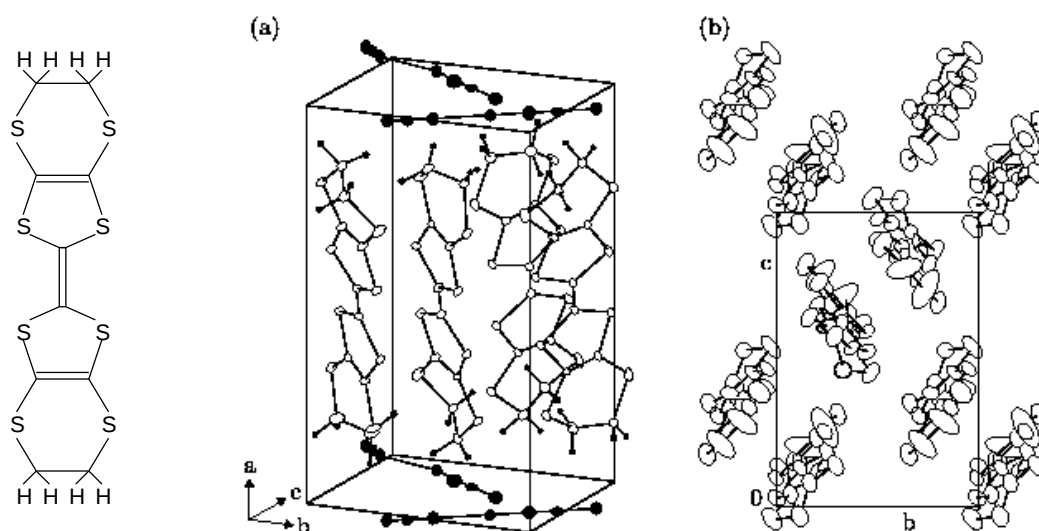


Fig. 2.1 – À gauche : molécule *Bis(EthylèneDiThio)-TetraThioFulvalène*, (BEDT-TTF). Au milieu : assemblage tridimensionnel du composé κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl, κ se référant à la manière dont les molécules sont empilées (les plans s'organisent dans les directions *b* et *c*). À droite : vue de la structure selon l'axe *a* perpendiculaire aux plans.

électrons est facile (intégrale de saut typique dans le plan $t_{\parallel} \sim 100\text{meV}$), et qui sont très faiblement couplés dans la troisième direction. En effet, la conduction inter-plans est limitée à la fois par la grande distance entre les molécules (faible intégrale de transfert), et par la présence d'anions qui viennent s'intercaler entre deux couches successives. Ces ions, au caractère électro-négatif très fort, jouent toutefois un rôle essentiel ici, car il donnent lieu à un transfert de charge ⁴ qui permet d'une part de stabiliser la structure cristalline, et d'autre part d'aboutir à une bande partiellement remplie. En pratique, la température est grande devant le paramètre de saut hors-plan ($t_{\perp}/k_B \sim 1\text{K}$) : le système est donc bidimensionnel en première approximation, ce qui éclaire la similarité frappante entre le diagramme de phase de ces organiques et celui des cuprates (en particulier la proximité des phases antiferromagnétique et supraconductrice).

Les différents membres de cette famille de conducteurs organiques se distinguent à la fois par la manière avec laquelle les molécules s'empilent (on a représenté l'empilement κ sur la figure 2.1), ce qui modifie de façon essentielle la structure de bande, et aussi par la nature de l'anion. Celui-ci agit comme une pression chimique, qui permet d'accorder la largeur de bande du système. Due à la forte compressibilité mécanique de ces matériaux, on peut arriver à un effet similaire en appliquant une pression gaz de quelques centaines de bars. En comprimant les molécules davantage entre elles, la pression conduit en effet à un accroissement de la conductivité dans le plan, et donc à un caractère plus métallique (comme indiqué sur le diagramme de phase) ⁵.

⁴Capture d'un ou plusieurs électrons de chaque molécule organique.

⁵Il faut noter que la pression peut provoquer un effet opposé dans le cas d'isolants de bande dont le gap est provoqué par une hybridation entre deux orbitales différentes : pour Yb, la transition métal-isolant se produit ainsi

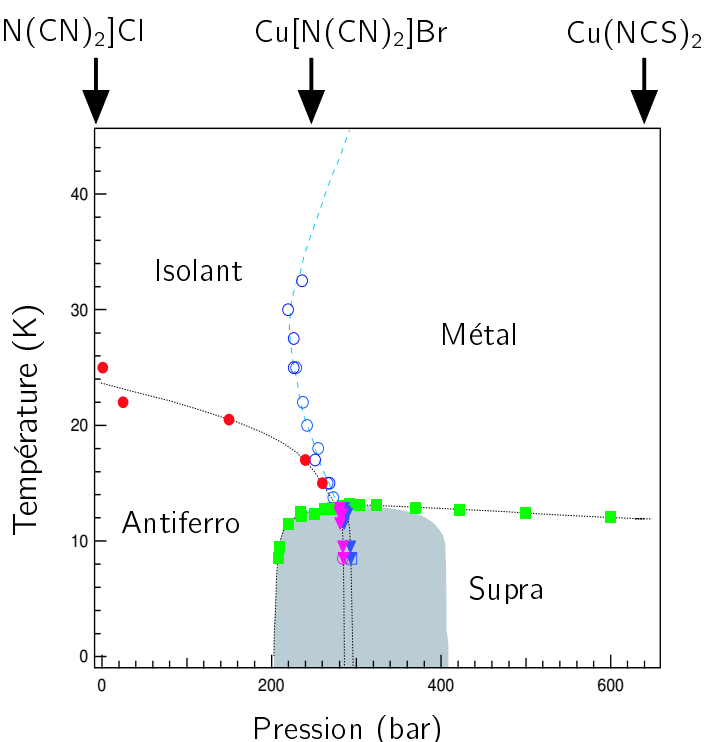


Fig. 2.2 – Diagramme de phase du composé au chlore (extrait des mesures de RMN [3]). On indique la position relative par rapport à d'autres composés de la famille κ -(BEDT-TTF) $_2$ X (l'anion X est indiqué au sommet du graphe).

□ Un composé corrélé

Les interactions fortes entre les électrons se manifestent de plusieurs manières dans les organiques bidimensionnels. Tout d'abord dans la nature du fondamental du système : l'émergence d'une phase supraconductrice au voisinage d'un ordre antiferromagnétique est un signe que la force d'appariement entre électrons est médiée par les fluctuations de spins [5]. Il semble de plus bien établi à l'heure actuelle que la symétrie du gap supra soit non conventionnelle [1], et de nombreux effets non BCS ont été mis en évidence : les mesures de microscopie à effet tunnel se paramétrisent bien avec un gap de symétrie $d_{x^2-y^2}$, l'effet isotopique est très faible, et l'on retrouve des comportements de type pseudogap dans les expériences de RMN (diminution du "Knight shift" et renforcement du taux de relaxation T_1^{-1} au-dessus de T_c).

La partie paramagnétique du diagramme de phase est aussi le jeu d'effets très forts des corrélations, puisque le système est isolant à basse pression, métallique à haute pression, en passant par une transition de Mott autour de $P=300$ bars (pour κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl). Une évidence directe des corrélations électroniques est donnée par l'écart important entre les mesures de susceptibilité, chaleur spécifique (coefficient γ) et masse effective par rapport aux valeurs obtenues dans des calculs de structure électronique [6] (avec des renormalisation allant typiquement d'un facteur 2 à 4). Une série d'expériences très significatives (sur un composé

à pression croissante (du métal vers l'isolant) [4].

plus métallique, avec un anion différent) a par ailleurs été menée dans le but de caractériser l'évolution de la masse effective m^* en fonction de la pression [7]. Cette quantité, obtenue par mesures d'oscillation de la magnéto-résistance (effet Shubnikov - de Haas) est montrée à la figure 2.3. Pour confirmer l'origine électronique de cet effet (la pression conduisant aussi à une distorsion de la structure de bande), une estimation de la masse nue m_{opt} a été extraite de mesures de conductivité optique [8] grâce à la règle de somme (n est la densité de porteurs) :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \sigma(\omega) = 4\pi \frac{ne^2}{m_{opt}} \quad (2.1)$$

Cette quantité, montrée au panneau droit de la même figure, est effectivement moins singulière que m^* .

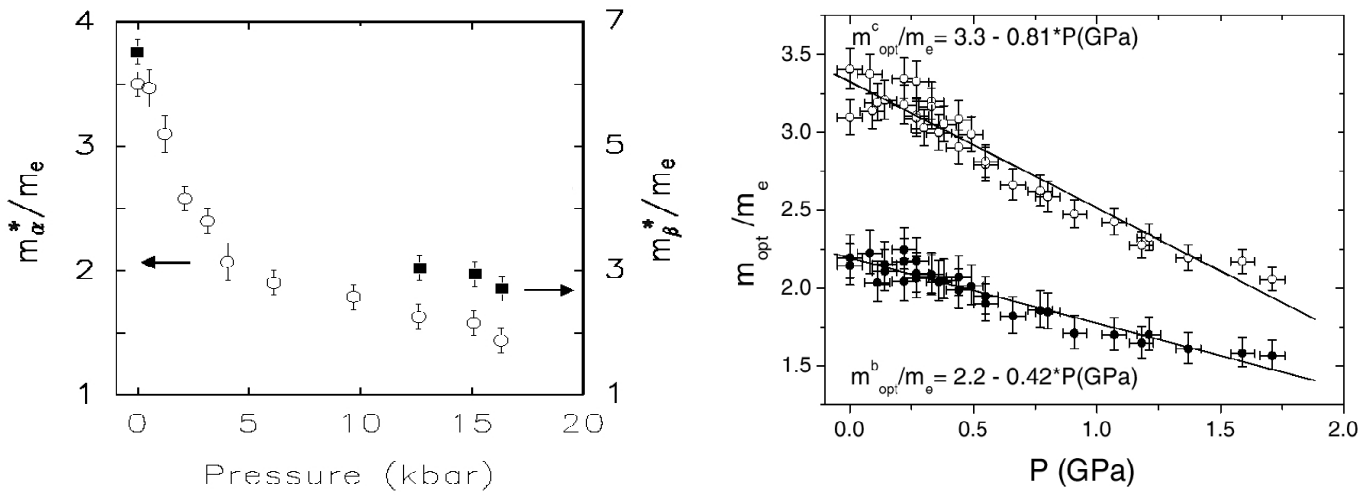


Fig. 2.3 – À gauche : masse effective (obtenue par oscillations de magnéto-résistance [7]). À droite : masse nue déterminée grâce à des mesures de conductivité optique [8] pour le composé avec $X=\text{Cu}(\text{NCS})_2$.

Une autre signature importante des corrélations se manifeste dans l'important transfert de poids spectral observé dans la conductivité optique (en fonction de la pression et de la température). Cet effet est illustré pour le composé au brome [9], pour lequel on observe un pic de Drude à basse température dans la phase métallique, qui a complètement disparu à 50 K (figure 2.4). Ces mesures montrent aussi l'existence d'une faible énergie de cohérence dans ce système, au-dessus de laquelle le transport est incohérent.

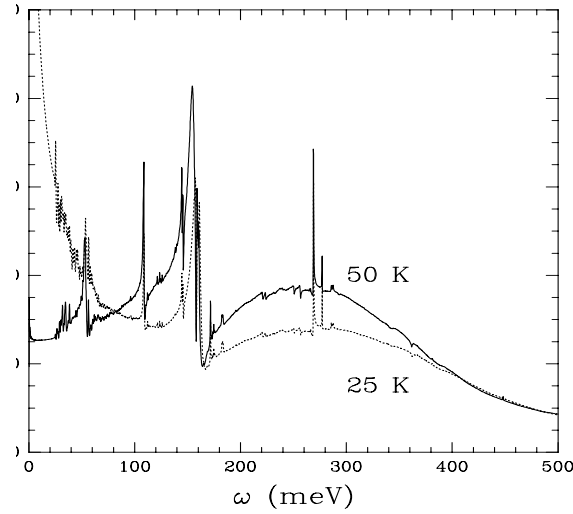


Fig. 2.4 – Conductivité optique de κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br à pression ambiante pour 25 K et 50 K, d’après [9].

□ Mesures de transport

De premières mesures de résistivité sur κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl (dans les plans) ont été effectuées par H. Ito il y a quelques années déjà [10], et aboutissent à un diagramme de phase en accord avec les autres déterminations expérimentales (le transport permet de localiser plus ou moins facilement les phases antiferromagnétique, supraconductrice et la transition métal-isolant). Cette étude a été reconsidérée plus récemment par P. Limelette au cours de sa thèse au Laboratoire de Physique des Solides d’Orsay, selon des motivations à la fois techniques et physiques. Tout d’abord, la grande compressibilité des organiques a été l’idée motrice pour reprendre l’étude détaillée du transport en balayant la pression (à température fixée). Un tel dispositif expérimental, développé dans le groupe de D. Jérôme (au LPS), se démarque des techniques usuelles par la grande qualité des données ainsi obtenues : les mesures isothermes autorisent en effet un très bon contrôle de la température, tandis que travailler à pression constante ne mettrait pas à l’abri de fuites qui viennent parasiter la mesure lorsque l’on change la température. Cette expérience a ainsi permis de mettre clairement en évidence l’existence d’une faible échelle de cohérence dans les données de transport, ce qui a conduit à une étude globale du diagramme de phase paramagnétique et de ses “crossovers” entre les différents régimes de conduction. Il s’agit par ailleurs de la première tentative d’étude des propriétés critiques de la transition de Mott (à température finie).

Une partie de ces données ⁶ est présentée à la figure 2.5 (voir aussi l’Article-1). Sur le panneau de gauche, la transition métal-isolant dans ce système apparaît clairement, et on peut déjà constater que l’allure générale de ces courbes est remarquablement similaire aux calculs DMFT sur le modèle de Hubbard (figure 1.11 et analyse théorique plus bas).

⁶Comme décrit plus haut, ces mesures ont été faites en fonction de la pression à T fixé ; la représentation finale des données en température à P constant est cependant plus parlante.

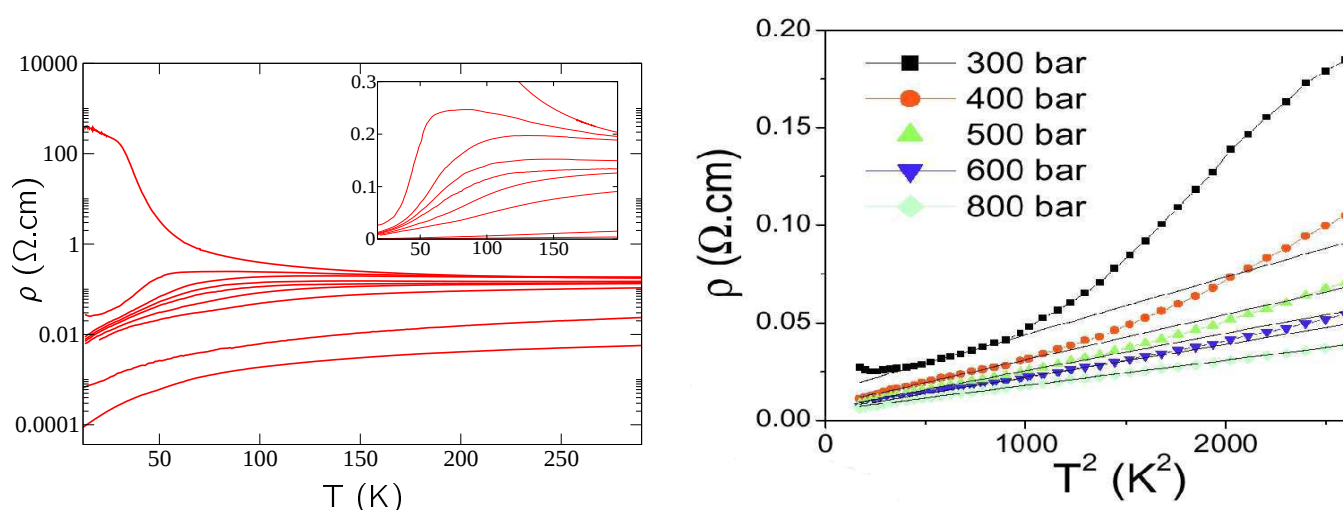


Fig. 2.5 – Résistivité en fonction de la température pour des pressions allant de l’ambiante jusqu’à 15 kbars. À gauche $\rho(T)$ est en échelle logarithmique et linéaire (insert), pour illustrer la transition de Mott. À droite : $\rho(T)$ en fonction de T^2 à basse température démontre l’évolution de l’échelle de cohérence avec la pression.

À droite, sur la même figure, est représenté le comportement basse température de ces données, qui met en évidence le caractère Liquide de Fermi de la phase métallique. Ce qu’il faut remarquer est la manière dont les courbes décollent de la loi du T^2 au fur et à mesure que l’on se rapproche de la transition de Mott. La température $T^*(P)$ qui marque ce changement de régime est associée à des énergies un ordre de grandeur plus faibles que l’énergie de Fermi naïve donnée par les calculs de bande, un effet dû aux fortes corrélations dans ce matériau. L’effondrement de $T^*(P)$ à l’approche de la transition de Mott (autour de 280 bars) se comprend par un effet de renormalisation de la largeur de bande [11]. Pour les températures supérieures à T^* , la résistivité est croissante, mais dépasse la valeur de Mott ; c’est le régime mauvais métal.

Dans la zone de transition, on remarque que la résistivité n’est pas une fonction monotone de la température, mais passe par un maximum (contrairement à un métal normal). Ceci signale un “crossover” vers un régime de haute température que l’on désignera comme semiconducteur (la résistivité est décroissante avec T sans être pour autant activée). À pression plus faible (et en particulier à l’ambiante), on retrouve un comportement franchement isolant avec une résistivité activée (voir l’Article-1 pour plus de détails). Ces résultats sont résumés dans le diagramme de phase (paramagnétique) qui ouvre l’Article-1. Le but du paragraphe suivant est de montrer que l’ensemble de ces “crossovers” est capturé par l’approche de champ moyen dynamique.

2.1.2 Calcul de la résistivité en DMFT

Avant de pouvoir comparer les résultats théoriques avec les mesures précédentes, nous allons rentrer un peu dans les détails techniques concernant la manière de calculer la résistivité en DMFT. Il s'agit là d'une question délicate comme nous allons le voir, et les résultats expérimentaux nous ont conduit à améliorer de manière importante la façon dont ce calcul doit être fait.

□ Théorie de perturbation itérée

Il ne faut pas estimer que la méthode perturbative soit inutile pour l'étude du problème des fortes corrélations (comme le chapitre introductif pourrait le laisser entendre). En effet, s'il est désespéré de décrire le régime de couplage fort du modèle de Hubbard à deux ou trois dimensions avec une telle approche, l'action effective (1.8) se prête bien à un développement perturbatif en U [12] : c'est l'idée de départ de la théorie de perturbation itérée (IPT) [13]. Il est amusant de constater qu'IPT conduit à une transition de phase métal-isolant grâce à la non-linéarité introduite par l'équation d'autocohérence. En pratique cette méthode présente un accord quasi-quantitatif avec les résultats numériques jusque dans le régime corrélé (avec quelques bémols que l'on va discuter plus bas).

L'expression de la résistivité ρ_{DC} en DMFT nécessite de connaître seulement la self-énergie en fréquence réelle du modèle de Hubbard, $\Sigma(\omega + i0^+) \equiv \Sigma'(\omega) + i\Sigma''(\omega)$, car les corrections de vertex à la conductivité disparaissent à $d = \infty$:

$$\frac{1}{\rho_{DC}} = \sigma_{DC} = \frac{\beta}{\pi} D^2 \int d\epsilon D(\epsilon) \int d\omega \left[\frac{\Sigma''(\omega)}{[\omega - \epsilon - \Sigma'(\omega)]^2 + [\Sigma''(\omega)]^2} \right]^2 \frac{e^{\beta\omega}}{(e^{\beta\omega} + 1)^2} \quad (2.2)$$

Les solutionneurs d'impureté capables de réaliser le calcul de la self-énergie $\Sigma(\omega + i0^+)$ ne sont toutefois pas nombreux : le QMC pose le problème de la continuation analytique des données en fréquence de Matsubara, la Diagonalisation Exacte produit un spectre discrétisé donc inutilisable, et les méthodes de bosons esclaves ont des pathologies Non Liquide de Fermi. Nous nous sommes naturellement tournés vers la méthode IPT, qui consiste à résoudre le modèle d'Anderson perturbativement en U , en itérant l'équation d'autocohérence DMFT entre le bain et la fonction de Green physique. Les équations IPT sont extrêmement simples, et leur résolution se fait par itération numérique (utilisation de la transformée de Fourier rapide) :

$$\mathcal{G}_0^{-1}(i\omega_n) \equiv i\omega_n - \Delta(i\omega_n) \quad (2.3)$$

$$\Sigma(\tau) = U^2 \mathcal{G}_0^3(\tau) \quad (2.4)$$

$$\mathcal{G}_d^{-1}(i\omega_n) = \mathcal{G}_0^{-1}(i\omega_n) - \Sigma(i\omega_n) \quad (2.5)$$

$$\Delta(i\omega_n) = t^2 \mathcal{G}_d(i\omega_n) \quad \text{sur le réseau de Bethe} \quad (2.6)$$

Ces équations décrivent l'essentiel de la transition de Mott au demi-remplissage : point critique de Brinkman-Rice à $T = 0$, transition du premier ordre à $T > 0$, point critique terminal de type Ising, zone de coexistence U_{c1} - U_{c2} , etc... Le calcul de la résistivité (qui nécessite de prolonger ces équations pour des fréquences réelles, voir l'Appendice C) montre les quatre régimes de conduction observés dans les expériences sur κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl, figure 2.6.

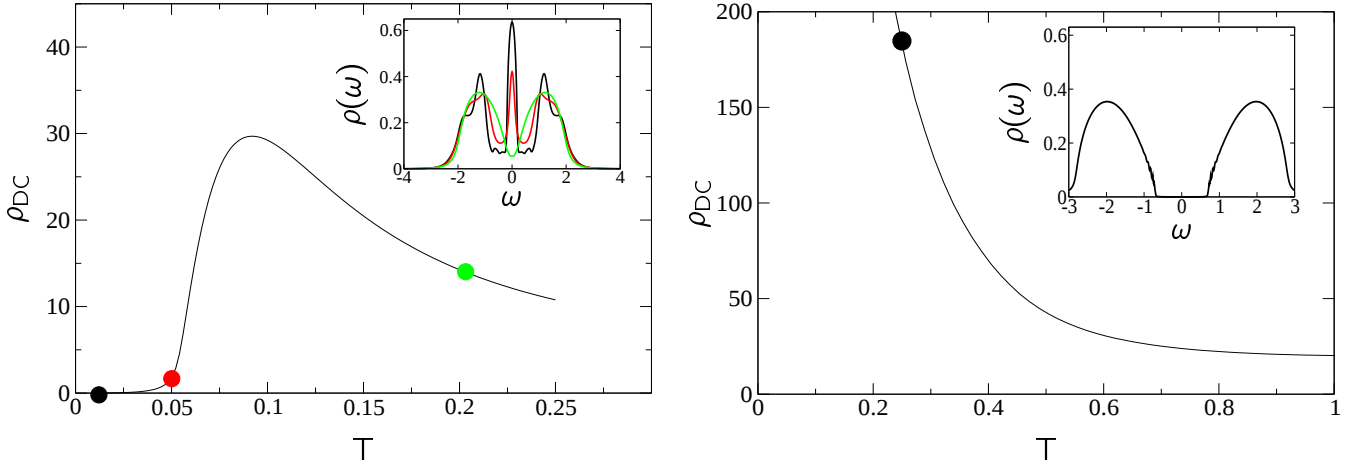


Fig. 2.6 – À gauche : résistivité dans le régime corrélé ($U = 2.4$) avec les densités d'états (en insert) associées aux régimes Liquide de Fermi, mauvais métal, et semiconducteur (correspondant aux trois points choisis sur la courbe de résistivité). À droite : résistivité pour $U = 3.5$ et densité d'états isolante.

La comparaison avec les densités d'états permet une compréhension intuitive de ces quatre régimes de conduction :

- Liquide de Fermi : le temps de vie est très long (la règle de Friedel est quasiment satisfaite) et $\rho_{DC} \propto T^2$. La température est inférieure à la température Kondo T^* du modèle d'impureté effectif, c'est à dire inférieure à l'échelle de cohérence du problème sur le réseau.
- Mauvais métal : le pic de "quasiparticule" est toujours là, mais est associé à un libre parcours moyen de l'ordre de la maille (limite de Mott). On a $\rho_{DC} \propto T$ (ce régime correspond à $T \gtrsim T^*$).
- Semiconducteur : la densité d'état montre un pseudogap (excitations thermiques), et ρ_{DC} a une décroissance lente avec T (on a $T \gg T^*$ ou $T > \Delta_g$).
- Isolant : le gap de Mott Δ_g entraîne une résistivité activée $\rho_{DC} \propto \exp(\Delta_g T/2)$ dans le régime $T < \Delta_g$.

□ IPT contre NRG

L'étude plus attentive de ces résultats montre cependant des insuffisances importantes lorsqu'on se rapproche de la transition de Mott. En effet, bien que de nombreuses quantités (poids de quasi-particule Z , double occupation $d_{\uparrow\downarrow}$) sont données avec une bonne précision en IPT, on note que le comportement du temps de vie, $\tau_0 \propto |\Sigma''(\omega = 0, T)|^{-1}$, est incorrect [14]. En effet, près du point critique U_{c2} , on s'attend à ce que le temps de vie s'annule comme $\tau_0 \propto Z^2$, ce qui donne la résistivité basse température :

$$\rho_{DC}(T) \propto \frac{T^2}{Z^2 D^2} \quad (2.7)$$

Le point gênant est que la renormalisation du temps de vie n'est pas critique en IPT. En effet, d'après l'équation (2.4), on trouve dans le métal très corrélé :

$$|\Sigma''_{\text{IPT}}(\omega = 0, T)| \propto \frac{U^2}{D^3} T^2 \quad (2.8)$$

le comportement exact attendu étant :

$$|\Sigma''_{\text{exact}}(\omega = 0, T)| \propto \frac{T^2}{Z^2 D} \quad (2.9)$$

Pour retrouver ce résultat, il faudrait incorporer les corrections de vertex singulières à la self-énergie, un programme qui n'a jusqu'ici pas été mené à bien. La forme de la résistivité dans le Liquide de Fermi corrélé est donc qualitativement fautive en IPT, et l'on doit se poser la question de la validité de cette approche pour calculer le transport. On constate en effet que la forme globale de la résistivité n'est pas en très bon accord avec l'allure des courbes expérimentales dans le régime corrélé, car la résistivité IPT démarre très lentement à basse température (comparer figures 2.5 et 2.6).

Ces considérations théoriques et expérimentales nous ont poussé à revoir l'étude du transport en DMFT par la méthode de Groupe de Renormalisation Numérique (NRG) [15]⁷. Cette technique numériquement exacte est parfaitement adaptée au problème que l'on se pose, puisqu'elle permet de déterminer la self-énergie à basse fréquence (sur l'axe réel) avec une grande précision. Pour illustrer les différences de comportement entre la solution exacte (NRG) et perturbative (IPT), on peut tracer la self-énergie à température nulle dans la phase métallique, figure 2.7. On remarque ainsi le comportement très différent à basse fréquence donné par ces

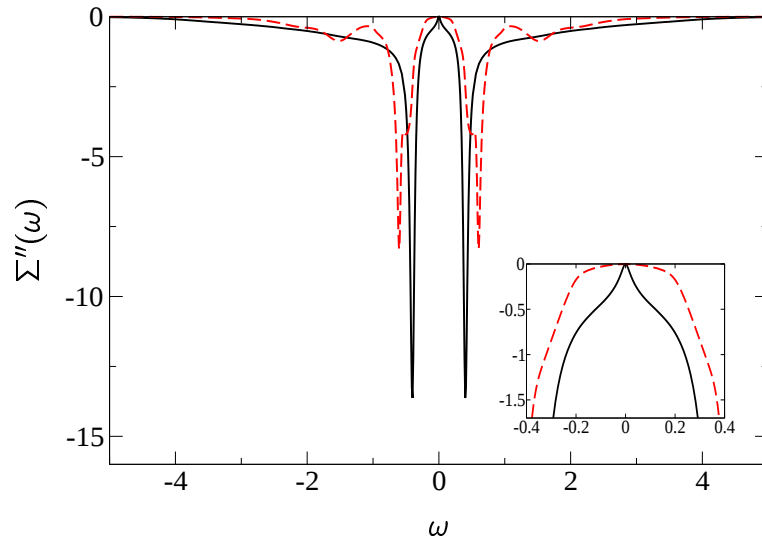


Fig. 2.7 – Partie imaginaire de la self-énergie pour $U = 2.6$ à température nulle : NRG (trait plein) et IPT (pointillé).

⁷Ces calculs ont été effectués par Theo Costi.

deux méthodes :

$$|\Sigma''_{\text{exact}}(\omega, T = 0)| \propto \frac{\omega^2}{(U - U_{c2})^2} \quad (2.10)$$

$$|\Sigma''_{\text{IPT}}(\omega, T = 0)| \propto U^2 \omega^2 \quad (2.11)$$

Les résistivités reflètent ce comportement de manière radicale près de U_{c2} , figure 2.8. On remarque que l'accord entre IPT et NRG est bon dans le régime peu corrélé ($U < 1.5$), mais se dégrade vite pour $U > 2$. En effet :

- contrairement à IPT, les résistivités NRG décollent rapidement avec la température d'après la propriété (2.7).
- à cause de cela, la position du maximum de $\rho_{\text{DC}}(T)$ se produit à plus basse température pour NRG que pour IPT.

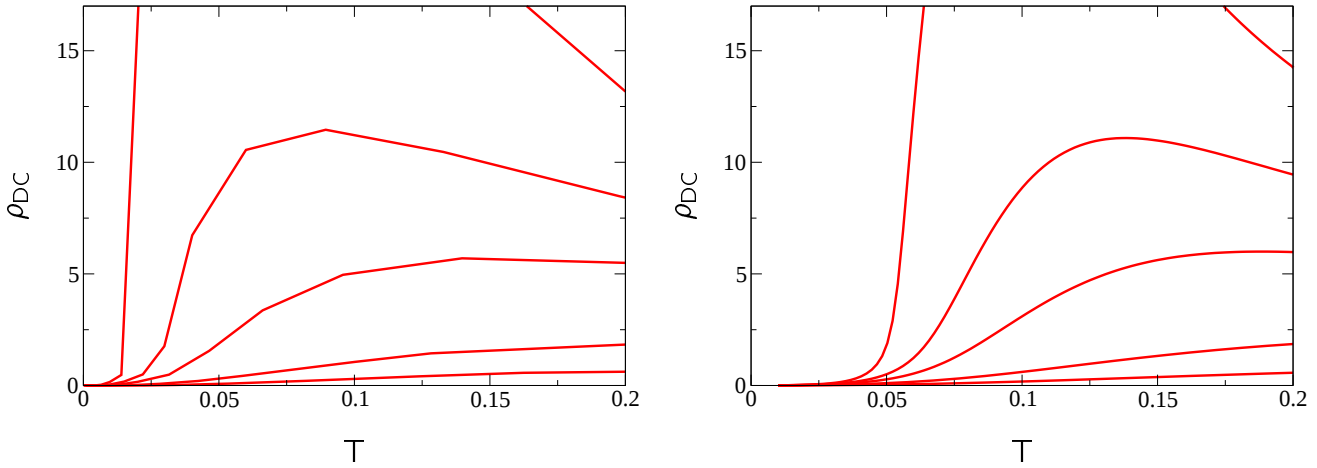


Fig. 2.8 – Faisceaux de résistivités (NRG à gauche et IPT à droite) sur le réseau de Bethe pour $U = 1.0, 1.5, 2.0, 2.2, 2.4$.

□ Comparaison aux expériences

Ces constatations précédentes se sont trouvées être utiles pour représenter les données expérimentales par un calcul théorique, car les tentatives utilisant la méthode IPT semblent incapables d'obtenir une forme correcte des courbes (à cause du comportement basse température évoqué ci-dessus). Pour effectuer la comparaison dans les conditions des expériences, il faut fixer l'interaction de Coulomb en faisant varier la largeur de bande (nous avons pris une semi-circulaire) pour simuler l'effet de la pression. La valeur choisie pour l'interaction se base à la fois sur des calculs de bandes ($U \simeq 4000K$), et sur la mesure de la température critique : le point de Mott terminal se produit en effet autour de $T_c \simeq 40K$ (voir le diagramme de phase 2.2), et la théorie prédit $T_c \simeq U/100$, cohérent avec $U \simeq 4000K$. Les courbes obtenues sont présentées à la figure 2.9.

Il faut finalement remarquer que l'on ne peut pas espérer pousser l'accord théorie/expérience jusqu'aux températures ambiantes, à cause de la forte dilatation des organiques qui se produit pour $T > 100K$. Dans ce régime la largeur de bande diminue fortement, et il n'est pas clair comment on peut corriger à volume constant les données expérimentales dans la mesure où l'on ne dispose pas actuellement de donnée de rayons X en fonction de la température et de la pression.

2.1.3 Nouveau diagramme de phase

Pour conclure, je ne résiste pas à montrer le diagramme de phase qui est l'aboutissement de l'étude des données de transport dans κ -BEDT, et de leur comparaison aux prédictions de la théorie de champ moyen dynamique.

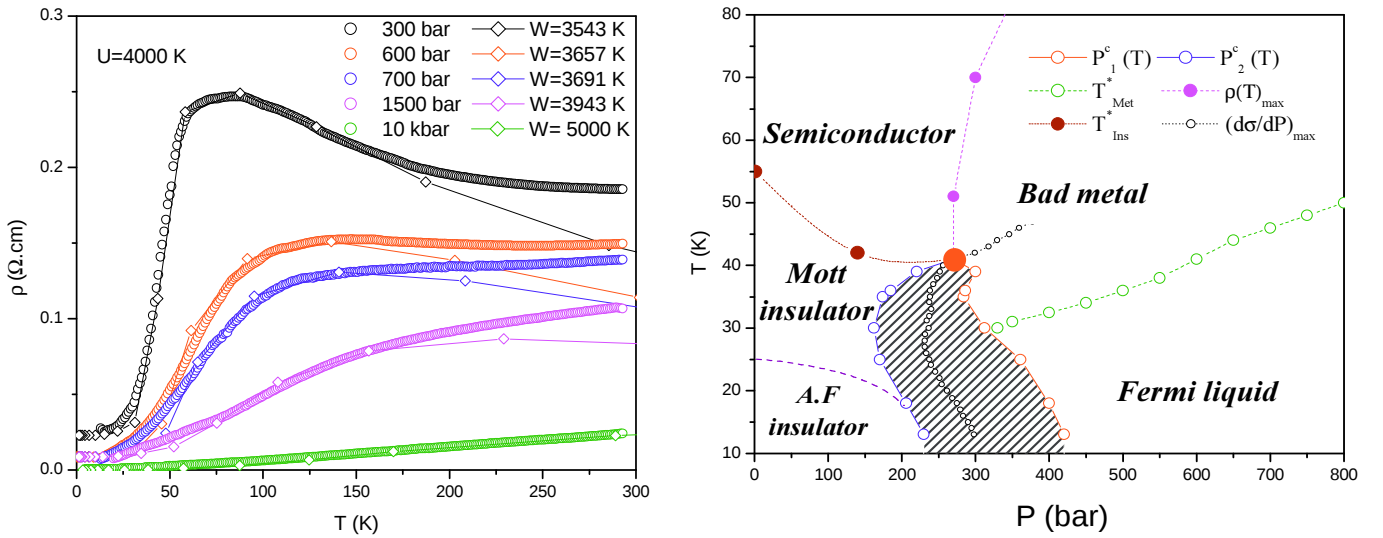


Fig. 2.9 – À gauche : comparaison des données expérimentales de transport (cercles rapprochés) sur κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl, - résistivité en fonction de la température pour différentes pressions - avec les calculs théoriques DMFT (losanges) obtenus avec la méthode NRG. À droite : diagramme de phase du même composé déterminé par les mesures de transport ; la partie hachurée correspond à la zone de transition (observation d'un hystérésis). La phase supraconductrice (pour $T < 13$ K) a été omise sur cette figure.

2.2 Transition de Mott en surface de TaSe₂ : photoémission

2.2.1 Présentation de l'expérience

La section précédente a illustré les changements importants qui se produisent dans la réponse des systèmes de fermions corrélés lorsque l'on traverse la transition de Mott. Il serait désirable d'avoir une mise en évidence plus directe de ce phénomène, pour présenter une image globale et cohérente des faits expérimentaux, et aussi pour tester la théorie plus en détail (DMFT a avancé de nombreuses prédictions non triviales concernant le spectre des excitations électroniques à la transition). Deux techniques de spectroscopie moderne sont disponibles pour mener cette étude (ARPES et STM), et nous allons discuter ici le statut actuel des expériences de photoémission. On présentera ensuite le cas très particulier d'une étude récente utilisant cette technique sur le sélénide de tantale TaSe₂.

□ Problèmes de la photoémission dans les systèmes de fermions corrélés

Les expériences de photoémission sur les matériaux corrélés ont connu très récemment des progrès formidables, bien que les premières études sur les oxydes de métaux de transition remontent à une trentaine d'années. En effet, dans les travaux antérieurs à 2001, l'observation d'un pic de quasiparticules renormalisées sur les spectres de photoémission a été plutôt négative, même si l'on a pu constater de fortes redistributions de poids spectral entre le niveau de Fermi et les satellites de haute énergie à l'approche de la transition métal-isolant [16]. Ce problème n'était pas seulement embarrassant pour les théoriciens, il était tout simplement en contradiction avec l'ensemble des mesures thermodynamiques (cohérentes avec un état liquide de Fermi fortement corrélé). Il a été reconnu dernièrement que la plupart de ces résultats de photoémission sont à remettre en cause, pour deux raisons. La première est liée à la qualité des surfaces (problème de clivage, défauts variés qui dépendent du matériau considéré), où une solution possible (dans le cas d'un problème de rugosité de surface) est d'utiliser un faisceau très concentré spatialement, pour limiter la taille de la zone d'inhomogénéité. Le second problème est qu'avec les énergies typiques des photons incidents en photoémission ($h\nu \sim 10\text{-}100\text{ eV}$), on ne sonde en général pas l'intérieur du matériau, mais une couche plus ou moins épaisse partant de la surface (suivant l'énergie). Le signal obtenu est ainsi la superposition de contributions très différentes, la physique en surface n'ayant souvent rien à voir avec ce qui se passe au coeur du matériau. Il est donc aujourd'hui possible d'extraire le signal intéressant (intérieur du système) en menant une analyse pour plusieurs longueurs d'onde différentes incidentes (le défi technique étant de maintenir une bonne résolution à grande énergie de photon). De nouvelles expériences [17–19] ont ainsi mis en évidence l'existence d'un pic étroit de quasiparticules dans plusieurs systèmes corrélés (CaVO₃, V₂O₃...), réconciliant ainsi les mesures spectroscopiques avec les résultats thermodynamiques sur ces systèmes, figure 2.10. Le diagramme de Fujimori (figure 1.3) n'est donc plus trop au goût du jour.

Une limitation dont il faut malgré tout tenir compte dans toutes ces études est la complexité des changements produits par les substitutions chimiques qui sont utilisées pour déclencher la transition de Mott : défauts de structure et désordre sont associées à cette manière de procéder. L'idéal serait d'utiliser la technique de pression gaz dont on a parlé au chapitre précédent, mais

2.2. TRANSITION DE MOTT EN SURFACE DE TaSe_2 : PHOTOÉMISSION

cela semble incompatible avec ce type de spectroscopie (des mesures d'optique dans l'infrarouge sont toutefois possibles sous pression gaz [20]).

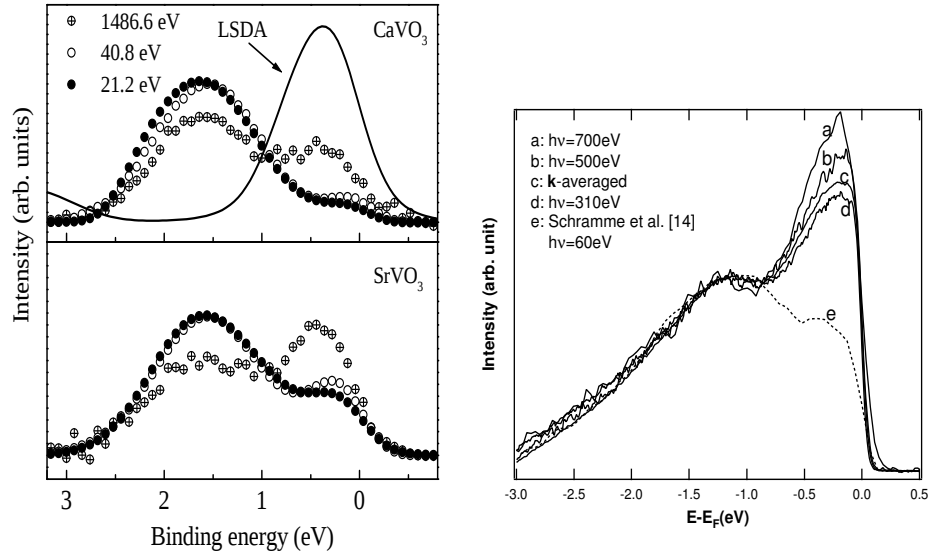


Fig. 2.10 – À gauche : photoémission intégrée en k sur CaVO_3 et SrVO_3 en fonction de l'énergie des photons incidents, d'après [17]. $\text{Ca}_x\text{Sr}_{1-x}\text{VO}_3$ est un système d^1 dont la largeur de bande est accordée par la substitution en Ca (à remplissage constant). À droite : mesures similaires sur V_2O_3 [19] (la courbe (e) présente par ailleurs d'importants effets de défauts de surface).

Une autre façon d'attaquer le problème a été suivie par M. Gioni et collaborateurs. Puisque le signal de surface est dominant dans les conditions normales où l'on réalise les expériences de photoémission, pourquoi ne pas observer la transition de Mott en surface ? Mettre cette idée en pratique n'est cependant pas simple. Commençons par remarquer tout d'abord qu'à la surface d'un matériau corrélé les interactions doivent jouer un rôle plus important qu'en son intérieur. Cela s'explique en effet par la diminution conjointe de l'écrantage et de la connectivité, qui respectivement renforce l'interaction locale entre électrons et affaiblit leur énergie cinétique. Un tel matériau exhibant une transition de Mott en surface doit donc présenter une physique assez régulière pour les propriétés macroscopiques (on s'attend à une résistivité métallique). De plus, il faut trouver un moyen de balayer la transition de Mott, et utiliser pour cela la pression dans une expérience de photoémission est malheureusement exclu. Il existe malgré tout un candidat qui pourrait satisfaire tous ces critères : le dichalcogène TaSe_2 . Examinons tout d'abord les propriétés physiques de ce composé pour expliquer de quoi il retourne, avant de présenter les résultats des mesures de photoémission.

□ TaSe₂ : structure

Les dichalcogènes de métaux de transition de type d^1 (TaS₂, TaSe₂, NbSe₂...) constituent une famille aux propriétés physiques assez uniformes⁸ : ce sont des métaux ou isolants bidimensionnels qui exhibent une onde de densité de charge ("charge density wave", CDW) associée à une déformation périodique de la structure cristalline [21–23]. Ces matériaux consistent en des couches superposées épaisses de trois atomes (Se-Ta-Se), comme le montre la figure 2.11 (la notation 1T caractérise l'agencement des couches entre elles : suivant la technique de synthèse employée, plusieurs types d'empilements sont possibles). À haute température, quand l'onde ne s'est pas encore formée, les couches de sélénium et de tantale présentent une structure hexagonale régulière. Le caractère bidimensionnel et l'existence de portions plates de la surface de Fermi (emboîtement important) est la cause de l'instabilité CDW, qui se produit à 473 K pour 1T-TaSe₂⁹. Finalement, TaSe₂ se clive bien, grâce à sa structure lamellaire, permettant une étude aisée en photoémission.

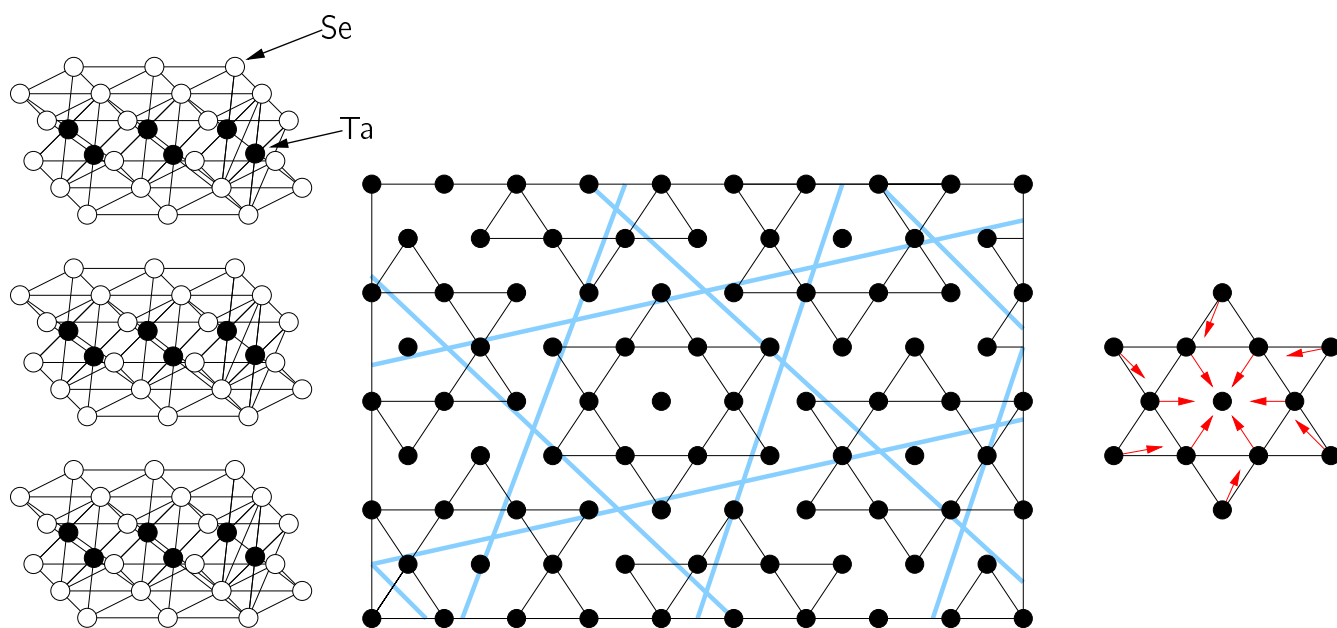


Fig. 2.11 – À gauche : structure tridimensionnelle de TaSe₂. Au milieu : maxima de charge (lignes grisées) dans plan des atomes de tantale. À droite : cellule élémentaire (étoile de David) montrant les déplacements schématisés des atomes dans l'onde de densité de charge.

⁸Le tantale isolé a la configuration [Xe]4f¹⁴5d³6s², mais apparaît sous la forme [Xe]4f¹⁴5d¹ dans le solide, après capture de deux électrons par chaque atome de chalcogène (qui complète ainsi sa couche p finale).

⁹L'origine de la distorsion peut être attribuée à des déformations moléculaires de type Jahn-Teller, plutôt qu'à une instabilité de nesting proprement dite (calculs "Extended Hückel" [24]).

□ **Onde de densité de charge : évidence**

On peut se rendre compte de l'existence de la modulation spatiale du réseau dans la phase CDW par une étude de diffraction d'électrons de basse énergie [22] (LEED). Celle-ci permet de déterminer les vecteurs d'onde $\vec{q}_i$ ($i = 1, 2, 3$) associés aux déformations périodiques, en particulier pour l'onde de charge :

$$\rho(n_1, n_2) = 1 + \rho \sum_{i=1,2,3} \cos \left[\vec{q}_i \cdot (n_1 \vec{a}_1 + n_2 \vec{a}_2 + \vec{R}_0) + \phi \right] \quad (2.12)$$

($\vec{a}_1$ et $\vec{a}_2$ sont les vecteurs de base de la structure non déformée de la couche de tantale, et n_1, n_2 les coordonnées dans le plan). Cette expérience montre que les maxima de densité électronique se trouvent être le long d'une structure de type "étoile de David" possédant 13 atomes de Ta par maille élémentaire (comme on le voit sur la figure 2.11).

Cette information n'est pas suffisante pour déterminer la position relative de l'onde avec le réseau sous-jacent. Pour cela, des mesures de spectroscopie par rayons X (figure 2.12) ont révélé un fait intéressant : en examinant le niveau $4f^{7/2}$ du tantale (autour de 25 eV), on constate une séparation progressive de la raie en deux sous-pics lors de la mise en ordre de l'onde à 473 K, pour arriver à un écart maximal de l'ordre de 0.7 eV à basse température [23].

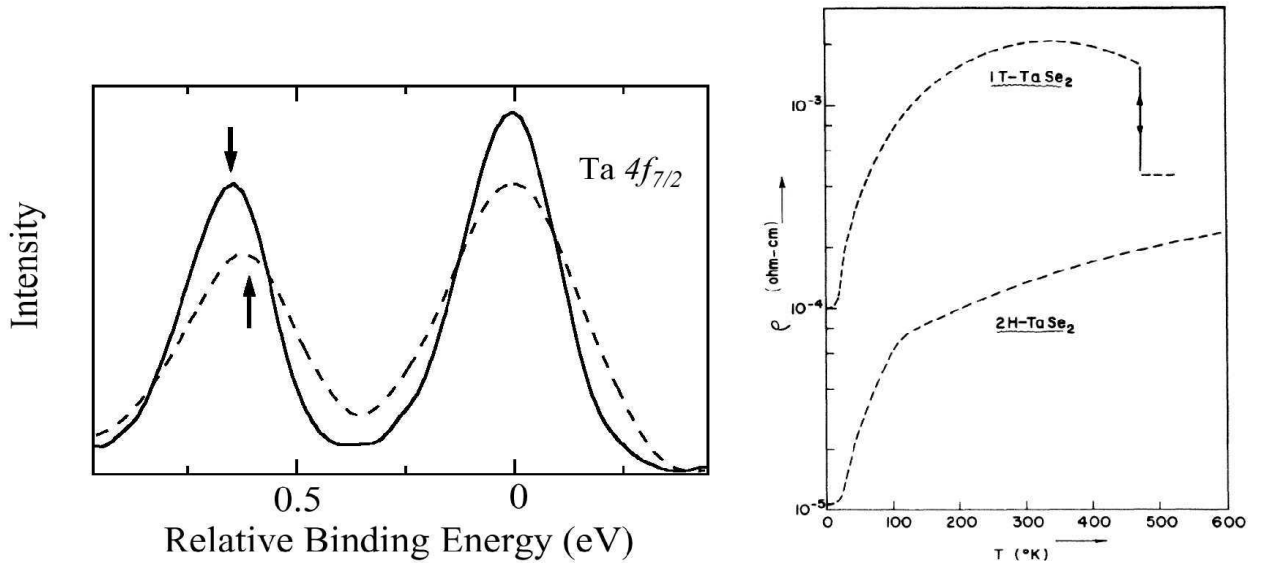


Fig. 2.12 – À gauche : lignes $4f^{7/2}$ des atomes de tantale à 300 K (pointillés) et 70 K (trait plein), d'après [25] (voir aussi [23]) ; l'augmentation du décalage entre les lignes à plus basse température est la conséquence d'une plus grande amplitude de l'onde de densité de charge. À droite : résistivité de 1T-TaSe₂ en fonction de la température.

Pour expliquer cet effet, on suppose que les atomes peuvent être regroupés en classes d'équivalences (vis à vis de la densité électronique ressentie), de façon que la présence de deux pics et non d'une courbe sans structure montre qu'il y a peu de sites inéquivalents. On en déduit ainsi que la structure a une symétrie maximale, avec des populations relatives 6 : 6 : 1

(6 dans les triangles externes, 6 dans la couronne hexagonale et 1 au centre de l'étoile), voir la figure 2.11. Ceci permet de fixer phase relative ϕ et l'origine $\vec{R}_0$ des composantes de la modulation de charge, équation (2.12).

La mise en ordre de l'onde de densité de charge est associée comme on l'a signalé plus haut à une distorsion du réseau par rapport à la situation hexagonale parfaite (figure 2.11 à droite). On obtient ainsi une levée de dégénérescence complète du multiplet t_{2g} en trois sous-bandes d_{xy} , $d_{x^2-y^2}$, d_{z^2} , la dernière seulement étant remplie (avec un électron) [24]. L'interprétation standard est donc qu'on se retrouve avec une seule bande, demi-remplie, au niveau de Fermi, et le système est bien métallique si l'interaction de Coulomb n'est pas trop forte.

□ Transition de Mott en surface

Pour TaS_2 une ouverture du gap de Mott a été observée à basse température dans des expériences de photoémission [26–28], mais celle-ci coïncide avec la formation brutale de l'onde de densité de charge (vers 180 K). Le phénomène n'est donc pas observé dans sa pureté originelle. L'avantage de TaSe_2 sur le composé au soufre est le suivant : lorsque l'onde de densité de charge se forme à haute température (473 K), le système reste métallique, comme on le voit sur la figure 2.12 (à droite). Les mesures de diffraction électronique semblent d'ailleurs confirmer qu'aucune modification structurale supplémentaire ne se produit aux températures inférieures, mis à part une augmentation de l'amplitude de l'onde de densité de charge, et donc de la distorsion du réseau. Le signal de photoémission montre cependant une ouverture d'un gap au niveau de Fermi autour de 220 K (figure 2.13), qu'on associe à une transition de Mott à la surface du matériau seulement (la résistivité restant monotone).

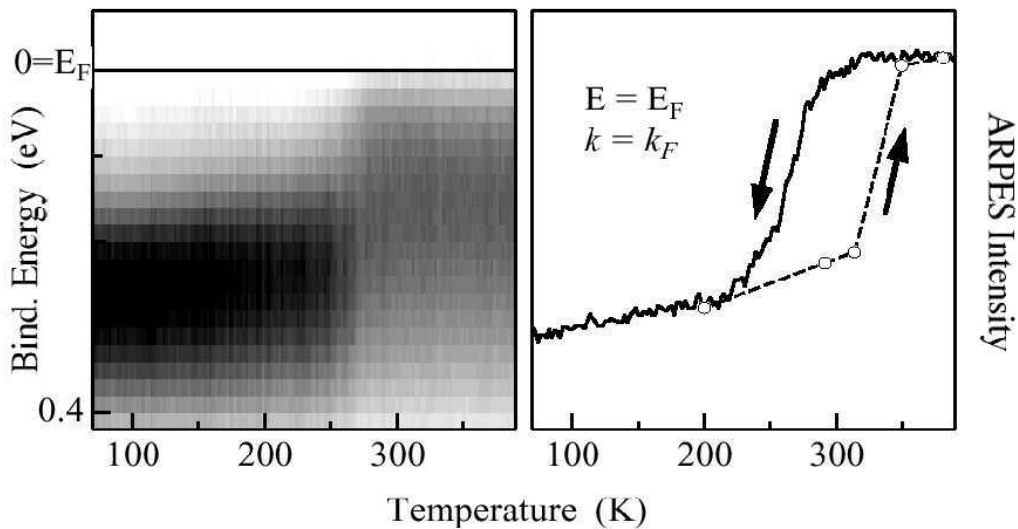


Fig. 2.13 – À gauche : intensité du signal de photoémission sur la surface de Fermi ($k = k_F$) en fonction de l'énergie des électrons et de la température. À droite : signal au niveau de Fermi ($E = E_F$, et toujours à $k = k_F$) pour un balayage dans les deux sens en température : mise en évidence d'un hystérésis.

L'interprétation de cette transition en terme de transition de Mott se base sur l'idée que l'augmentation de l'amplitude de la CDW est associée à une distorsion croissante du réseau qui provoque une diminution des intégrales de transfert entre les super-structures. Selon cet argument, il s'agit donc d'une transition de Mott contrôlée par la largeur de bande.

2.2.2 Lien avec la théorie

Les calculs théoriques que nous avons menés servent à illustrer la plausibilité de ce scénario, et à en poser certaines limites de façon assez précise. Tout d'abord, nous remarquons que la structure triangulaire des couches de Ta est une indication de la frustration magnétique dans les plans, ce qui justifie en première approximation d'utiliser une approche locale (DMFT). On s'intéressera à un modèle de Hubbard, une bande et demi-rempli, en prenant $U=0.6$ eV d'après la position de la bande de Hubbard inférieure dans le spectre de photoémission, figure 2.13. Si l'on fait confiance à DMFT, cela implique que le point critique de Mott terminal se trouve à $T_{\text{MIT}} = U/100 = 70$ K. C'est bien inférieur à la température où le gap s'ouvre dans le signal, ouvrant ainsi deux possibilités :

- soit on se trouve effectivement au-dessus de la transition de Mott (ce que semble indiquer l'absence d'une forte densité d'états au niveau de Fermi), et l'on assiste plutôt à un crossover métal-insolant. Cela pose cependant la question de l'origine de l'hystérésis observé.
- soit il se produit bien une transition de phase (du premier ordre au vu de l'hystérésis), mais DMFT n'est pas une bonne description du phénomène puisque l'estimation de la température critique (borne supérieure) est incompatible avec le résultat expérimental. De plus la largeur du pic de basse énergie obtenue par le calcul est beaucoup trop fine dans ce cas.

La différence entre ces deux interprétations est présentée à la figure 2.14.

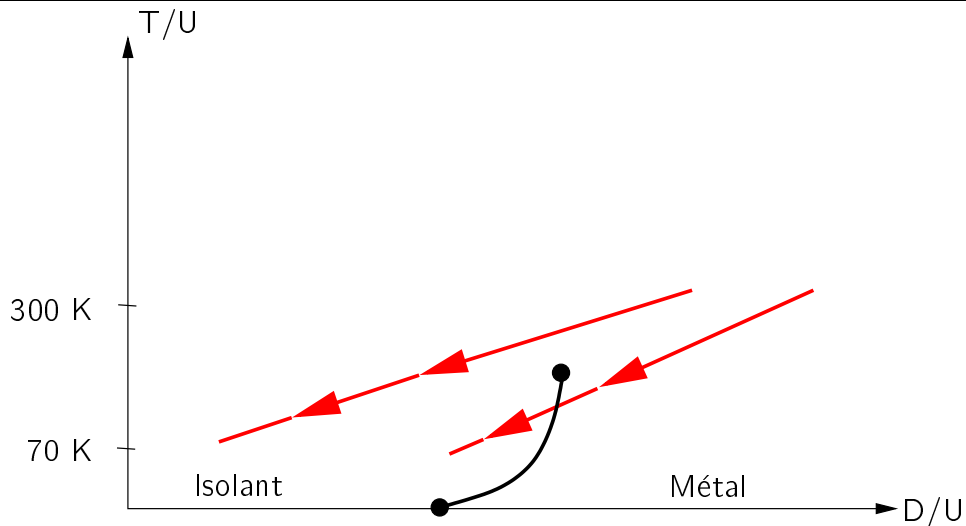


Fig. 2.14 – Trajectoires schématisques possibles dans l'interprétation des données en terme de transition de Mott.

Si l'on s'en tient à la première idée (crossover plutôt que transition), qui semble le plus probable car les mesures de résistivité montrent un caractère mauvais métal au-dessus de 70 K (la surface étant probablement encore moins métallique), on peut comparer les spectres expérimentaux à un calcul DMFT. Ce calcul, qui n'est qu'indicatif (on cherche à représenter approximativement les données), consiste à calculer la fonction spectrale résolue en k sur la surface de Fermi :

$$A(k_F, \omega, T) = -\frac{1}{\pi} \frac{\Sigma''(\omega)}{[\omega - \Sigma'(\omega)]^2 + [\Sigma''(\omega)]^2} \quad (2.13)$$

pour différentes températures, et avec une largeur de bande $W(T)$ dépendant de la température (de manière linéaire). Pour plus de clarté les spectres expérimentaux ont été symétrisés pour éliminer le facteur de Fermi du signal de photoémission, même si cette procédure n'est pas complètement licite ici. La comparaison théorie/expérience est donnée à la figure 2.15.

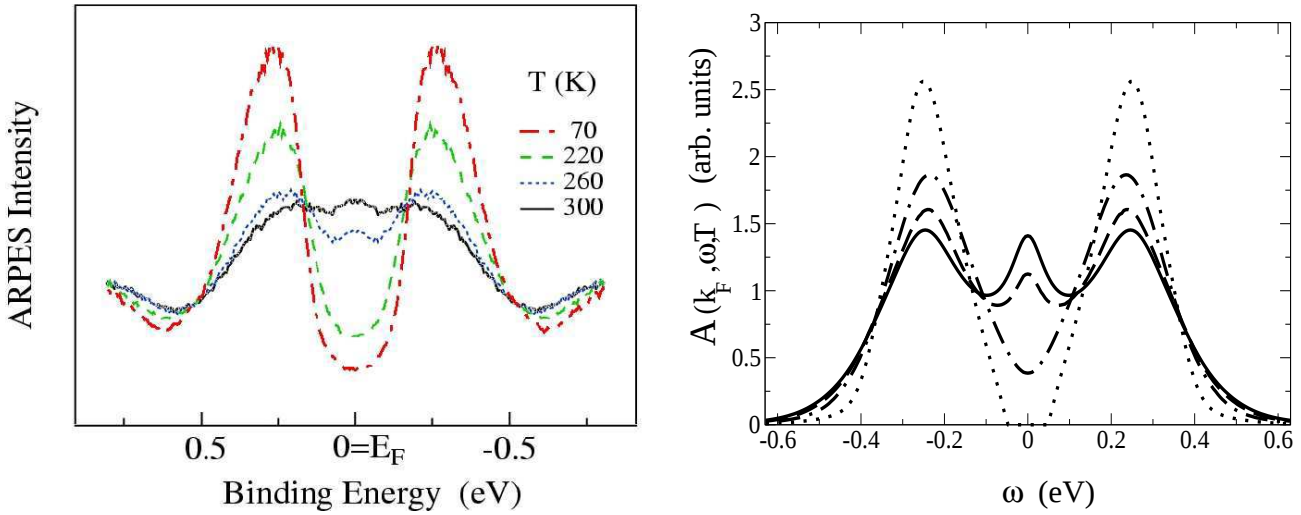


Fig. 2.15 – À gauche : spectres de photoémission (dépliés) pour différentes températures. À droite : calculs théoriques avec $U=0.6$ eV. Les largeurs de bande sont les suivantes $W=0.50$ eV à 300 K (trait); 0.48 eV à 260K (tiret); 0.44 eV à 220K (trait-point); et 0.36 eV à 70 K (point).

Cette comparaison révèle deux similarités importantes entre les spectres expérimentaux et la théorie : la présence d'un pic assez incohérent de quasiparticules, et la forte redistribution de son poids spectral vers les bandes de Hubbard lorsque l'on entre dans l'état isolant à basse température. On remarque cependant que le "pic" est peu séparé des bandes de Hubbard (effet de remplissage). S'agit-il d'un artefact expérimental (problème de résolution en énergie, de la symétrisation du spectre...) ou d'un effet intrinsèque qui n'est pas pris en compte en DMFT (comme celui discuté à la section 5.1) ? À ce stade, la question reste ouverte.

2.3 Conclusion

Nous nous sommes intéressés dans ce chapitre à certains aspects expérimentaux de la transition de Mott, en essayant d'apporter un éclairage par la théorie de champ moyen dynamique, à la fois pour tester la capacité prédictive de cette approche, mais aussi afin d'en tirer des enseignements sur ses limitations pour décrire les systèmes de fermions corrélés. L'étude expérimentale du transport dans un conducteur organique bidimensionnel a permis de mettre en évidence un riche diagramme des phases paramagnétique, que les calculs théoriques ont permis de supporter et d'interpréter physiquement. Ensuite, des mesures de photoémission à la surface du sélénide de tantale ont révélé une réorganisation importante du spectre des excitations électroniques de basse énergie, en accord avec le crossover métal-isolant mis en évidence en DMFT. Les questions ouvertes restent malgré tout les plus intéressantes : quelles est la nature du point critique de Mott terminal et comment décrire la transition métal-isolant de température nulle ?

Bibliographie du chapitre 2

- [1] J. Singleton et C. Mielke, *Contemp. Phys.* **43**, 63 (2002).
- [2] R. H. McKenzie, *Comm. Cond. Mat. Phys.* **18**, 309 (1998).
- [3] S. Lefebvre, P. Wzietek, S. Brown, C. Bourbonnais, D. Jérôme, C. Mézière, M. Fourmigué et P. Batail, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5420 (2000).
- [4] D. B. McWhan, T. M. Rice et P. H. Schmidt, *Phys. Rev.* **177**, 1063 (1969).
- [5] J. Schmalian, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4232 (1998).
- [6] Y. N. Xu, W. Y. Ching, Y. C. Jean et Y. Lou, *Phys. Rev. B* **52**, 12946 (1995).
- [7] J. Caulfield, W. Lubczynski, F. Pratt, J. Singleton, D. Ko, W. Hayes, M. Kurmoo et P. Day, *J. Phys : Condens. Matter* **6**, 2911 (1994).
- [8] A. Klehe, R. McDonald, A. Goncharov, V. Struzhkin, H. Mao, R. Hemley, T. Sasaki, W. Hayes et J. Singleton, *J. Phys : Condens. Matter* **12**, L247 (2000).
- [9] J. E. Eldridge, K. Kornelsen, H. H. Wang, J. M. Williams, A. Crouch et D. M. Watkins, *Sol. State Comm.* **79**, 583 (1991).
- [10] H. Ito, T. Ishiguro, M. Kubota et G. Saito, *J. Phys. Soc. Jap.* **9**, 2987 (1996).
- [11] W. F. Brinkmann et T. M. Rice, *Phys. Rev. B* **2**, 4302 (1970).
- [12] K. Yamada, *Prog. Theo. Phys.* **53**, 970 (1975).
- [13] A. Georges et G. Kotliar, *Phys. Rev. B* **45**, 6479 (1992).
- [14] M. J. Rozenberg, G. Kotliar et X. Y. Zhang, *Phys. Rev. B* **49**, 10181 (1994).
- [15] R. Bulla, T. A. Costi et D. Vollhardt, *Phys. Rev. B* **64**, 45103 (2001).
- [16] I. H. Inoue, I. Hase, Y. Aiura, A. Fujimori, Y. Haruyama, T. Maruyama, et Y. Nishihara, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2539 (1995).
- [17] K. Maiti, D. D. Sarma, M. J. Rozenberg, I. H. Inoue, H. Makino, O. Goto, M. Pedio et R. Cimino, *Europhys. Lett.* **55**, 246 (2001).
- [18] A. Sekiyama, H. Fujiwara, S. Imada, H. Eisaki, S. I. Uchida, K. Takegahara, H. Harima, Y. Saitoh et S. Suga, *cond-mat/0206471*.
- [19] S. K. Mo, J. D. Denlinger, H. D. Kim, J. H. Park, J. W. Allen, A. Sekiyama, A. Yamasaki, K. Kadono, S. Suga, Y. Saitoh, T. Muro, P. Metcalf, G. Keller, K. Held, V. Eyert, V. I. Anisimov et D. Vollhardt, *cond-mat/0212110*.
- [20] P. Limelette Communication privée.

- [21] **J. A. Wilson, F. J. D. Salvo et S. Mahajan**, *Phys. Rev. Lett.* **32**, 882 (1974).
- [22] **J. A. Wilson, F. J. D. Salvo et S. Mahajan**, *Adv. Phys.* **24**, 117 (1975).
- [23] **H. P. Hughes et R. A. Pollack**, *Phil. Mag.* **34**, 1025 (1976).
- [24] **M. H. Whangbo et E. Canadell**, *J. Am. Chem. Sol.* **114**, 9587 (1992).
- [25] **M. Grioni et L. Perfetti** Communication privée.
- [26] **R. Claessen, B. Burandt, H. Carstensen et M. Skibowski**, *Phys. Rev. B* **41**, 8270 (1990).
- [27] **R. A. Pollak, D. E. Eastman, F. J. Himpsel, P. Heimann et B. Reihl**, *Phys. Rev. B* **24**, 7435 (1981).
- [28] **R. Manzke**, *Euro. Phys. Lett.* **8**, 195 (1989).

Article 1

Phys. Rev. Lett. **91**, 16401 (2003)

Mott Transition and Transport Crossovers in the Organic Compound κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl

P. Limelette,¹ P. Wzietek,¹ S. Florens,^{2,1} A. Georges,^{2,1} T. A. Costi,³ C. Pasquier,¹ D. Jérôme,¹ C. Mézière,⁴ and P. Batail⁴¹Laboratoire de Physique des Solides (CNRS, U.R.A. 8502), Bâtiment 510, Université de Paris-Sud, 91405 Orsay, France²LPT-Ecole Normale Supérieure (CNRS-UMR 8549), 24, rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France³Institut für Theorie der Kondensierten Materie, Universität Karlsruhe, 76128 Karlsruhe, Germany⁴Laboratoire Chimie Inorganique, Matériaux et Interfaces (CIMI), FRE 2447 CNRS, Université d'Angers, 49045 Angers, France

(Received 27 January 2003; published 2 July 2003)

We have performed in-plane transport measurements on the two-dimensional organic salt κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl. A variable (gas) pressure technique allows for a detailed study of the changes in conductivity through the insulator-to-metal transition. We identify four different transport regimes as a function of pressure and temperature (corresponding to insulating, semiconducting, “bad metal,” and strongly correlated Fermi-liquid behaviors). Marked hysteresis is found in the transition region, which displays complex physics that we attribute to strong spatial inhomogeneities. Away from the critical region, good agreement is found with a dynamical mean-field calculation of transport properties using the numerical renormalization group technique.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.91.016401

PACS numbers: 71.30.+h, 74.70.Kn, 74.25.Fy

The Mott metal-insulator transition (MIT) is a key phenomenon in the physics of strongly correlated electron materials. It has been the subject of extensive experimental studies in transition metal oxides, such as (V_{1-x}Cr_x)₂O₃ or chalcogenides such as NiS_{2-x}Se_x (for a review, see Ref. [1]). In contrast to chemical composition, hydrostatic pressure allows in principle a continuous sweeping through the transition. For these materials, however, the appropriate range of pressure is several kilobars. For this reason, many fundamental aspects of the MIT are yet to be studied in detail. This issue is particularly important in view of recent theoretical predictions for, e.g., spectroscopy and transport close to the transition, which should be put to experimental test [2]. Layered charge-transfer salts of the κ -(BEDT-TTF)₂X family (where X is a monoanion) offer a remarkable opportunity for such a study. Indeed, these compounds are known to display a great sensitivity to hydrostatic pressure [3]. The κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl compound, in particular, (abbreviated κ -Cl below) displays a very rich phase diagram with paramagnetic insulating, antiferromagnetic insulating, superconducting, and metallic phases when pressure is varied over a range of a few hundred bars [3–5].

In this Letter, we report on an extensive experimental study of the in-plane resistivity of the κ -Cl compound for a range of pressure spanning both the insulating and the metallic phases. In contrast to previous studies [3], pressure is varied continuously using a helium gas cell, at constant temperature. By analyzing the pressure and temperature dependence of the measured resistivity, we have identified important crossover lines, which are summarized on the phase diagram of Fig. 1. These crossovers separate four different regimes of transport (to be described below) within the paramagnetic phase, corre-

sponding to an “insulator,” a “semiconductor,” a “bad metal,” and a Fermi-liquid metallic regime. Our measurements were performed both with increasing and decreasing pressure sweeps, yielding a determination of the two spinodal lines $P_1^c(T)$ and $P_2^c(T)$ shown in Fig. 1 (see also Fig. 3 below).

A critical comparison is made to dynamical mean-field theory (DMFT [2]), which describes successfully the observed transport crossovers, while the critical region

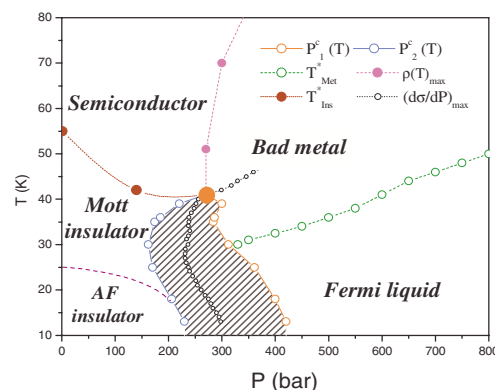


FIG. 1 (color online). Pressure-temperature phase diagram of the κ -Cl salt. The crossover lines identified from our transport measurements delimit four regions, as described in the text. The spinodal lines defining the region of coexistence of insulating and metallic phases (hatched) are indicated, as well as the line where $d\sigma/dP$ is maximum. The latter yields an estimate of the first-order transition line, ending in a critical end point. The transition line into an antiferromagnetic insulating phase has been taken from Ref. [5], while the superconducting phase [3,5] below 13 K has been omitted.

itself reveals more complex behavior. Numerical renormalization group (NRG) calculations of the resistivity within DMFT are reported here for the first time, and compare favorably to the experimental data.

This paper is based mainly on the data set displayed in Fig. 2. The in-plane conductivity was measured using a standard four-terminal method as a function of pressure between 1 bar and 1 kbar. The temperature range 13–52 K was investigated, with pressure sweeps performed every Kelvin (for clarity, only selected temperatures are displayed in Fig. 2). The data clearly demonstrate how pressure drives the system from a low-conductivity insulating regime at low pressure (below 200 bar) to a high-conductivity metallic regime at high pressure (above 350 bar), with a more complex transition region in the 200–350 bar range.

The pressure interval in which the normalized difference between these two measurements exceeds our experimental precision (inset of Fig. 3) corresponds to the region of coexistence between the insulating and metallic phases. This interval is found to be rather large (~ 100 bar) at 35 K, and still measurable (although the signal is close to our error bars) at 39 K. Note that a much narrower interval would be found from the width at half-maximum. We emphasize that varying pressure rather than temperature is a much more accurate experimental technique for the investigation of the coexistence region, because of the shape of the spinodal lines in the (P, T) plane. This also ensures a better accuracy on pressure (of order 1 bar) as compared to a cooling experiment. Our measurements yield a determination of the critical point in the $T_c \approx 39$ K to $T_c \approx 42$ K range ($P_c \approx 280$ bar), somewhat higher than previously reported from NMR [5] or sound velocity [6] experiments. The data in Fig. 3 are far from the “ideal” situation of a sharp discontinu-

ity in $\sigma(P)$ for $T < T_c$, and present rather a wide region of phase coexistence, in which the measured $\sigma(P)$ displays sizable noise. This suggests a complex physics in this regime, with the likely appearance of insulating and metallic domains in the material, and pinning by disorder.

We now focus on the low-pressure, insulating regime. At low temperature (below 50 K), an activation law $\rho \sim \exp(\Delta/2T)$ describes the data quite well. The temperature range over which this activation law applies is limited both from below and from above. Indeed, at the lowest temperatures a transition into the antiferromagnetic insulating phase is found (around 25 K at ambient pressure, see Fig. 1), while a crossover to a different insulating regime is observed at higher temperatures, as discussed below. Despite this limited range, a reasonable determination of the insulating gap Δ in the “paramagnetic insulator” region of Fig. 1 can be achieved, since $\Delta \gg T$. An approximately linear pressure dependence (see Fig. 4) is found: $\Delta \approx 740 - 2P_{\text{bar}}$ (in Kelvin). Hence, the activation gap is still a *large scale* close to the coexistence region ($\Delta \approx 400$ K at 150 bar), of the order of 10 times the critical temperature associated with the transition. Δ cannot be reliably determined above 150 bar, but a rough extrapolation would lead to a gap closure around 370 bar, on the *high-pressure side* of the coexistence region of Fig. 1, suggesting that the finite-temperature Mott transition in this material is *not driven* by the closure of the Mott gap. At higher temperature (above $T \approx 50$ K at ambient pressure), the T dependence of the resistivity deviates from the above activation law (inset of Fig. 4). This crossover into a “semiconducting” regime, which extends over much of the high- T part of the phase diagram, is indicated in Fig. 1. Interestingly, the crossover scale is an *order of magnitude smaller* than the insulating gap.

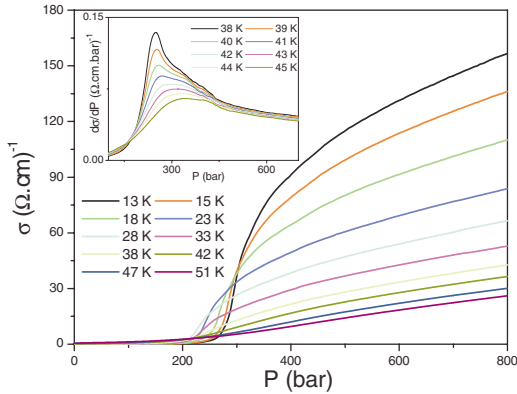


FIG. 2 (color online). Pressure dependence of the in-plane conductivity σ at different temperatures. The inset shows the derivative $d\sigma/dP$ which reveals a sharp peak at low temperature.

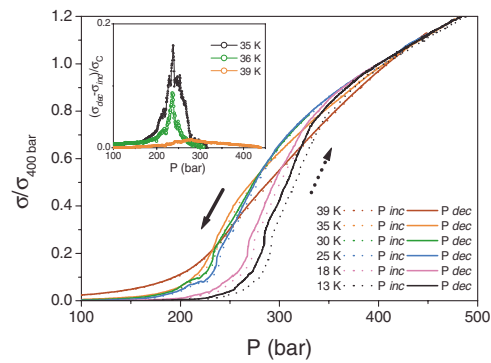


FIG. 3 (color online). Conductivity measured for increasing (σ_{inc}) and decreasing (σ_{dec}) pressure sweeps, at different temperatures up to 39 K. Hysteresis at 35 and 39 K is more apparent in the difference $\sigma_{\text{dec}} - \sigma_{\text{inc}}$ (inset).

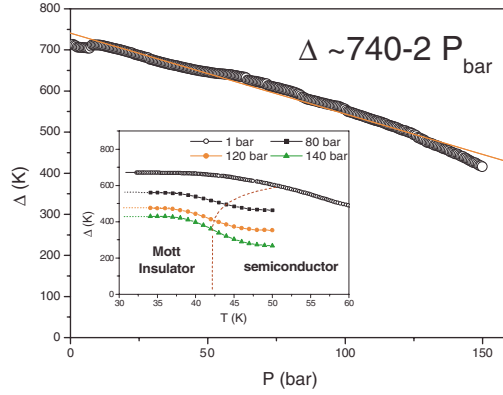


FIG. 4 (color online). Pressure dependence of the paramagnetic gap. The inset displays $\Delta = 2d\ln\rho/d(1/T)$ vs T for a few pressures, from which the crossover from a Mott insulator to a semiconductor is identified.

The high pressure regime above 300 bar is now considered. As demonstrated in the right inset of Fig. 5, the resistivity in this regime has a quadratic, Fermi-liquid dependence upon temperature at low temperatures: $\rho = \rho_0(P) + A(P)T^2$. The quality of the fit, obtained by replotting the data set of Fig. 2 as a function of T^2 , illustrates the high precision of the variable pressure technique. The coherence temperature T^* above which this law is no longer valid (of the order of 35 K at 500 bar) defines the onset of a bad metal regime, as indicated in Fig. 1. The prefactor $A(P)$ of the T^2 dependence is found to depend strongly on pressure, as displayed in Fig. 5, and the product $A(P) \times (T^*)^2$ remains approximately pressure independent. These findings correspond to a strongly correlated Fermi-liquid regime at

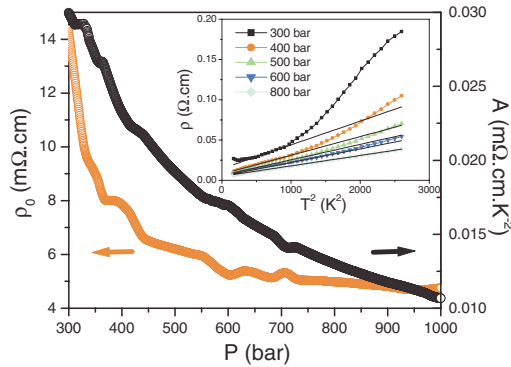


FIG. 5 (color online). Pressure dependence of the T^2 coefficient A and residual resistivity ρ_0 . Inset: Plot of ρ vs T^2 , also showing the increase of T^* with pressure (straight lines are guides to the eyes).

low temperature. We note that the residual resistivity has a weaker pressure dependence than A , but does increase close to the coexistence region. While $A(P)$ cannot be determined precisely below 280 bar, the data suggest a divergency of A at P of order 200 bar, significantly smaller than the pressure at which the extrapolated insulating gap would vanish (of order 370 bar; see above). This suggests that the closure of the Mott-Hubbard gap and the loss of Fermi-liquid coherence are two distinct phenomena, associated with very different energy scales, as is also clear from the fact that the coherence scale T^* (a few tens of Kelvin) is much smaller than the insulating gap Δ (several hundreds Kelvin).

In order to better characterize the crossover into the bad metal as temperature is increased above T^* , we have performed measurements in a wider temperature range, up to 300 K, as displayed in Fig. 6. We confirm the general behavior reported by other authors [3]. At moderate pressures (a few hundred bars), the resistivity changes from a T^2 behavior below T^* to a regime characterized by very large values of the resistivity (exceeding the Ioffe-Regel-Mott limit by more than an order of magnitude) but still metalliclike ($d\rho/dT > 0$). For pressures in the transition region, this increase persists until a maximum is reached, beyond which a semiconducting regime is entered ($d\rho/dT < 0$). This regime is continuously connected to that found on the insulating side, at temperatures above 50 K. Figure 1 summarizes the four regimes of transport which we have described so far.

We now compare these experimental findings to the DMFT description of the Mott transition. Similarities between DMFT and some physical properties of BEDT organics have been emphasized previously [7,8]. One of

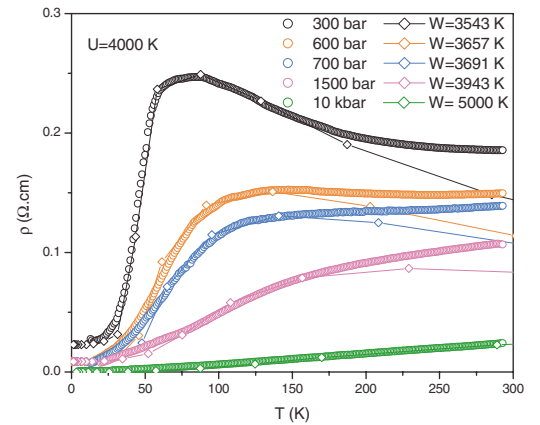


FIG. 6 (color online). Temperature dependence of the resistivity at different pressures. The data (circles) are compared to a DMFT-NRG calculation (diamonds), with a pressure dependence of the bandwidth as indicated. The measured residual resistivity ρ_0 has been added to the theoretical curves.

the key qualitative outcomes of our measurements is the *separation of energy scales* found in the transition region. This is also a distinctive feature of DMFT, in which Hubbard bands are well separated from the quasiparticle peak in the correlated metal, and a coexistence region of insulating and metallic solutions delimited by two spinodal lines is found. The three transport regimes found on the metallic side of the transition are well accounted for within DMFT [2,8–10]. In this theory, a Fermi-liquid regime with long lived quasiparticles applies for T below the coherence scale T^* , with $\rho = AT^2$ and $A \propto 1/(T^*)^2$. As T increases, an intermediate (bad metal) regime is reached, in which the low-energy peak is reduced and strongly temperature dependent, corresponding to a very short lifetime and a large resistivity increasing rapidly with T . As T is further increased, the peak disappears, leaving a pseudogap in the density of states, and a semi-conducting transport regime is found, with $d\rho/dT < 0$. We have performed DMFT calculations of the resistivity for a simple Hubbard model at half-filling. The NRG technique was used [11], which is crucial to capture correctly the enhancement of A , and to determine accurately the resistivity maximum. The coupling was fixed at $U = 4000$ K, consistent with the measured critical temperature (within DMFT, $T_c \simeq U/100$). A semicircular band was used, with a bandwidth W adjusted for each pressure, as indicated in Fig. 6. Comparison to the measured $\rho(T) - \rho_0$ involves also a global scale factor (the same for all curves). We find a good agreement between our calculations and the data, up to $T \sim 150$ K, for pressures ranging from the transition (300 bar) to 10 kbar. The fitted bandwidth increases by about 40% in that range. This value, together with the magnitudes of U and W is consistent with theoretical [12] and experimental [13] estimates for these materials. We attribute the discrepancy observed above ~ 150 K to the strong thermal dilatation of the materials, leading to a smaller effective bandwidth, an effect which could be taken into account by allowing for a T dependence of W in the calculation. The same effect might also contribute to the observed crossover on the insulating side at $T \sim 50$ K, even though DMFT also leads to a similar prediction of a purely electronic crossover at $T \ll \Delta$ [2,9].

Finally, we observe that our data *in the critical regime* around (T_c, P_c) do not appear to obey the critical behavior established within DMFT, namely, that of a liquid-gas transition in the Ising universality class [14]. The observed transition is much too smooth to be described in that manner. Besides the low dimensionality of these compounds, this could be attributed to strong spatial inhomogeneities or disorder in the transition region.

To conclude, we have performed detailed transport measurements on the κ -Cl compound using a variable pressure technique. Four transport regimes have been

identified as a function of temperature and pressure, separated by crossover lines. Hysteresis experiments have confirmed the first-order nature of the transition and allowed for the first detailed determination of the coexistence region. DMFT provides a good qualitative description of these crossovers, and new DMFT-NRG calculations of transport are in good agreement with the data. Further theoretical work is needed to understand the critical regime, however. We note that recent ultrasound velocity measurements [6] have revealed anomalies along crossover lines very similar to the two high-temperature lines reported here from transport measurements. This calls for further theoretical work aiming at connecting these two effects.

We are grateful to R. Chitra, V. Dobrosavlevic, G. Kotliar, R. McKenzie, M. Poirier, M. Rozenberg, and A. M. Tremblay for useful discussions. T. A. C., S. F., and A. G. are grateful to KITP-UCSB for hospitality during the final stages of this work (under NSF Grant No. PHY99-07949). T. A. C. acknowledges support from the SFB 195 of the DFG.

-
- [1] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
 - [2] For a review, see A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. J. Rozenberg, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 13 (1996).
 - [3] H. Ito, T. Ishiguro, M. Kubota, and G. Saito, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 2987 (1996), and references therein.
 - [4] R. H. McKenzie, *Science* **278**, 820 (1997).
 - [5] S. Lefebvre, P. Wzietek, S. Brown, C. Bourbonnais, D. Jérôme, C. Mèzière, M. Fourmigué, and P. Batail, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5420 (2000).
 - [6] D. Fournier, M. Poirier, M. Castonguay, and K. Truong, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 127002 (2003).
 - [7] R. H. McKenzie, *Comments Condens. Matter Phys.* **18**, 309 (1998).
 - [8] J. Merino and R. H. McKenzie, *Phys. Rev. B* **61**, 7996 (2000).
 - [9] M. J. Rozenberg, G. Kotliar, and X. Y. Zhang, *Phys. Rev. B* **49**, 10181 (1994).
 - [10] P. Majumdar and H. R. Krishnamurthy, *Phys. Rev. B* **52**, R5479 (1995).
 - [11] R. Bulla, T. A. Costi, and D. Vollhardt, *Phys. Rev. B* **64**, 045103 (2001).
 - [12] M. Rahal, D. Chasseau, J. Gaultier, L. Ducasse, M. Kurmoo, and P. Day, *Acta Crystallogr. Sect. B* **53**, 159 (1997).
 - [13] A. K. Klehe, R. D. McDonald, A. F. Goncharov, V. V. Struzhkin, Ho-Kwang Mao, R. J. Hemley, T. Sasaki, W. Hayes, and J. Singleton, *J. Phys. Condens. Matter* **12**, L247 (2000).
 - [14] G. Kotliar, E. Lange, and M. J. Rozenberg, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5180 (2000).

Article 2

Phys. Rev. Lett. **90**, 166401 (2003)

Spectroscopic Signatures of a Bandwidth-Controlled Mott Transition at the Surface of 1T-TaSe₂L. Perfetti,¹ A. Georges,² S. Florens,² S. Biermann,^{2,3} S. Mitrovic,¹ H. Berger,¹ Y. Tomm,⁴ H. Höchst,⁵ and M. Grioni¹¹*Institut de Physique des Nanostructures, Ecole Polytechnique Fédérale (EPFL), CH-1015 Lausanne, Switzerland*²*Laboratoire de Physique Théorique de l'Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, F-75231 Paris Cedex 05, France*³*Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, Batiment 510, 91405 Orsay, France*⁴*Department of Solar Energetics, Hahn-Meitner Institut, Glienicke Strasse 100, D-14109 Berlin, Germany*⁵*Synchrotron Radiation Center, University of Wisconsin, Stoughton, Wisconsin 53589-3097, USA*

(Received 11 October 2002; published 22 April 2003)

High-resolution angle-resolved photoemission data show that a metal-insulator Mott transition occurs at the surface of the quasi-two-dimensional compound 1T-TaSe₂. The transition is driven by the narrowing of the Ta 5*d* band induced by a temperature-dependent modulation of the atomic positions. A dynamical mean-field theory calculation of the spectral function of the half-filled Hubbard model captures the main qualitative feature of the data, namely, the rapid transfer of spectral weight from the observed quasiparticle peak at the Fermi surface to the Hubbard bands, as the correlation gap opens up.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.90.166401

PACS numbers: 71.30.+h, 71.10.Fd, 71.45.Lr, 79.60.Bm

Electronic correlations can modify the electronic structure of solids not only quantitatively, but also qualitatively, inducing new broken-symmetry phases which exhibit charge, spin, or orbital order, and more exotic states in low dimensions. One of the most notable consequences of electronic correlations is the much studied metal-insulator (*M-I*) Mott transition [1,2]. Recently, new theoretical approaches have considerably extended our understanding of this fundamental problem [2,3].

Many physical properties indirectly reflect the dramatic rearrangement of the electronic structure at the transition. Photoelectron spectroscopy, which probes the single-particle spectral function, can provide a direct view of such changes [4–6]. However, comparing samples with different compositions faces materials problems like stoichiometry, defects, and disorder. A quantitative analysis is further complicated by the known surface sensitivity of the technique [7,8]. An ideal experiment would record the energy and momentum-dependent spectrum, while tuning the crucial (*W/U*) parameter (*U* is the on-site Coulomb correlation energy; *W* is the bandwidth) *in the same single crystal sample*. Remarkably, it is possible to approach this ideal situation exploiting the occurrence of modulated structures [charge-density waves (CDWs)] in appropriate low-dimensional systems. There, the lattice distortion modulates the transfer integrals and therefore modifies the bandwidth. In materials that are close enough to a Mott transition, the reduced bandwidth may lead to an instability. There are strong indications for this scenario in the layered chalcogenide 1T-TaS₂, which presents a sharp order-of-magnitude increase of the resistivity at *T* = 180 K [9,10], with a strong rearrangement of the electronic states [11–15]. However, the complex phase diagram of the CDW in 1T-TaS₂

affects the electronic transition, which cannot be considered as a typical Mott transition.

Isostructural and isoelectronic 1T-TaSe₂ exhibits a similar CDW, but only one phase below *T_C* = 475 K. Its electrical resistivity remains metallic—albeit rather large—to very low temperatures [9], suggesting that the Se compound lies farther from the instability than the S analog. Nevertheless, a transition could still occur at the crystal surface, where the *U/W* ratio is expected to be larger as a result of smaller screening and coordination. The surface sensitivity of angle-resolved photoemission (ARPES) is ideal to investigate such an inhomogeneous state. In this Letter we present evidence for a Mott transition at the surface of 1T-TaSe₂. High-resolution temperature-dependent ARPES shows for the first time the disappearance of the coherent quasiparticle signatures at the Fermi surface and the opening of a correlation gap. These results are qualitatively well described by a dynamical mean-field (DMFT) calculation and provide new insight into the spectral properties of the *M-I* transition.

1T-TaSe₂ has a layered structure, with the *d*¹ Ta atoms in a distorted octahedral environment. Adjacent layers interact weakly through van der Waals gaps, and all physical properties exhibit a strong anisotropy. A three-fold CDW develops below *T_C* = 475 K, with a commensurate $\sqrt{13} \times \sqrt{13}$ superstructure, analogous to the much studied low-temperature CDW phase of 1T-TaS₂ [9]. In real space the CDW corresponds to a modulation of the atomic positions, within a 13 Ta atoms unit, in the so-called “star-of-David” configuration. Extended Huckel calculations [16] suggest that the CDW splits the Ta *d* conduction band into subbands which contain a total of 13 electrons per unit cell. Two subbands, carrying 6 electrons each, are filled and lie below the Fermi level. The

Fermi surface is formed by a half-filled subband carrying the 13th electron. The opening of a correlation gap in this subband is responsible for the resistivity jump in (bulk) 1T-TaS₂ [10].

We performed high-resolution ARPES measurements in Lausanne and at the Synchrotron Radiation Center, University of Wisconsin. The energy and momentum resolution were $\Delta E = 10$ meV and $\Delta k = \pm 0.02 \text{ \AA}^{-1}$, and the Fermi level location was determined with an accuracy of ± 1 meV by measuring the metallic edge of a polycrystalline gold reference. Single crystal samples grown by the usual iodine transport technique were characterized by Laue diffraction and resistivity measurements, which confirmed the assignment to the 1T polytype. They were mounted on the tip of a closed-cycle refrigerator and cleaved at a base pressure of 1×10^{-10} torr. We did not observe any sign of surface degradation or contamination over a typical 8 h run.

Figure 1 shows ARPES intensity maps ($h\nu = 21$ eV) measured at 300 and 70 K along the high-symmetry ΓM direction of the hexagonal Brillouin zone. A higher photon energy ($h\nu = 50$ eV) yields similar results. The maps correspond to the same CDW phase, as confirmed by low-energy electron diffraction (LEED), but exhibit remarkable differences. At 300 K the narrow topmost Ta d subband crosses the Fermi level at $k_{F1,2} \sim \pm 1/4\Gamma M$, in good agreement with band structure calculations [17]. The filled CDW subbands are visible at ~ 0.3 eV and, with lower intensity at larger binding energies (~ 0.8 eV) and momenta. The overall dispersion of the Ta d band is influenced by the CDW superlattice, as will be discussed elsewhere. The parabolic band with a maximum at Γ and ~ 0.5 eV is a Se p band. At 70 K the Ta d spectral weight is narrower and clearly removed from E_F , and a gap has appeared.

Bulk sensitive properties and surface sensitive LEED data rule out a structural phase transition between 300 and 70 K. The large spectral changes are therefore the consequence of an electronic surface transition. Signa-

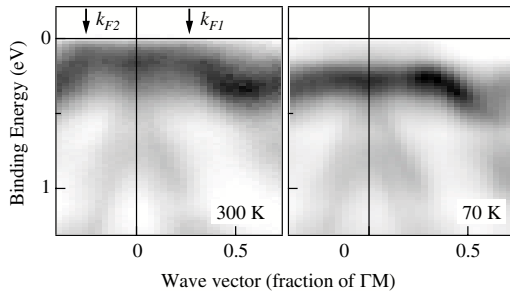


FIG. 1. ARPES intensity maps of 1T-TaSe₂ at $T = 300$ K (left) and $T = 70$ K (right) measured along the ΓM high-symmetry direction ($h\nu = 21$ eV). The arrows mark Fermi level crossings by the Ta “ d ” band at 300 K.

tures of a surface gap in 1T-TaSe₂ were previously observed at 70 K by scanning tunneling spectroscopy (STS) [18]. We characterized this transition by temperature-dependent measurements of the shallow Ta $4f$ core levels, which exhibit a CDW-induced fine structure [11,19]. We find (not shown) that between 300 and 70 K the CDW-split components sharpen, and their energy separation increases by 40 meV, in agreement with lower-resolution data [20]. We conclude that the CDW amplitude and the corresponding lattice distortion are larger at the lower temperature.

The increased distortion reduces the overlap between the “cluster orbitals” which form the basis of the band structure in the CDW phase. Calculations which explicitly account for this effect are not available, but the (W/U) ratio is certainly reduced, possibly below the critical value for the $M-I$ transition. This is confirmed by an inspection of the ARPES signal at $k = k_{F1}$ [Fig. 2(a)], which reveals a sudden loss of intensity near E_F below ~ 260 K, and the appearance of a strong signal centered at 0.26 eV. All spectra were normalized to the same integrated area. The intensity at E_F [Fig. 2(b)] exhibits a sharp step around 260 K, and a further linear decrease at lower temperature. The intensity and the spectral line shape (not shown) are recovered upon heating, but only at higher temperatures. The large hysteresis (~ 80 K) suggests a first-order transition [21].

In Fig. 3, following common practice in ARPES work on the cuprates, we symmetrized the spectra of Fig. 2(a) around E_F . This procedure removes the perturbing effect of the Fermi distribution on the intrinsic temperature dependence of the spectral function $A(k_F, \omega, T)$. The 300 K spectrum exhibits a broad (~ 1 eV) incoherent background and a weak quasiparticle (QP) feature at E_F . The QP signal disappears at lower temperature, and spectral weight is transferred to the lower and—as

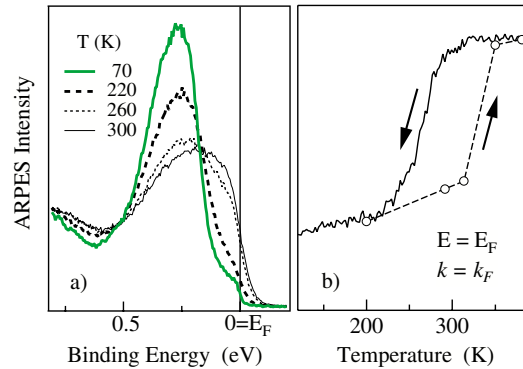


FIG. 2 (color online). (a) ARPES spectra measured at $k = k_{F1}$ between 300 and 70 K; (b) temperature dependence of the ARPES signal at the Fermi surface, showing a sharp break and a large hysteresis.

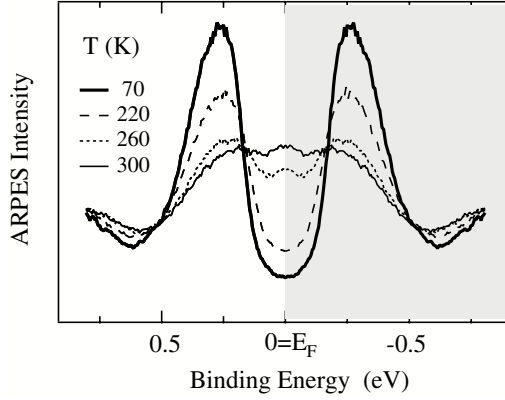


FIG. 3. Temperature-dependent ARPES spectral function at $k = k_{F1}$ ($h\nu = 21$ eV). The spectra have been obtained from the raw spectra $I(E)$ by symmetrization around E_F : $I^*(E) = I(E) + I(-E)$.

inferred by symmetry—upper sidebands, representing the lower (LHB) and upper (UHB) Hubbard subbands. The integrated intensity is conserved. We emphasize that the width (~ 100 meV) of the central peak is much larger than expected for a coherent quasiparticle at the Fermi surface of a “good” metal. Clearly, in the 220–260 K temperature range, the corresponding excitations are heavily scattered, and their lifetime is short. This “bad metal” character is consistent with the broad maximum and large value of the electrical resistivity of bulk 1T-TaSe₂ at 250–300 K [9].

The spectra of Fig. 3 are qualitatively consistent with the changes expected at the Mott transition. In order to substantiate this, we have calculated $A(k_F, \omega; T)$ for a one-band Hubbard model at half-filling, within the dynamical mean-field theory (DMFT) framework [3]. The “iterated perturbation theory” approximation [22] was used, and checks were made using quantum Monte Carlo and the maximum entropy method. The Coulomb term U was set at 0.52 eV, equal to the energy separation between the LHB and UHB features in Fig. 3. A semi-circular density of states was used, with a bandwidth W assumed to depend linearly on temperature between 300 K ($W = 0.50$ eV) and 70 K ($W = 0.36$ eV). These values are only indicative and are not the result of a specific attempt to find an optimum fit to the data, but we note that the overall magnitude of W is consistent with the dispersions observed in Fig. 1.

The high-temperature (300 and 260 K) calculated spectra (Fig. 4) correspond to a correlated metal in the incoherent regime, with a broad low-energy peak and two intense Hubbard sidebands. The central peak is strongly reduced at 220 K, and at 70 K it has disappeared completely, leaving two sharp features centered at $\pm U/2$ and separated by a real gap. The overall shape of the spectra is

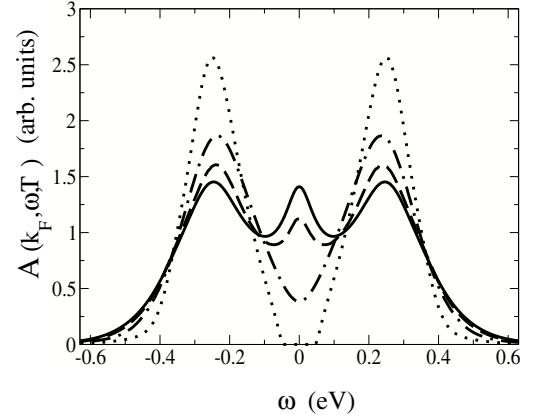


FIG. 4. Temperature-dependent spectral function $A(k_F, \omega)$ of the half-filled Hubbard model calculated within DMFT for the temperatures of Fig. 4. U was fixed at $U = 0.52$ eV, and the bandwidth is chosen as $W = 0.50$ eV at 300 K (solid line); 0.48 eV at 260 K (dashed line); 0.44 eV at 220 K (dash-dotted line); and 0.36 eV at 70 K (dotted line).

in good qualitative agreement with the data, as well as the dramatic transfer of spectral weight that takes place between the central peak and the Hubbard bands as the temperature is lowered. We observe that in both theory and experiment the spectral weight accumulated in the insulator near the maximum of the HB sidebands comes mainly from the QP central peak, but that a small fraction also comes from energies above 0.5 eV. This results in two energies at which all spectra approximately cross. The data provide the first direct momentum-resolved observation of two of the key predictions of DMFT regarding the one-particle spectrum through the Mott transition, namely, the three-peak structure in the metallic state [21] and the large transfers of spectral weight from the metal to the insulator [23–25].

The comparison of theory and experiment also reveals some differences. Unlike the calculated spectra, the intensity at E_F is never completely suppressed in the experimental spectra. This signal could originate from the underlying metallic bulk or from surface inhomogeneities (metallic “patches”) observed by STS [18]. It could also indicate that the tails of the LHB and UHB overlap slightly, a possibility which was considered in a different context [26]. Another quantitative difference is the sharper separation between the QP peak and Hubbard bands in the calculation. This is a known feature of DMFT which is likely to be weakened as dimensionality is lowered. Recent work in particular [27] suggests that long-wavelength charge modes partially fill the pre-formed gap.

From a theoretical standpoint, the main discrepancy concerns the value of the critical temperature at which the

first-order metal-insulator transition is observed. Indeed, with the observed value of U , the simple one-band Hubbard model treated within DMFT would have a first-order transition at $T \approx U/80 \approx 90$ K, a factor of 3 smaller than observed experimentally. The trajectory in the $[T, (W/U)]$ space used in the theoretical calculation does not intersect the first-order transition line, so that theory would interpret the spectral changes as due to a rapid crossover between a bad metal and a Mott insulator. On the other hand, the experimental observation of a hysteresis does suggest a real transition. In a purely electronic model, it is known that orbital degeneracy does lead to increased T_c values [28]. However, DMFT model calculations, including the whole d manifold, show a significant increase in T_c only when the first subband is much closer to the Fermi level than in the experiment. Thus, it is unlikely that orbital degeneracy could explain the increased T_c . The inadequacy of a purely electronic model is also suggested by the large width of the low-energy QP. In a purely electronic model, this can be accounted for only if the temperature is significantly larger than the critical temperature for the metal-insulator transition.

The observation of a broad peak and a true transition strongly suggests that the coupling to lattice degrees of freedom plays an important role, as in fact expected in a CDW compound. Indeed, it has been shown in a simple model that the coupling to the lattice can lead to an increase in T_c [29]. Also, it is possible that the observed hysteresis results from differences in the pinning of the CDW upon heating and cooling. Obviously, further investigation—both theoretical and experimental—is required to clarify these issues.

In summary, we presented momentum-resolved high-resolution ARPES data which illustrate the spectral consequences of a bandwidth-controlled surface Mott transition in 1T-TaSe₂. The transition from a bad metal, characterized by a largely incoherent spectrum, to a correlated insulator is qualitatively captured by a DMFT calculation for the half-filled Hubbard model. Quantitative differences between theory and experiment suggest that the model should be extended to include the coupling to lattice degrees of freedom, in order to provide a more accurate description of electronic transitions in such CDW materials.

We acknowledge R. Gaal for the resistivity measurements, correspondence with P. Aebi, E. Canadell, F. del Dongo, and the support of G. Margaritondo. This work has been supported by the Swiss NSF through the MaNEP NCCR. A. G. is grateful to F. Mila for discussions and hospitality at UNIL-Lausanne. A. G., S. F., and S. B. are most grateful to KITP-UCSB for the warm hospitality during the final stage of this work, where it was supported in part by NSF under Grant No. PHY99-

07949, and also acknowledge computing time at IDRIS-CNRS under Project No. 021393. S. B. has been supported by EC Grant No. HPMF-CT-2000-00658. The Synchrotron Radiation Center, University of Wisconsin-Madison, is supported by NSF under Award No. DMR-0084402.

- [1] N. F. Mott, *Metal-Insulator Transitions* (Taylor & Francis, London, 1990).
- [2] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
- [3] For a review, see A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. Rozenberg, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 13 (1996).
- [4] A. Fujimori *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1796 (1992).
- [5] H. D. Kim *et al.*, cond-mat-0108044 (unpublished); J. W. Allen (private communication).
- [6] S. Shin *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **64**, 1230 (1995).
- [7] K. Maiti *et al.*, *Europhys. Lett.* **55**, 246 (2001).
- [8] S. Suga and A. Sekiyama, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **124**, 81 (2002).
- [9] J. A. Wilson, F. J. DiSalvo, and S. Mahajan, *Adv. Phys.* **24**, 117 (1975).
- [10] P. Fazekas and E. Tosatti, *Philos. Mag. B* **39**, 229 (1979).
- [11] R. A. Pollak *et al.*, *Phys. Rev. B* **24**, 7435 (1981).
- [12] N. V. Smith, S. D. Kevan, and F. J. DiSalvo, *J. Phys. C* **18**, 3175 (1985).
- [13] R. Manzke *et al.*, *Europhys. Lett.* **8**, 195 (1989).
- [14] R. Claessen *et al.*, *Phys. Rev. B* **41**, 8270 (1990).
- [15] F. Zwick *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1058 (1998).
- [16] M.-W. Whangbo and E. Canadell, *J. Am. Chem. Soc.* **114**, 9587 (1992).
- [17] P. Aebi *et al.*, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **117-118**, 433 (2001).
- [18] O. Shiino *et al.*, *Appl. Phys. A* **66**, S175 (1998).
- [19] H. P. Hughes and J. A. Scarfe, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3069 (1995).
- [20] H. P. Hughes, and R. A. Pollak, *Philos. Mag.* **34**, 1025 (1976).
- [21] A recent ARPES work on 1T-TaSe₂ [K. Horiba *et al.*, *Phys. Rev. B* **66**, 073106 (2002)] reported metallic behavior at $T = 20$ K. It is our experience that defects/disorder rapidly destroy CDW transitions in layered materials. We speculate that subtle sample-related issues may have prevented the observation of the transition.
- [22] A. Georges and G. Kotliar, *Phys. Rev. B* **45**, 6479 (1992).
- [23] A. Georges and W. Krauth, *Phys. Rev. B* **48**, 7167 (1993).
- [24] M. J. Rozenberg, G. Kotliar, and X. Y. Zhang, *Phys. Rev. B* **49**, 10181 (1994).
- [25] For an early discussion of spectral weight transfers in the cerium α - γ transition, see L. Z. Liu *et al.*, *Phys. Rev. B* **45**, 8934 (1992).
- [26] D. J. Thouless, *J. Phys. (Paris), Colloq.* **37**, C4-349 (1976).
- [27] S. Florens and A. Georges (unpublished).
- [28] S. Florens, A. Georges, G. Kotliar, and O. Parcollet, cond-mat 0205263 [Phys. Rev. B (to be published)].
- [29] P. Majumdar and H. R. Krishnamurthy, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1525 (1994).

Partie II

Méthode de rotateurs esclaves et application à la transition de Mott

3. Les rotateurs : généralités et modèles d'impuretés quantiques

Dans ce chapitre, nous allons présenter une technique qui a été développée au cours de cette thèse et qui permet une approche simple et générale des problèmes de fermions corrélés : le rotateur esclave. Nous commencerons par motiver ce travail par la nécessité de disposer de méthodes efficaces pour traiter les problèmes d'impuretés quantiques (pour leur intérêt propre ou dans le contexte du champ moyen dynamique), en particulier lorsque le nombre de degrés de liberté devient important (question de la dégénérescence orbitale). La méthode sera illustrée sur le modèle d'Anderson à une impureté, en utilisant deux approches différentes. La première consiste à condenser les variables de rotateurs, et conduit à une image simple, voir simpliste, de l'effet Kondo (section 3.3). L'autre approximation envisagée dans la section 3.4 prend le parti de donner un caractère dynamique aux rotateurs, et décrit les différentes échelles d'énergie de manière plus satisfaisante.

3.1 Dégénérescence orbitale et corrélations

3.1.1 Motivation physique

Nous avons vu dans les chapitres précédents que le modèle de Hubbard fait l'économie des degrés de libertés orbitaux, et doit être considéré comme un modèle effectif lorsqu'une seule bande électronique se trouve au niveau de Fermi. Cette approximation demande à être examinée plus en détail dans le contexte des matériaux corrélés, car la présence d'électrons d ou f implique une dégénérescence importante orbitale (10 et 14 respectivement, en incluant le spin), dont la levée complète par les champs cristallins ou la distorsion du réseau n'est pas systématique.

Du point de vue théorique, la question se pose d'évaluer les effets qualitatifs apportés par cette complication supplémentaire : faut-il ou non remettre en question la pertinence des résultats obtenus (en particulier pour la transition de Mott) sur les modèles à une seule bande ? Qualitativement, on s'attend tout d'abord à trouver des effets magnétiques réduits par les fluctuations orbitales, ainsi qu'un rôle atténué des corrélations locales. On peut donc espérer retrouver une certaine simplicité lorsque le nombre d'orbitales est grand, ce qui est la philosophie des limites de grande dégénérescence (voir le paragraphe suivant pour une introduction à la méthode de bosons esclaves, ainsi que la section 4.3). Cependant, cette constatation n'est pas toujours simple à mettre en oeuvre dans l'étude théorique des modèles multi-orbitaux, comme

nous allons le voir par la suite. La raison principale de cette difficulté est la croissance rapide du nombre de degrés de liberté.

3.1.2 Problème étudié

Pour étudier l'effet de la dégénérescence orbitale dans les systèmes corrélés, nous allons nous focaliser sur des modèles multi-orbitaux de type Hubbard (équation (1.2)) ou Anderson (si l'on choisit de résoudre le problème en champ moyen dynamique). On considèrera ici par souci de simplicité un modèle d'Anderson à N saveurs (incluant le spin et les variables orbitales dans un indice commun ¹), $SU(N)$ symétrique dans l'interaction (on néglige donc le couplage de Hund), et sans champs cristallins :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0) d_\sigma + \frac{U}{2} \left[\sum_\sigma \left(d_\sigma^\dagger d_\sigma - \frac{1}{2} \right) \right]^2 + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau') \quad (3.1)$$

Ici $\sigma = 1 \dots N$ est un indice global (spin et orbital), et nous avons utilisé par ailleurs une redéfinition conveniente du potentiel chimique, $\epsilon_0 = -\mu + U/2$, qui permet de rendre manifeste la symétrie particule-trou à $\epsilon_0 = 0$. Cette action effective, suppléée par la relation d'autocohérence DMFT, présente une approche simple des systèmes de fermions corrélés avec dégénérescence orbitale ². On doit donc résoudre un modèle d'impureté avec plusieurs niveaux dégénérés (N pouvant aller jusqu'à 14), en présence d'une interaction de Coulomb U finie. Nous allons donner maintenant une revue des méthodes disponibles à l'heure actuelle pour aborder ce problème, en insistant sur les forces et faiblesses de chacune. Cela donnera une motivation concrète pour le développement de la technique de rotateur, présentée à la section 3.2.

3.1.3 Approches numériques du problème

Les techniques numériques sensibles à la taille de l'espace de Hilbert sont mises à l'épreuve dans le contexte multi-orbital (qu'il s'agisse de la méthode de diagonalisation exacte ou du groupe de renormalisation à la Wilson), puisque le nombre d'états croît exponentiellement avec le nombre d'orbitales en jeu. L'algorithme de Monte Carlo Quantique est nettement moins sensible à cette surcharge. Cependant ses limitations habituelles se manifestent plus fortement lorsque N croît : le régime de corrélations fortes est atteint pour des valeurs plus importantes de l'interaction de Coulomb, dégradant la qualité de la discrétisation de Trotter. On peut conclure que ces approches numériques, qui ont des mérites certains pour les modèles à une bande, sont à l'heure actuelle envisageables, mais très coûteuses en terme de puissance de calcul. Ceci incite à mettre en oeuvre des méthodes analytiques, dont nous allons dire quelques mots maintenant.

¹Dans le cas $N = 2$ on retrouve bien le modèle de Hubbard à une bande.

²En supposant une interaction de Coulomb purement locale, mais qui couple toutes les orbitales de l'atome.

3.1.4 Théorie de perturbation

La théorie de perturbation itérée (IPT), dont on a parlé au chapitre précédent, consiste à résoudre le modèle d'Anderson au second ordre en U et à itérer l'équation d'autocohérence DMFT (1.9). Du point de vue du modèle d'impureté, cette méthode décrit qualitativement les aspects essentiels du problème (résonance Kondo et satellites de haute énergie), mais est relativement fautive dans le régime de couplage fort (où la température Kondo est exponentiellement petite). Ce n'est pas cette dernière limitation qui est la plus gênante dans l'optique de faire des calculs DMFT en IPT, mais plutôt le manque de souplesse de cette méthode. En effet, mis à part son succès spectaculaire pour le modèle à une bande demi-rempli ³, les extensions multi-orbitales [3] et/ou hors demi-remplissage [4–6] de cette méthode sont faites de manière *ad-hoc*, et ne sont pas très précises.

3.1.5 Bosons esclaves : $U = \infty$

Cette méthode alternative trouve en fait ses origines dans les préoccupations qui nous concernent ici : la dégénérescence orbitale dans les systèmes à électrons f est un grand paramètre ($N = 14$), qui peut conduire à un développement systématique en $1/N$. Une façon de formaliser cette idée est d'introduire des degrés de liberté additionnels bosoniques (boson esclave), qui servent à comptabiliser les différents états de charge [7]. À cause du grand nombre d'états, C_N^Q , dans chaque multiplet de charge Q , on ne peut malheureusement pas trouver de représentation simple en terme de bosons esclaves, et l'hamiltonien (3.1) ne semble pas se simplifier énormément dans la limite de N grand (nous avons fait à ce sujet quelques progrès qui sont présentés à la section 4.3 et dans l'Article-4).

Un tel développement de N grand est toutefois possible si l'on se trouve dans le régime de valence faible, puisqu'on peut alors limiter drastiquement le nombre d'états à considérer sur l'impureté. Illustrons ceci dans le cas où le potentiel chimique est tel que la charge sur l'orbitale fluctue entre les états $Q = 0$ (dégénéré 1 fois) et $Q = 1$ (dégénéré N fois). Tous les états de charge $Q \geq 2$ se trouvent à des énergies d'ordre U , et peuvent donc être exclus strictement de l'espace de Hilbert, puisque l'on s'intéresse aux propriétés de basse énergie. On peut donc oublier le terme d'interaction, à condition d'imposer la contrainte $\sum_{\sigma} d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} \leq 1$. Une façon de mathématiser cette contrainte est d'introduire un boson esclave $b^{\dagger}$, afin de compter l'occupation sur l'orbitale (on met un boson si celle-ci est vide, et pas de boson si elle est occupée par un fermion). Cela conduit à représenter le fermion physique par l'opérateur composite $d_{\sigma}^{\dagger} = f_{\sigma}^{\dagger} b$, où $f_{\sigma}^{\dagger}$ est un pseudo-fermion, qui sert à maintenir le principe de Pauli. La représentation en terme d'états qu'on trouve ainsi est la suivante :

$$|\sigma\rangle_d = |\sigma\rangle_f |0\rangle_b \quad (3.2)$$

$$|0\rangle_d = |0\rangle_f |1\rangle_b \quad (3.3)$$

$$(3.4)$$

³Pour $N = 2$ et dans le cas particule-trou symétrique, la self-énergie atomique est donnée exactement à l'ordre U^2 , ce qui permet à IPT de capturer l'état isolant de Mott en DMFT (voir l'appendice B). De plus, on constate aussi à $N = 2$ une quasi-compensation dans la self-énergie à l'ordre U^4 [1,2], ce qui étend grandement le domaine de validité de la théorie de perturbation.

L'intérêt du boson esclave est que la contrainte désagréable $Q \leq 1$ peut être implémentée à l'aide d'une égalité très simple (qui permet d'éliminer par ailleurs tous les états non physiques associés à des nombres de bosons supérieurs à 1) :

$$b^\dagger b + \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} = 1 \quad (3.5)$$

L'action initiale (3.1), dans le régime de valence faible $Q \leq 1$, s'exprime donc de la façon suivante (je rappelle que $\sigma = 1 \dots N$) :

$$\begin{aligned} S = & \int_0^{\beta} d\tau \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} (\partial_{\tau} + \epsilon_0) f_{\sigma} + b^{\dagger} \partial_{\tau} b + h \left(b^{\dagger} b + \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} - 1 \right) \\ & + \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger}(\tau) b(\tau) f_{\sigma}(\tau') b^{\dagger}(\tau') \end{aligned} \quad (3.6)$$

où l'on a introduit un multiplicateur de Lagrange complexe, $h \in [0, 2i\pi/\beta]$, pour imposer la contrainte (3.5). Remarquons que h peut être pris indépendant du temps puisque les différents secteurs de l'espace de Hilbert ne sont pas connectés par l'opérateur $f_{\sigma}^{\dagger} b$. Il y a alors deux façons différentes, mais complémentaires, de procéder pour traiter l'action précédente lorsque le nombre d'orbitales N est grand.

□ Limite $N = \infty$ usuelle : boson condensé

Elle consiste à intégrer exactement les fermions dans (3.6), et à prendre le point col dans l'action bosonique résultante, qui se trouve être bien proportionnelle à N quand on généralise la contrainte correctement [7, 8]. Ceci conduit à la condensation du boson esclave $b(\tau) = \sqrt{N}r$, et donne lieu à une image simple de l'effet Kondo pour le modèle d'impureté (3.6), dont on va reparler à la section 3.3. Si l'on s'intéresse plutôt au modèle de Hubbard (à $U = \infty$), on a le choix entre résoudre le modèle d'impureté (3.6) par cette limite de N grand, en lui suppléant l'autocohérence DMFT, ou bien résoudre directement la théorie sur le réseau (sans passer par la théorie effective locale, mais en utilisant une approximation de boson condensé) [9]. Dans les deux cas, on obtient une description approchée de la phase métallique, où l'amplitude de condensation du boson est liée à l'échelle de cohérence du liquide de Fermi : $\epsilon_F^* = r^2 W$ (W est la largeur de bande nue). Dans ce formalisme, la transition de Mott est contrôlée par le dopage δ , et correspond à une décondensation du boson esclave (on a $r^2 = \delta$). Ce type d'approche peut aussi se réaliser par un développement en $1/N$ de la fonction d'onde du fondamental du modèle d'impureté [10, 11], mais la méthode fonctionnelle a l'avantage de prendre en compte les effets de température finie.

Disons quand même que cette limite de N grand usuelle décrit extrêmement mal les échelles d'énergie au dessus de la température de cohérence, ce qui peut être amélioré par le formalisme un peu plus complexe que nous allons discuter maintenant.

□ Limite multicanal : équations intégrales

On peut construire une méthode de grande dégénérescence alternative, qui consiste à étudier un modèle d'impureté possédant plusieurs canaux dans le couplage au bain. On représente

pour cela l'électron comme la combinaison d'un pseudo-fermion qui porte le spin et d'un boson esclave qui porte un indice de canal : $f_\sigma^\dagger b_\alpha$, où $\alpha = 1 \dots K$. Ce modèle, qui possède une symétrie étendue $SU(N) \times SU(K)$, est soluble dans la limite où N et K tendent vers l'infini (dans un rapport constant), et conduit à des équations intégrales [12–15], qui décrivent la formation de quasiparticules cohérentes par un “crossover” progressif, contrairement à la méthode où l'on condense le boson (qui donne une transition de phase artificielle). Il existe une formulation quasiment équivalente de cette approche sous la forme d'un développement de couplage fort (dans le terme d'hybridation), que l'on appelle NCA (“Non Crossing Approximation”) à cause de la structure des diagrammes resommés par cette approximation [16].

L'un des désavantages de l'approche multicanal est qu'elle conduit à un état non Liquide de Fermi à basse température (ce qui est quand même la physique attendue des modèles multicanaux [17]), bien qu'elle permette une description satisfaisante des échelles d'énergie intermédiaires.

3.1.6 Bosons esclaves à U fini ?

Un des inconvénients majeur de la méthode de boson esclave apparaît lorsqu'on tente de relâcher la contrainte stricte $U = \infty$. Cette éventualité est importante à la fois si l'on cherche à étudier la transition de Mott induite par les corrélations (dans ce cas l'interaction U est comparable à la largeur de bande), ou si l'on considère un remplissage générique (avec une charge moyenne sur l'impureté supérieure à un). L'idée de base pour traiter ce problème avec des bosons esclaves est d'introduire autant de bosons que nécessaire pour décrire l'ensemble des états, tout en réduisant le terme d'interaction à une forme quadratique. Illustrons cette approche pour le modèle à une bande ($N = 2$) et U fini. On a besoin, en plus du boson b qui décrit l'état trou, d'un boson lourd B pour dénoter l'état doublement occupé⁴. On trouve alors la représentation suivante, $d_\sigma^\dagger = f_\sigma^\dagger b + (-1)^\sigma f_{-\sigma} B^\dagger$, qui nécessite de poser la contrainte :

$$b^\dagger b + B^\dagger B + \sum_\sigma f_\sigma^\dagger f_\sigma = 1 \quad (3.7)$$

L'avantage de cette écriture est que l'hamiltonien d'interaction devient trivial dans les nouvelles variables : $H_{\text{at}} \equiv U d_\uparrow^\dagger d_\uparrow d_\downarrow^\dagger d_\downarrow = U B^\dagger B$.

Dans le cas multi-orbital, une limite de N grand n'est possible que si l'on considère encore un régime de valence intermédiaire, $Q \leq 2$. On aboutit ainsi à des équations intégrales [19], qui sont une généralisation pour U fini de la solution multicanal du modèle à $U = \infty$, et qui sont quasiment identiques aux équations NCA à U fini (U-NCA) [20, 21]. Cette méthode n'est cependant pas très bonne pour résoudre les équations DMFT [22], qualitativement (le scénario de la transition de Mott est incorrect) et quantitativement dans le régime peu corrélé (en fait, la limite $U = 0$ est complètement fautive dans cette approche).

Lorsqu'on cherche à prendre en compte tous les états de charge $Q = 0 \dots N$, la méthode de boson esclave demande d'introduire un grand nombre de particules auxiliaires (de l'ordre de 2^N), ce qui ne permet pas de prendre une limite de N grand, ni même d'écrire des équations

⁴On peut utiliser davantage de bosons (méthode de Kotliar-Ruckenstein [18]), ce qui est utile pour décrire, en champ moyen, les phases de symétrie brisée (magnétisme).

NCA abordables en pratique. On peut cependant tenter une approximation simple (bien que non contrôlée) qui consiste à condenser tous les bosons. Cela conduit à des équations assez touffues (à cause du grand nombre de paramètres variationnels), qui sont une généralisation multi-orbitale de la méthode de Gutzwiller (voir le paragraphe IV de l'Article-4). Toutes ces remarques nous poussent à envisager une autre approche, plus économique, pour étudier les modèles d'impureté multi-orbitaux à U fini.

3.2 Introduction au rotateur esclave

Il est facile de voir l'origine de la complexité de la méthode de boson esclave dans le cas multi-orbital. En effet, lorsqu'on considère un modèle comme (3.1), on se rend compte qu'un état de charge Q est associé à une énergie coulombienne quadratique : $E_Q = (U/2)(Q - N/2)^2$. Il n'est donc pas aisé de représenter ce spectre en utilisant des variables bosoniques, puisque l'énergie d'un système de bosons croît linéairement avec le nombre d'excitations. Il vient alors à l'idée d'utiliser une variable auxiliaire qui présente naturellement un tel spectre : un rotateur quantique $\hat{L} = -i\partial/\partial\theta$ (où θ est une variable de phase, périodique entre 0 et 2π). On peut en effet décrire à la fois les niveaux d'énergie atomiques par un hamiltonien de rotateur :

$$H_{\text{at}} = \frac{U}{2} \left[\sum_{\sigma} \left(d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} - \frac{1}{2} \right) \right]^2 = \frac{U}{2} \hat{L}^2 \quad (3.8)$$

et préserver la structure de l'espace de Hilbert en utilisant la représentation suivante :

$$d_{\sigma}^{\dagger} = f_{\sigma}^{\dagger} e^{i\theta} \quad (3.9)$$

Cette équation s'interprète en remarquant que l'opérateur $e^{i\theta}$ permet de créer un quantum de rotation supplémentaire, d'où une charge ajoutée au niveau d'impureté. Pour éviter la prolifération d'états non physiques, et de même que pour la méthode de bosons esclaves, il faut imposer une contrainte qui relie la charge totale au moment angulaire auxiliaire ⁵ :

$$\hat{L} = \sum_{\sigma} \left(d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} - \frac{1}{2} \right) \quad (3.10)$$

En introduisant un multiplicateur h pour appliquer cette contrainte, on peut écrire une action de rotateur pour le modèle d'Anderson multi-orbital :

$$\begin{aligned} S = & \int_0^{\beta} d\tau \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} (\partial_{\tau} + \epsilon_0 - h) f_{\sigma} + \frac{(\partial_{\tau}\theta + i h)^2}{2U} + \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger}(\tau) f_{\sigma}(\tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \\ & + \beta \frac{N h}{2} \end{aligned} \quad (3.11)$$

Cette expression témoigne de similarités importantes avec une action du type boson esclave comme (3.6), mais présente l'avantage intéressant d'introduire *un seul* rotateur dans la description de ce modèle multi-bande. On peut aussi dériver ce résultat grâce à une transformation de jauge, en prenant soin des conditions aux limites fermioniques (voir Article-3). L'expression précédente peut être le point de départ de plusieurs lignes d'attaque du modèle d'Anderson. Nous allons développer dans la suite deux approches complémentaires, qui font le pendant des deux techniques usuelles d'analyse des théories de bosons esclaves (boson condensé et équations intégrales). On peut aussi imaginer que l'action (3.11) puisse être abordée directement par des techniques numériques (comme le groupe de renormalisation à la Wilson), puisqu'elle fait intervenir un nombre limité de degrés de liberté.

⁵Nous avons décidé d'associer l'état de rotation $l = 0$ à l'état possédant $Q = N/2$ électrons, ce qui permet de rendre la symétrie particule-trou plus manifeste.

3.3 Rotateur condensé à basse énergie : effet Kondo

Avant de développer une approche satisfaisante de l'action (3.11), j'aimerais présenter une solution en champ moyen de ce problème, qui tire son inspiration du traitement du boson esclave par Read et Newns [8] (avec condensation du boson). L'intérêt de ce calcul est d'illustrer de façon pédestre certains aspects de l'effet Kondo qui seront importants pour la suite de ce mémoire (idée de résonance Kondo, de règle de Friedel). Pour cela, nous allons revenir à une formulation hamiltonienne du problème en introduisant un bain d'électrons de conduction pour découpler le terme d'hybridation :

$$H = \frac{U}{2} \hat{L}^2 + \sum_{k,\sigma} \epsilon_k c_{k,\sigma}^\dagger c_{k,\sigma} + \sum_{k,\sigma} V c_{k,\sigma}^\dagger f_\sigma e^{-i\theta} + \text{h.c.}$$

La contrainte sur h , sera traitée en moyenne, c'est à dire déterminée par l'équation de champ moyen $\langle \hat{L} \rangle = \langle \sum_\sigma (d_\sigma^\dagger d_\sigma - \frac{1}{2}) \rangle$. De plus, pour simplifier l'analyse, on se limitera dans ce paragraphe au cas demi-rempli ($\epsilon_0 = 0$), ce qui donne $h = 0$ par symétrie particule-trou. Notons que la fonction d'hybridation est représentée dans cette formulation en introduisant la fonction de Green (sans interaction) des électrons du bain :

$$\Delta(i\omega_n) = V^2 G_c^0(i\omega_n) = \sum_k \frac{V^2}{i\omega_n - \epsilon_k} \quad (3.13)$$

□ Champ moyen

L'hamiltonien de champ moyen que nous allons utiliser est le suivant (il revient à découpler les degrés de liberté bosoniques de la manière la plus simple) :

$$H = \frac{U}{2} \hat{L}^2 + K \cos \theta + \sum_{k,\sigma} \epsilon_k c_{k,\sigma}^\dagger c_{k,\sigma} + \sum_{k,\sigma} V_{\text{eff}} c_{k,\sigma}^\dagger f_\sigma + \text{h.c.} \quad (3.14)$$

avec deux paramètres qui sont déterminés par les équations :

$$V_{\text{eff}} = V \langle \cos \theta \rangle \quad (3.15)$$

$$K = \sum_{k,\sigma} V \langle c_{k,\sigma}^\dagger f_\sigma + f_\sigma^\dagger c_{k,\sigma} \rangle \quad (3.16)$$

V_{eff} correspond à une hybridation effective pour le problème et K est un champ qui ordonne la phase θ dans le temps, permettant ainsi de décrire un liquide de Fermi local. La partie fermionique de cet hamiltonien d'essai est quadratique, alors que la partie bosonique nécessite de résoudre une équation de Schrödinger :

$$H_{\text{rotor}} \Psi(\theta) \equiv \left[-\frac{U}{2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + K \cos \theta \right] \Psi(\theta) = E \Psi(\theta) \quad (3.17)$$

qui doit être diagonalisée afin de calculer la valeur moyenne $\langle \cos \theta \rangle$.

□ Interprétation

Lorsque le paramètre K est non nul, le rotateur se polarise, et acquiert une valeur moyenne $\langle \cos \theta \rangle$. On détermine alors la fonction de Green fermionique en supposant qu'elle se factorise :

$$G_d(\tau) \equiv -\langle d_\sigma(\tau) d_\sigma^\dagger(0) \rangle = -\langle f_\sigma(\tau) f_\sigma^\dagger(0) e^{i\theta(0)-i\theta(\tau)} \rangle \approx -\langle f_\sigma(\tau) f_\sigma^\dagger(0) \rangle \langle e^{i\theta(0)-i\theta(\tau)} \rangle \quad (3.18)$$

Sous cette approximation, on trouve alors :

$$G_d(i\omega_n) = \frac{\langle \cos \theta \rangle^2}{i\omega_n - \langle \cos \theta \rangle^2 \Delta(i\omega_n)} + G_d^{\text{incoherent}}(i\omega_n) \quad (3.19)$$

Le terme de droite provient de la partie connexe de la fonction de Green des rotateurs (*i.e.* quand on y a retranché $\langle \cos \theta \rangle^2$), et décrit la partie de haute énergie du spectre d'excitations. La physique de basse énergie, contrôlée par le premier terme, est dominée par une résonance étroite, la résonance Kondo, comme nous allons le voir ci-dessous. Ajoutons aussi qu'un calcul de la susceptibilité de spin des fermions $d_\sigma^\dagger$ montre une saturation à basse température, signalant l'écrantage complet du moment local sur l'impureté par le bain d'électrons de conduction.

□ Calcul de la température Kondo

Supposons que l'on se trouve profondément dans le régime Kondo, *i.e.* $U \gg \Gamma$, où la largeur du niveau résonant est définie par $\Gamma \equiv |\text{Im} \Delta(i0)| = V^2 |\text{Im} G_c^0(i0)|$. Dans ce cas, on s'attend à ce que la température Kondo soit exponentiellement petite, de même que le paramètre K . On peut donc résoudre l'équation de Schrödinger (3.17) perturbativement en K . Pour cela, on note $\Psi_m(\theta) = \langle \theta | \Psi_m \rangle = e^{im\theta}$ la fonction d'onde non-perturbée, associée à l'énergie $E_m = m^2 U/2$. Le fondamental est obtenu pour $m = 0$, et présente la correction suivante au premier ordre en K :

$$|\Psi_0^{(1)}\rangle = |\Psi_0\rangle + \sum_{m \neq 0} \frac{\langle \Psi_m | K \cos \theta | \Psi_0 \rangle}{E_0 - E_m} |\Psi_m\rangle \quad (3.20)$$

Nous pouvons donc calculer l'élément de matrice apparaissant dans l'équation de champ moyen (3.15) :

$$\begin{aligned} \langle \cos \theta \rangle &= \langle \Psi_0^{(1)} | \cos \theta | \Psi_0^{(1)} \rangle \\ &= -2K \sum_{m \neq 0} \frac{|\langle \Psi_0 | \cos \theta | \Psi_m \rangle|^2}{E_m} = -\frac{2K}{U} \end{aligned} \quad (3.21)$$

Le propagateur fermionique non-diagonal apparaissant dans (3.16) est calculé facilement, puisque l'hamiltonien effectif est quadratique, et l'on obtient :

$$K = 2NVV_{\text{eff}} \frac{1}{\beta} \sum_n G_c^0(i\omega_n) G_f(i\omega_n) \quad (3.22)$$

$$\text{avec} \quad G_f(i\omega_n) = \frac{1}{i\omega_n - V_{\text{eff}}^2 G_c^0(i\omega_n)} \quad (3.23)$$

ce qui est réexprimé grâce à une représentation spectrale (à $T = 0$) :

$$K = -2NVV_{\text{eff}} \int_{-\infty}^0 \frac{d\omega}{\pi} \mathcal{I}m [G_c^0(\omega + i0^+) G_f(\omega + i0^+)] \quad (3.24)$$

Pour terminer, nous supposons que les ε_k constituent une bande plate de grande largeur 2Λ , et nous nous placerons dans le régime d'universalité, $\Lambda \gg U \gg \Gamma \gg \omega$, de façon que la fonction de Green du bain se réduise à $G_c^0(\omega + i0^+) = -i\pi/(2\Lambda)$. Ceci permet de simplifier l'équation précédente (à l'ordre dominant en $1/\Lambda$) :

$$K = \frac{NVV_{\text{eff}}}{\Lambda} \int_{-\Lambda}^0 d\omega \frac{\omega}{\omega^2 + (V_{\text{eff}}^2 \pi / (2\Lambda))^2} = -\frac{2NVV_{\text{eff}}}{\Lambda} \log \left(\sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{\Lambda}{V_{\text{eff}}} \right) \quad (3.25)$$

En utilisant (3.15) et (3.21) on trouve aussi $K = -UV_{\text{eff}}/(2V)$. Puisque la largeur de bande nue est $\Gamma = \pi V^2/(2\Lambda)$, on obtient la largeur de la résonance Kondo (renormalisée par les interactions) :

$$\Gamma_{\text{eff}} \equiv \frac{\pi V_{\text{eff}}^2}{2\Lambda} = \Lambda \exp \left(-\frac{\pi U}{4N\Gamma} \right) \quad (3.26)$$

Avec $N = 2$ dans l'expression précédente, on retrouve l'échelle Kondo exacte obtenue par un calcul de groupe de renormalisation. Nous obtenons par ailleurs une expression simple pour la densité d'états associée à la partie cohérente de la fonction de Green du niveau d (3.19) :

$$\rho_d^{\text{cohérent}}(\omega) = \frac{\Gamma/\pi}{(\omega/Z)^2 + \Gamma^2} \quad (3.27)$$

où $Z \equiv \langle \cos \theta \rangle^2 \propto \exp \left(-\frac{\pi U}{4N\Gamma} \right)$ est le poids de quasi-particule. Cette fonction spectrale illustre à la fois l'apparition d'une résonance Kondo étroite, de largeur $Z\Gamma$, et la règle de Friedel. Pour le modèle d'Anderson demi-rempli, ce théorème énonce que la densité d'états au niveau de Fermi (et à température nulle) est inchangée lorsque les interactions sont branchées [1, 23] :

$$\rho_d(\omega = T = 0) = \rho_d(\omega = T = U = 0) = \frac{1}{\pi\Gamma} \quad (3.28)$$

Il faut souligner certaines imperfections qui découlent de la forme trop simplifiée de l'hamiltonien d'essai (3.14). Comme pour la théorie de boson esclave, on trouve une transition de phase artificielle à une température de l'ordre de la température Kondo. De même, le spectre de haute énergie n'est pas satisfaisant dans cette approche (la largeur des satellites de haute énergie est d'ordre $Z\Gamma$ au lieu de Γ). Ces problèmes peuvent heureusement être réglés grâce à une limite de type multi-canal, qui va être envisagée à la section suivante. La méthode de champ moyen que l'on vient de décrire sera toutefois employée dans l'étude de la transition de Mott multi-orbitale à la section 4.1.

3.4 Rotateur dynamique : équations intégrales à haute énergie

3.4.1 Limite multi-canal et équations intégrales

Nous allons illustrer ici une méthode qui s'inspire des limites multi-canal pour les théories de bosons esclaves [12]. L'action (3.11) présente un couplage entre les pseudo-fermions et une variable angulaire $O(2)$, que l'on note $X(\tau) \equiv e^{i\theta(\tau)}$. L'idée de base est de généraliser cette variable de phase à un champ complexe de norme unité à M composantes, c'est à dire un rotateur quantique $O(2M)$, $X_\alpha(\tau)$ ($\alpha = 1 \dots M$). On aboutit ainsi à une action (pour laquelle on peut écrire un hamiltonien) mettant en jeu ces degrés de liberté étendus :

$$\begin{aligned}
 S = & \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma f_\sigma^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0 - h) f_\sigma + \sum_\alpha \frac{|\partial_\tau X_\alpha|^2}{2U} + \frac{h}{2U} (X_\alpha^* \partial_\tau X_\alpha - h.c.) + \lambda (|X_\alpha|^2 - 1) \\
 & + \beta \left[\frac{N}{2} h - M \frac{h^2}{2U} \right] + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{1}{M} \Delta(\tau - \tau') \sum_{\sigma, \alpha} f_\sigma^\dagger(\tau) f_\sigma(\tau') X_\alpha(\tau) X_\alpha^*(\tau') \quad (3.29)
 \end{aligned}$$

Pour prendre la limite de grande dégénérescence, on fait tendre à la fois N et M vers l'infini dans un rapport constant, $\mathcal{N} \equiv N/M$, et on découple le dernier terme de (3.29) avec des champs bilocaux en temps. Ceci aboutit à des équations de cols, que l'on peut réécrire sous la forme compacte suivante, en faisant intervenir les fonctions de Green des pseudo-particules du problème :

$$G_f(\tau) \equiv -\langle T_\tau f_\sigma(\tau) f_\sigma^\dagger(0) \rangle \quad (3.30)$$

$$G_X(\tau) \equiv +\langle T_\tau X_\alpha(\tau) X_\alpha^*(0) \rangle \quad (3.31)$$

$$G_f^{-1}(i\omega_n) = i\omega_n - \epsilon_0 + h - \Sigma_f(i\omega_n) \quad (3.32)$$

$$G_X^{-1}(i\nu_n) = \frac{\nu_n^2}{U} + \lambda - \frac{2ih\nu_n}{U} - \Sigma_X(i\nu_n) \quad (3.33)$$

où ω_n (respectivement ν_n) est une fréquence de Matsubara fermionique (respectivement bosonique). Les self-énergies de pseudo-particules sont données par les expressions suivantes, réminiscentes de la solution multicanal du modèle d'Anderson à $U = \infty$:

$$\Sigma_X(\tau) = -\mathcal{N} \Delta(-\tau) G_f(\tau) \quad (3.34)$$

$$\Sigma_f(\tau) = \Delta(\tau) G_X(\tau) \quad (3.35)$$

Il faut par ailleurs fixer des équations de col qui déterminent la valeur des multiplicateurs de Lagrange λ et h . La première de ces équations est la contrainte usuelle qui apparait dans le traitement en grand M du modèle sigma ; la seconde traduit simplement l'équation (3.10) de façon moyenne :

$$G_X(\tau=0) = 1 \quad (3.36)$$

$$G_f(\tau=0^-) = \frac{1}{2} - \frac{2h}{\mathcal{N}U} + \frac{1}{\mathcal{N}U} [\partial_\tau G_X(\tau=0^-) + \partial_\tau G_X(\tau=0^+)] \quad (3.37)$$

La méthode de résolution de ce système d'équations intégrales est présentée à l'appendice C.

□ Résultats numériques

On a tracé la densité d'état des fermions physiques à la figure 3.1 (la fonction de Green physique est évaluée en factorisant les fonctions de Green de pseudo-particules). Ce spectre montre l'émergence graduelle de la résonance Kondo, et la présence de satellites de haute énergie, décrivant les excitations de charge locales qui payent l'interaction de Coulomb. Pour ce calcul j'ai pris une bande semi-circulaire de demi-largeur $\Lambda = 6$, associée à un niveau résonant de largeur $\Gamma = 0.16$; l'interaction de Coulomb est $U = 2$, et on s'est placé au demi-remplissage ($\epsilon_0 = h = 0$).

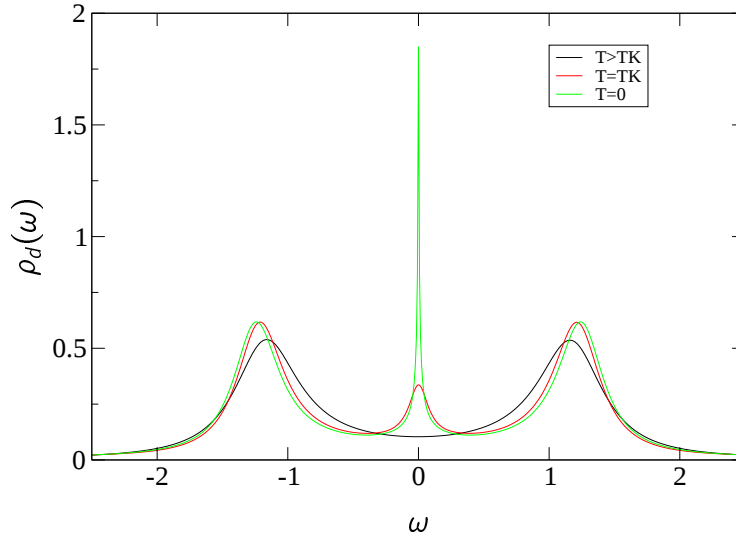


Fig. 3.1 – Densité spectrale physique à $U = 2$ pour différentes valeurs de la température inverse $\beta = 2000, 20, 4$ (de haut en bas) ; la forme du bain d'électrons de conduction est décrite dans le texte.

Ce que l'analyse de ces résultats numériques montre est que la règle de Friedel est légèrement violée par cette approche, comme on peut le vérifier par un calcul analytique, en effectuant un développement basse fréquence du système d'équations (3.32-3.35). On trouve ainsi (voir Article-3) que la densité d'états à température zéro et à fréquence nulle est essentiellement indépendante de l'interaction U (effet de pincement) :

$$\rho_d(\omega = T = 0) = \frac{1}{\pi\Gamma} \frac{\pi/2}{\mathcal{N} + 1} \tan\left(\frac{\pi}{2} \frac{\mathcal{N}}{\mathcal{N} + 1}\right) \quad (3.38)$$

mais ce résultat dévie de quelques pourcents seulement de la valeur exacte (3.28). Nous verrons cependant par la suite que l'existence de ce pincement est cruciale lorsqu'on applique cette méthode à l'étude de la transition de Mott.

Pour obtenir un tel caractère "métallique" (dans le sens que $\rho_d(\omega = 0) \neq 0$, c'est à dire $G_d(\tau) \sim 1/\tau$ à long temps), les variables de phases développent un quasi-ordre à long temps, c'est à dire une décroissance :

$$G_X(\tau) \sim \frac{1}{|\tau|^{1-\alpha_X}} \quad (3.39)$$

3.4. ROTATEUR DYNAMIQUE : ÉQUATIONS INTÉGRALES À HAUTE ÉNERGIE

où $0 < \alpha_X < 1$ (et idem pour $G_f(\tau)$). Ce comportement non trivial ⁶ des fonctions de Green de pseudo-particule à basse fréquence est mis en évidence à la figure 3.2 (on peut aussi calculer les exposants α_X et α_f exactement, voir l'Article-3). Il s'agit d'une manière astucieuse d'éviter

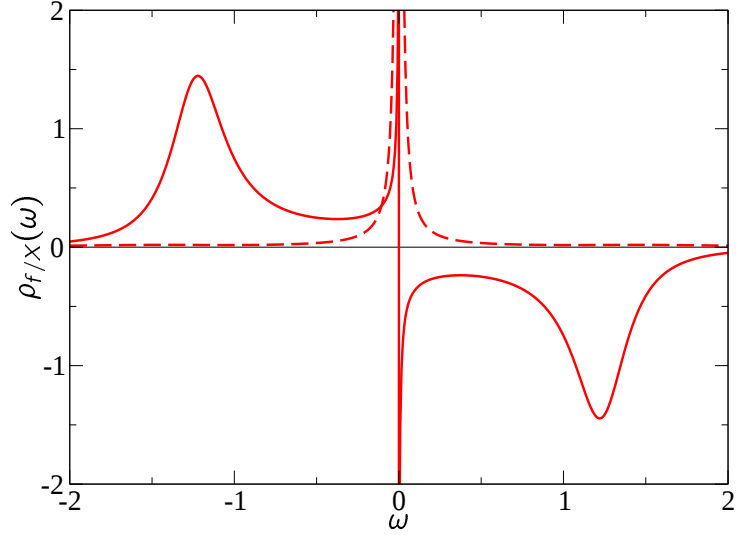


Fig. 3.2 – Densités d'état des pseudo-particules à basse température (partie imaginaire) : $\rho_f(\omega)$ est en pointillés et $\rho_X(\omega)$ en trait plein, illustrant le comportement singulier de basse fréquence.

de condenser les variables bosoniques, qui est aussi très physique. En effet, ces singularités des pseudo-particules sont associées à un problème de rayons X, traduisant le fait que leurs fonctions de Green ne sont pas invariantes de jauge. En effet, pour le modèle d'Anderson à $U = \infty$, on trouve un tel comportement dans la solution numériquement exacte (NRG) du modèle utilisant des degrés de libertés de pseudo-particules [24].

□ Comparaison au NRG

Les calculs se comparent correctement avec les résultats obtenus par groupe de renormalisation numérique [25, 26] (NRG), comme le montre la figure 3.3 (pour ce calcul, le choix du bain est différent que précédemment). Il faut noter que le caractère exponentiel de l'échelle Kondo est reproduit, et que les bandes de Hubbard présentent une largeur d'ordre Γ , comme attendu (la faible résolution du NRG aux énergies d'ordre U ne permet de capturer cet effet, et produit des pics trop étalés).

Un autre aspect particulier de la solution du système d'équations intégrales est une violation du liquide de Fermi à basse température. Celle-ci se manifeste par l'apparition de singularités en lois de puissance dans la self-énergie physique, c'est à dire $\rho_d(\omega) - \rho_d(0) \propto \omega^\kappa$, où $\kappa < 2$. On peut aussi considérer l'écart à la règle de Friedel exacte comme une autre manifestation

⁶Il ne faut cependant pas confondre ces lois de puissance avec les exposants non Liquide de Fermi apparaissant dans le propagateur *physique*, qui sont des effets sous-dominant (temps de vie anormal).

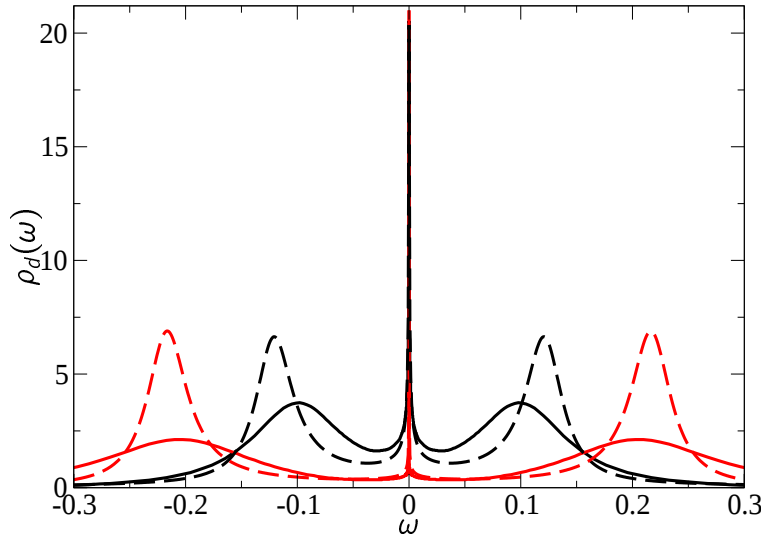


Fig. 3.3 – Comparaison entre les résultats de NRG [26] (traits pleins) et la méthode de rotateur (traits interrompus) pour deux valeurs de l'interaction coulombienne : $U = 0.2$ et $U = 0.4$. Pour ce calcul, une bande plate de grande largeur Λ avec $\Gamma = 0.015$ a été choisie. Les résultats NRG ne sont pas fiables à haute énergie, comme le montre l'étalement des bandes de Hubbard.

de cette violation, ainsi que la divergence de la susceptibilité de spin locale, qui traduit en fait l'aspect sur-écranté associé à l'effet Kondo multicanal.

3.4.2 Origine de l'effet Kondo

On peut finalement s'interroger sur le mécanisme d'apparition de la résonance Kondo dans ce formalisme, qui n'est pas aussi explicite que dans le cas de la section 3.3. Nous allons d'abord illustrer la nature du comportement asymptotique des variables de phase par un petit raisonnement par l'absurde.

□ Caractère métallique

Commençons par supposer que le rotateur quantique est désordonné, présentant une fonction de Green $G_X(\tau) \sim e^{-U\tau}$ qui décroît exponentiellement⁷. Par (3.35) cela élimine la self-énergie dans le propagateur du fermion f (3.32), conduisant à $G_f(\tau) \sim 1$ à long temps. On en déduit le comportement de la self-énergie bosonique, $\Sigma_X(\tau) \sim \mathcal{N}\Gamma/|\tau|$, car le bain d'électrons est régulier, ce qui donne $\Delta(\tau) \sim \Gamma/\tau$. Cette interaction retardée à longue portée (dans le temps) est suffisante pour ordonner le rotateur, invalidant l'hypothèse initiale.

D'un autre côté, si l'on admet que la phase est ordonnée dans le temps (comme c'est le cas dans l'approche où on condense le boson), on obtient $\Sigma_f(\tau) \sim 1/\tau$. Ceci implique que $G_f(\tau)$ présente une décroissance similaire, et donc que le couplage au rotateur décroît rapidement,

⁷Dans toute cette analyse on ne se préoccupera pas des facteurs numériques d'ordre unité (2, π ...).

3.5. CONCLUSION

en $1/\tau^2$. Dans ce cas le rotateur se désordonne, de façon incompatible avec l'affirmation précédente.

La conclusion de cette analyse est que la solution de nos équations intégrales ne peut décrire ni une phase ordonnée ni une phase désordonnée dans les variables de rotateurs, et présente un point fixe non trivial, associé à l'effet Kondo. On remarque que l'argument précédent permet de comprendre l'apparition de lois de puissance dans les fonctions de Green de pseudo-particules que l'on a constaté précédemment.

□ Evaluation de T_K

Nous pouvons estimer approximativement l'échelle Kondo grâce à cet argument, puisqu'à haute température les variables de rotateur sont essentiellement désordonnées, mais vont ressentir une instabilité vers le point fixe Kondo lorsque la température diminue. Dans ce régime, la fonction de Green bosonique est de la forme :

$$G_X(i\nu) \sim \frac{1}{\nu^2/U + U + \Sigma_X(i\nu)} \quad (3.40)$$

avec $\Sigma_X(\tau) \sim \mathcal{N}\Gamma/|\tau|$, c'est à dire $\Sigma_X(i\nu) \sim -\mathcal{N}\Gamma \log |\nu|$. L'échelle Kondo $\nu \sim T_K$ est atteinte lorsque cette self-énergie est comparable au "gap" de haute température [27], d'ordre U , apparaissant dans l'équation (3.40) : $\Sigma(\nu \sim T_K) \sim -\mathcal{N}\Gamma \log(T_K) \sim U$. Ceci conduit à l'estimation $T_K \sim T_0 \exp[-cU/(\mathcal{N}\Gamma)]$, en accord avec le résultat de la section 3.3 (aux facteurs numériques T_0 et c près). On a donc donné une explication intuitive pour l'apparence d'une échelle Kondo dans la solution des équations intégrales.

3.5 Conclusion

Nous avons étudié rapidement l'effet Kondo dans le modèle d'Anderson multiorbital à U fini grâce à la méthode de rotateur. Les deux schémas d'approximation proposés (rotateur condensé et équations intégrales) capturent correctement le caractère exponentiel de la température Kondo, bien que la première méthode envisagée soit assez simpliste. Cependant, condenser le rotateur permet de travailler en représentation de phase (pour écrire les équations intégrales, on a du prendre une limite de grand nombre de composantes), qui peut avoir certains mérites comme on va le voir dans le chapitre qui suit.

Bibliographie du chapitre 3

- [1] **K. Yamada**, *Prog. Theo. Phys.* **53**, 970 (1975).
- [2] **J. Freericks et M. Jarrell**, *Phys. Rev. B* **50**, 6939 (1994).
- [3] **G. Kotliar et H. Kajueter**, *Phys. Rev. B* **54**, 14221 (1996).
- [4] **H. Kajueter et G. Kotliar**, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 131 (1995).
- [5] **M. Potthoff, T. Wegner et W. Nolting**, *Phys. Rev. B* **55**, 16132 (1997).
- [6] **J. Ferrer, A. Martín-Rodero et F. Flores**, *Phys. Rev. B* **36**, 6149 (1987).
- [7] **P. Coleman**, *Phys. Rev. B* **29**, 3035 (1984).
- [8] **D. M. Newns et N. Read**, *Adv. Phys.* **36**, 799 (1987).
- [9] **G. Kotliar**, *The large N expansion in the strong correlation problem*. Elsevier, (1991). Cours de l'école des Houches.
- [10] **C. M. Varma et Y. Yafet**, *Phys. Rev. B* **13**, 2950 (1976).
- [11] **O. Gunnarsson et K. Schönhammer**, *Phys. Rev. B* **31**, 4815 (1985).
- [12] **O. Parcollet**, *Thèse de l'Université Paris 6*. (1998).
- [13] **O. Parcollet et A. Georges**, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4665 (1997).
- [14] **O. Parcollet, A. Georges, G. Kotliar et A. Sengupta**, *Phys. Rev. B* **58**, 3794 (1998).
- [15] **D. L. Cox et A. E. Ruckenstein**, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1613 (1993).
- [16] **N. E. Bickers**, *Rev. Mod. Phys.* **59**, 845 (1987).
- [17] **P. Nozières et A. Blandin**, *J. Physique* **41**, 193 (1980).
- [18] **G. Kotliar et A. E. Ruckenstein**, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1362 (1986).
- [19] **J. Holm, R. Kree et K. Schönhammer**, *Phys. Rev. B* **48**, 5077 (1993).
- [20] **T. Pruschke et N. Grewe**, *Z. Phys. B* **74**, 439 (1989).
- [21] **K. Haule, S. Kirchner, J. Kroha et P. Woelffle**, *Phys. Rev. B* **64**, 155111 (2001).
- [22] **P. Lombardo et G. Albinet**, *Phys. Rev. B* **65**, 115110 (2002).
- [23] **A. Hewson**, *The Kondo problem to heavy fermions*. Cambridge, (1996).
- [24] **T. A. Costi, P. Schmitteckert, J. Kroha et P. Woelffle**, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1275 (1994).
- [25] **H. R. Krishna-murthy, J. W. Wilkins et K. G. Wilson**, *Phys. Rev. B* **21**, 1003 (1980).
- [26] **R. Bulla, A. C. Hewson et T. Pruschke**, *J. Phys. : Condens. Matter* **10**, 8365 (1998).
- [27] **E. Mueller-Hartmann**, *Z. Phys. B* **57**, 281 (1984).

4. Transition de Mott : approche de rotateurs esclaves

Ce chapitre est l'occasion d'appliquer la méthode de rotateur développée dans le chapitre précédent à la solution des équations de champ moyen dynamique. On utilisera successivement les deux approximations envisagées auparavant, condensation du rotateur (section 4.1) et équations intégrales ¹ (section 4.2), et l'on retrouvera ainsi divers résultats concernant la transition de Mott pour le modèle de Hubbard multiorbital. En particulier, le diagramme de phase obtenu sera comparé avec succès à une analyse directe du problème par la méthode projective, dans la limite de N grand ², ainsi qu'à des simulations (Monte Carlo Quantique).

4.1 Une image simple de la transition de Mott : rotateurs condensés

4.1.1 Équations de champ moyen

Dans la section 3.3 nous avons effectué un champ moyen du modèle d'Anderson à U fini dans la formulation de rotateur, qui est très analogue à l'approche de boson esclave condensé (à la Read-Newns [1]) du même problème à $U = \infty$. Puisque nous nous intéressons maintenant à la transition de Mott dans le modèle de Hubbard, il est immédiat d'appliquer cette solution approchée pour résoudre les équations de champ moyen dynamique, c'est à dire imposer l'autocohérence DMFT aux équations de col (3.15-3.16). En fait, puisque ce champ moyen du modèle d'Anderson est purement local (la self-énergie est simplement $\Sigma_d(i\omega) = i\omega(1 - 1/Z)$), il est équivalent de résoudre directement le modèle de Hubbard en utilisant la même approximation de rotateur condensé, ce qui permet une analyse un peu plus simple du problème ³. On écrit donc l'hamiltonien de Hubbard sur le réseau, formulé avec des variables de phase ⁴ grâce

¹Ce travail a été réalisé en collaboration avec A. Georges (Article-3).

²Ce travail a été réalisé en collaboration avec A. Georges, G. Kotliar et O. Parcollet (Article-4).

³Il apparaît en fait des différences mineures dans le traitement des hautes énergies entre ces deux approches.

⁴On observe une autre différence bien agréable par rapport aux bosons esclaves : l'opérateur local $d_{i\sigma}^\dagger d_{i\sigma} = f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma} e^{i(\theta_i - \theta_i)} = f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma}$ ne pose pas d'ambiguïté, puisque les phases s'éliminent naturellement.

à la représentation $d_{i\sigma}^\dagger = f_{i\sigma}^\dagger \exp(i\theta_i)$:

$$\begin{aligned} H &= \sum_{i\sigma} \epsilon_0 d_{i\sigma}^\dagger d_{i\sigma} + \frac{U}{2} \sum_i \left[\sum_\sigma d_{i\sigma}^\dagger d_{i\sigma} - \frac{N}{2} \right]^2 - \sum_{ij\sigma} t_{ij} d_{i\sigma}^\dagger d_{j\sigma} \\ &= \sum_{i\sigma} \epsilon_0 f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma} + \frac{U}{2} \sum_i \hat{L}_i^2 - \sum_{ij\sigma} t_{ij} f_{i\sigma}^\dagger f_{j\sigma} e^{i(\theta_i - \theta_j)} \end{aligned} \quad (4.1)$$

Il faut de plus imposer la contrainte $\hat{L}_i = \sum_\sigma f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma} - N/2$ sur chaque site, ce qui est trop difficile en pratique. On traite donc cette contrainte en champ moyen, de même que le couplage fermion-rotateur qui apparait dans l'hamiltonien, de manière à obtenir un hamiltonien effectif purement local pour les variables de phase :

$$H = \sum_{k\sigma} (Z\epsilon_k + \epsilon_0 - h) f_{k\sigma}^\dagger f_{k\sigma} + \sum_i \left[\frac{U}{2} \hat{L}_i^2 + h\hat{L}_i + K \cos \theta \right] \quad (4.2)$$

Les équations de point col sont données par :

$$Z = \langle \cos \theta \rangle^2 \quad (4.3)$$

$$K = 2N \langle \cos \theta \rangle \sum_k \epsilon_k \langle f_{k\sigma}^\dagger f_{k\sigma} \rangle = 2N\sqrt{Z} \int d\epsilon D(\epsilon) \epsilon n_F(Z\epsilon + \epsilon_0 - h) \quad (4.4)$$

$$\langle \hat{L} \rangle \equiv \left\langle -i \frac{\partial}{\partial \theta} \right\rangle = N \langle f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma} \rangle - \frac{N}{2} = N \int d\epsilon D(\epsilon) n_F(Z\epsilon + \epsilon_0 - h) - \frac{N}{2} \quad (4.5)$$

Nous avons noté ici $D(\epsilon)$ la densité d'états libre du réseau (de demi-largeur $D = 1$). Z s'interprète naturellement comme le résidu de quasi-particules, et h représente la renormalisation du potentiel chimique.

4.1.2 La transition de Mott

On peut résoudre ces équations numériquement (ce sera fait dans la suite), mais il est possible de faire une étude analytique près de la transition de Mott. En effet, puisqu'à la transition les quasiparticules disparaissent, Z tend vers zéro, et le paramètre K s'annule aussi, d'après l'équation (4.4). On peut donc résoudre l'équation de Schrödinger en théorie de perturbation, comme à la section 3.3.

On note $\Psi_m(\theta) = e^{im\theta}$ les fonctions d'onde propres associées aux énergies non perturbées $E_m = m^2 U/2 + hm$, et l'on obtient le fondamental (à $K = 0$) en minimisant E_m , c'est à dire l'état $m_0 = -I[h/U + 1/2]$ (où $I[\dots]$ est la partie entière). On trouve ainsi au premier ordre en K :

$$\begin{aligned} \sqrt{Z} &= \langle \cos \theta \rangle = 2K \sum_{m \neq m_0} \frac{|\langle \Psi_m | \cos \theta | \Psi_{m_0} \rangle|^2}{E_{m_0} - E_m} \\ &= -\frac{2UK}{U^2 - 4(Um_0 + h)^2} + \mathcal{O}(K^2) \end{aligned} \quad (4.6)$$

4.1. UNE IMAGE SIMPLE DE LA TRANSITION DE MOTT : ROTATEURS CONDENSÉS

ainsi que $\langle \hat{L} \rangle = m_0 + \mathcal{O}(K)$. À cause de l'équation (4.5), on obtient la densité de fermion n_f (par couleur) à la transition :

$$n_f = \frac{1}{2} + \frac{m_0}{N} \quad (4.7)$$

Le remplissage est donc commensurable à la disparition du métal : la charge totale vaut en effet $Q = Nn_f = N/2 + m_0 \in \{1, \dots, N-1\}$. On peut aussi trouver l'expression de l'interaction critique à laquelle le métal est détruit. Pour cela on exprime l'équation de col (4.4) à température nulle :

$$K = 2N\sqrt{Z} \int_{-D}^{\mu_0} d\epsilon D(\epsilon)\epsilon \equiv 2N\sqrt{Z} \bar{\epsilon}(\mu_0) \quad (4.8)$$

où le potentiel chimique sans interaction $\mu_0 \equiv (h - \epsilon_0)/Z$ est donné par :

$$\int_{-D}^{\mu_0} d\epsilon D(\epsilon) = n_f = \frac{1}{2} + \frac{m_0}{N} \quad (4.9)$$

Puisque Z s'annule à la transition mais que μ_0 reste fini, on déduit que $h = \epsilon_0$. On trouve donc en combinant (4.6) et (4.8) une équation qui détermine finalement l'interaction critique en fonction du potentiel chimique nu ϵ_0 :

$$U^2 - 4(Um_0 + \epsilon_0)^2 = 4NU \bar{\epsilon}(\mu_0) \quad (4.10)$$

où m_0 est donné par $m_0 = -I[\epsilon_0/U + 1/2]$ (car $h \simeq \epsilon_0$), et μ_0 est relié à m_0 par l'équation (4.9). Ceci permet de décrire toutes les transitions métal-isolant commensurables du modèle en fonction du potentiel chimique. On peut aussi passer du potentiel chimique ϵ_0 au facteur de remplissage n_f , ce qui donne :

$$U_c(n_f) = 4N \bar{\epsilon}(\mu_0(n_f)) \quad (4.11)$$

avec $n_f = 1/N, \dots, (N-1)/N$.

□ Interprétation

Il est judicieux de faire à ce point une comparaison entre le calcul que nous venons d'effectuer et une approche similaire (dans la physique qu'elle décrit) : la méthode de Gutzwiller. Cette méthode variationnelle a été utilisée dès les années 70 pour l'étude de la transition de Mott, et a permis à Brinkman et Rice d'établir une première image physique de cette transition [2]. Cette technique possède un analogue exact en terme de bosons esclaves, développé par Kotliar et Ruckenstein [3]. Dans le cas qui nous concerne, la méthode de Gutzwiller peut être étendue au cas multiorbital [4, 5], mais est très lourde à mettre en oeuvre par rapport à la méthode de rotateur, à cause du grand nombre de paramètres variationnels à introduire ⁵. Nous avons par ailleurs généralisé le calcul de Kotliar et Ruckenstein au cas multi-orbital (voir Section IV de l'Article-4), et confirmé les résultats de la méthode de Gutzwiller seulement pour le calcul de l'interaction critique (la solution complète des équations étant vraiment pénible). On trouve ainsi :

$$U_c^{Gutzwiller} = 4(N+2) \bar{\epsilon}(\mu_0(n_f)) \quad (4.12)$$

⁵Ceci peut tourner aussi à l'avantage de la méthode de Gutzwiller, qui possède certainement plus de liberté.

On obtient ainsi le même résultat qu'avec la méthode de rotateur, mis à part une correction sous-dominante, qu'il faudrait peut-être prendre en compte en pratique dans nos calculs lorsque N n'est pas très grand.

Le scénario de Brinkman-Rice pour la transition de Mott nécessite de se placer hors du point critique, ce qui demande une résolution numérique des équations de champ moyen (4.3-4.5), ou bien de pousser le développement perturbatif à l'ordre K^2 . Cette analyse sera menée à la section 4.1.3.

□ Diagramme de phase ($T = 0$)

On peut illustrer graphiquement les résultats précédents en donnant le diagramme de phase de température nulle dans le cas à deux orbitales ($N = 4$ en comptant le spin), figure 4.1. Dans ce calcul, ainsi que dans la suite (pour simplifier les expressions), on a choisi une densité d'état libre plate (la forme de la densité d'état ne joue aucun rôle dans ce type d'approche). On obtient ainsi le U critique en fonction du remplissage :

$$U_c(n_f) = 4ND n_f(1 - n_f) \quad (4.13)$$

U_c est le plus grand au demi-remplissage ($n_f = 1/2$), car les fluctuations orbitales y sont plus importantes (cette constatation n'est pas générique, et peut dépendre de la forme de la densité d'états).

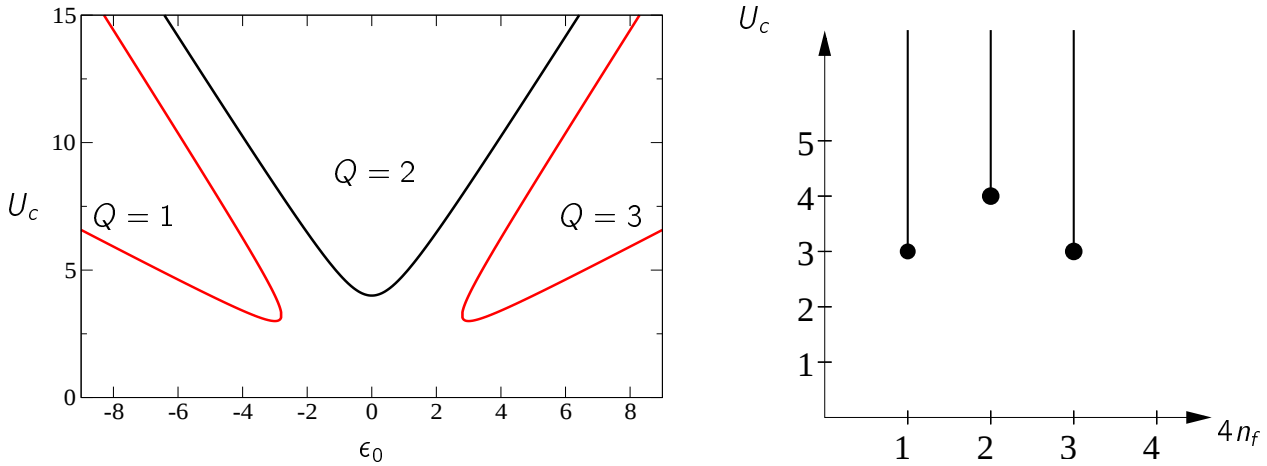


Fig. 4.1 – Diagramme de phase (ϵ_0, U) et (n_f, U) pour $N = 4$ à $T = 0$. Les transitions de Mott se produisent pour des valeurs finies de U aux remplissages $Q = 4n_f = 1, 2, 3$ (on a un isolant de bande pour $Q = 0, N$). Les lobes isolants sont complètement comprimés dans le diagramme (n_f, U) de droite.

4.1.3 Étude numérique des équations de champ moyen

Pour conclure cette section, nous présentons le résultat de la solution numérique des équations de col (4.3-4.5). Pour cela, il suffit de diagonaliser l'équation de Schrödinger qui intervient dans l'hamiltonien de champ moyen (4.2) : $H_{\text{rotor}}\Psi(\theta) = E\Psi(\theta)$. Techniquement, il suffit de passer aux composantes de Fourier de la fonction d'onde (qui est 2π -périodique), et de diagonaliser la matrice ainsi obtenue (en taille finie). On retrouve bien une transition du second ordre aux remplissages commensurables pour les interactions critiques déterminées précédemment. Étudions maintenant de plus près cette transition.

□ Scénario de Brinkman-Rice

Une illustration amusante de la transition de Mott est donnée par l'évolution de la fonction d'onde du fondamental $\Psi(\theta)$ pour l'hamiltonien effectif (4.2) en fonction de l'interaction U (ceci est tracé pour $N = 2$ au demi-remplissage et $T = 0$). Sur la figure 4.2 on voit ainsi que $\Psi(\theta)$ est localisée autour de $\theta = 0$ pour U petit, ce qui signifie que la charge physique fluctue énormément (elle est représentée par $\hat{L}$, conjugué à la phase θ) : on a donc un état métallique. D'un autre côté, lorsque U se rapproche de la valeur critique, $\Psi(\theta)$ s'aplatit, ce qui conduit

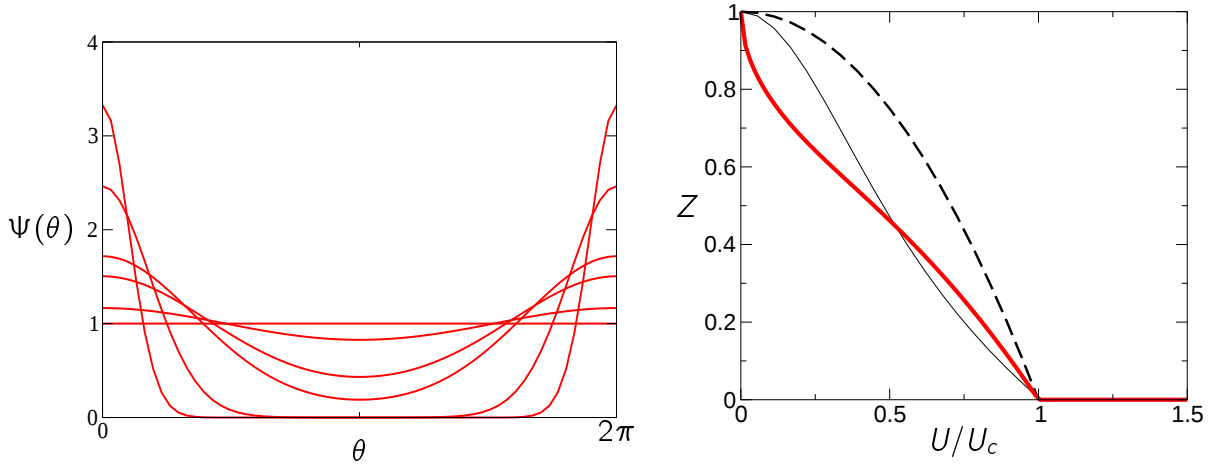


Fig. 4.2 – À gauche : fonction d'onde du fondamental pour des valeurs de l'interaction entre $U = 0.01$ (courbe piquée autour de $\theta \simeq 0$) et $U = 2$ (à la transition de Mott et au-delà, courbe plate). À droite : poids de quasi-particule Z en fonction de U/U_{c2} à température nulle ; calcul DMFT (trait fin), avec les rotateurs condensés (trait épais) et par la méthode de Gutzwiller (trait pointillé).

à la localisation de la charge, car la phase fluctue maintenant de façon maximale : c'est l'état de Mott. La transition est aussi illustrée par un graphe montrant le poids de quasi-particule en fonction de l'interaction (panneau de droite de la figure 4.2). L'annulation linéaire de Z au voisinage du point critique est en accord avec les résultats obtenus par Brinkman-Rice et en DMFT (près de U_{c2}).

□ Cas multiorbital

Cette approche est finalement très pratique pour l'étude du cas multi-orbital, et permet de décrire les transitions de Mott multiples. Considérons ainsi le cas $N = 4$, avec une valeur de U très grande pour que le système soit isolant à tous les remplissages commensurables $n_f = 1/4, 1/2, 3/4$. On peut alors tracer l'occupation totale en fonction du potentiel chimique, qui montre des paliers de charge lorsqu'on pénètre dans la phase isolante (on peut considérer qu'il s'agit d'une réminiscence de l'escalier de Coulomb), figure 4.3. La transition de Mott dans

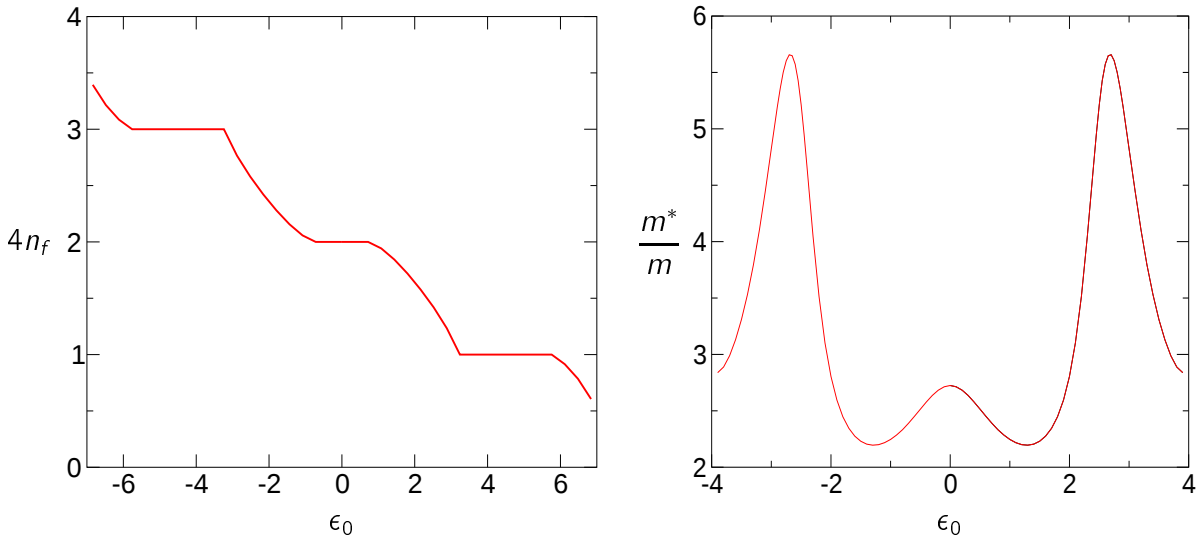


Fig. 4.3 – À gauche : occupation totale à température nulle (en fonction de ϵ_0) dans le cas à deux orbitales pour une interaction $U = 4.5D$ au-dessus des interactions critiques. À droite : masse effective m^*/m pour $U = 2.5D$ (en dessous de la transition de Mott) ; on pourra faire la comparaison au graphe expérimental de la figure 1.5.

l'image de Brinkman-Rice est associée à forte renormalisation des paramètres caractérisant l'état métallique, ce que l'on peut observer en traçant la masse effective $m^*/m \equiv 1/Z$ à la figure 4.3 (ici U est pris plus petit que les deux interactions critiques, de façon que m^* ne diverge pas).

4.1.4 Conclusion partielle

En conclusion, cette théorie de la transition de Mott a le mérite d'être simple dans sa mise en oeuvre, ce qui peut être utile pour une première description de matériaux à dégénérescence orbitale importante, comme le cérium. Des calculs réalistes combinant la LDA et la méthode de rotateurs pour traiter la répulsion coulombienne sont d'ailleurs en cours [6]. En effet, cette méthode, bien que catastrophique dans l'isolant et à température finie (à cause de la décondensation du boson), permet d'aborder l'état métallique fortement corrélé à température nulle de manière assez économique. Elle peut donc être employée pour des calculs d'énergie

4.1. UNE IMAGE SIMPLE DE LA TRANSITION DE MOTT : ROTATEURS CONDENSÉS

électronique qui sont essentiels pour comparer la stabilité relative de diverses structures du réseau, pour lesquelles le couplage aux degrés de liberté électroniques joue un rôle important.

4.2 Rotateurs dynamiques et DMFT

4.2.1 Résolution des équations DMFT

Nous avons donné dans les deux premiers chapitres une présentation succincte de l'approche de champ moyen dynamique, sans entrer trop dans les détails de la solution de ces équations. Cette section est l'occasion de présenter certains aspects supplémentaires (transition de Mott de température nulle, effets multiorbitaux), tout en illustrant l'intérêt de la méthode de rotateurs pour ce type d'application.

En ce qui concerne l'équation d'autocohérence DMFT, j'ai choisi de prendre une densité d'état semi-circulaire pour le réseau ⁶ qui conduit à une équation explicite entre le champ de Weiss et la fonction de Green locale :

$$\Delta(\tau) = t^2 G_d(\tau) \quad (4.14)$$

avec $D \equiv 2t = 1$ la demi-largeur de la bande. La méthode de résolution est immédiate : il suffit d'itérer la boucle DMFT $\Delta(\tau) \rightarrow G_d(\tau) \rightarrow \Delta_{\text{new}}(\tau)$, en utilisant les équations intégrales de la section 3.4 pour calculer la fonction de Green locale.

□ Diagramme de phase paramagnétique

Le caractère premier ordre de la transition de Mott se manifeste par la possibilité de stabiliser *dans la zone de transition* deux solutions (l'une métallique, l'autre isolante), comme montré à la figure 4.4 (seul le cas $U = 2.4$ présente une coexistence).

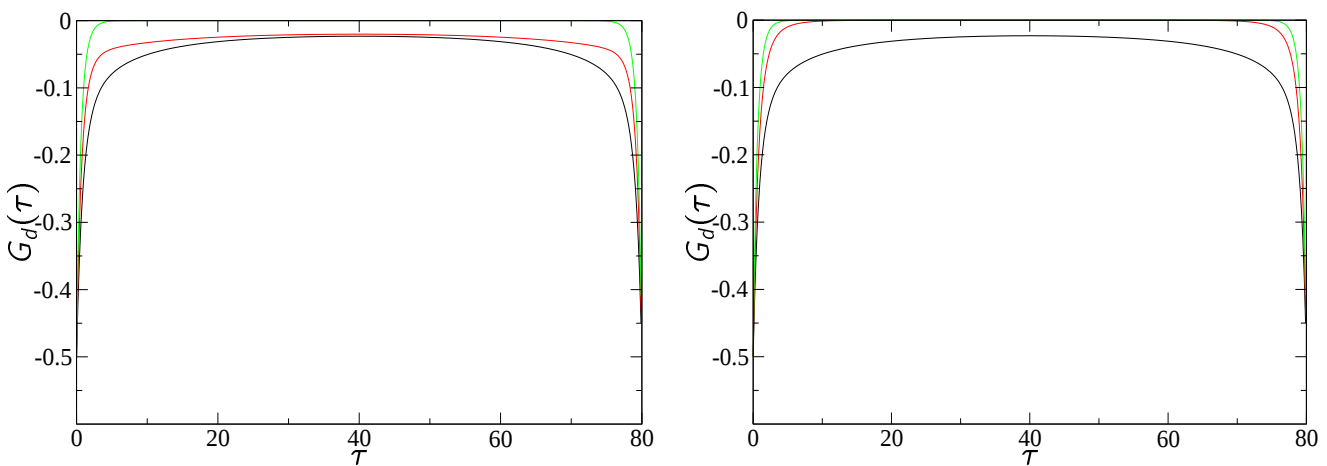


Fig. 4.4 – Fonction de Green physique à $\beta = 80$ pour trois valeurs différentes de l'interaction $U = 1.4, 2.4, 3.4$. Ces résultats sont obtenus par un balayage de U croissant (panneau de gauche) et décroissant (à droite), illustrant le caractère premier ordre de la transition de Mott.

⁶À ne pas confondre avec la densité d'état associée aux électrons de conduction fictifs dans la formulation hamiltonienne du modèle d'Anderson effectif.

Ceci permet de définir une région de coexistence $U_{c1}(T) \leq U \leq U_{c2}(T)$ qui délimite la zone de paramètres où l'on trouve ces deux solutions, la transition étant rigoureusement définie par une comparaison entre l'énergie libre des deux solutions. On peut prouver qu'à température nulle le métal est toujours plus stable que l'isolant, ce qui résulte en une transition du second ordre à $U = U_{c2}(T = 0)$. On peut donc établir un diagramme de phase paramagnétique pour la transition de Mott, en traçant les deux lignes spinodales, et comparer avec les résultats obtenus à ceux prédits par d'autres techniques de résolution du modèle d'impureté (figure 4.5).

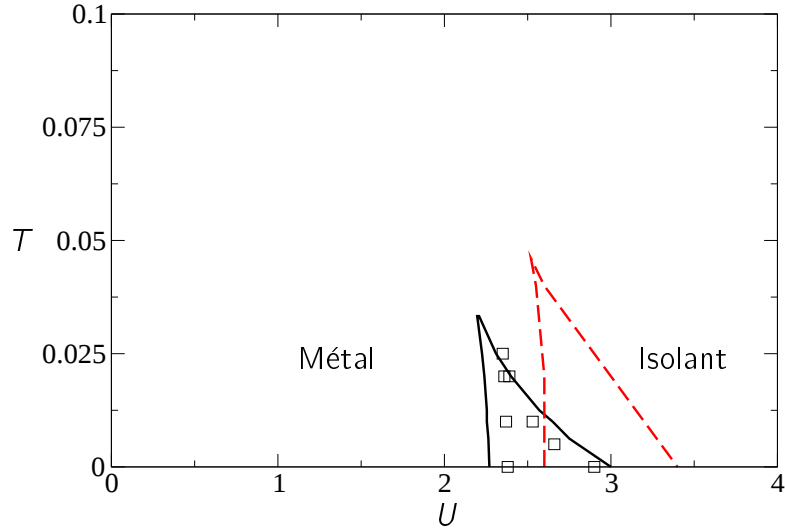


Fig. 4.5 – Diagramme de phase pour le modèle de Hubbard une bande, dans la phase paramagnétique. Comparaison entre résultats de diagonalisation exacte (points), méthode IPT (tirets) et rotateurs esclaves (ligne continue). Noter que pour $T \gtrsim 0.03$, on passe continuellement du métal (à gauche) à l'isolant (à droite).

Il est bon aussi d'insister sur le fait que nos équations intégrales, obtenues dans une approche où le spin est porté par les degrés de liberté fermioniques, ne permettent pas d'étudier le magnétisme du modèle de Hubbard (c'est une limitation générale qu'on a aussi avec les bosons esclaves). On remarque bien sûr que les phases ordonnées sont de toute manière repoussées à plus faible température lorsqu'on impose une frustration géométrique au réseau, ce qui est une condition importante pour observer la transition de Mott à température finie (aussi dans les expériences !).

□ Comportement critique

Bien que la transition de température nulle à U_{c2} soit à proprement parler toujours masquée par la phase antiferromagnétique, elle peut être étudiée rigoureusement en dimension infinie car on peut imposer l'invariance par rotation dans l'étude des solutions des équations DMFT. De plus, le point critique de température nulle contrôle des “crossovers” à plus haute température, qui eux sont accessibles aux expériences sur les matériaux corrélés proches de la transition de Mott, comme on l'a expliqué à la section 2.1.

Dans le diagramme de phase Fig. 4.5, les deux lignes de coexistence se rejoignent en un point critique terminal à une température T_c et interaction $U_c \sim U_{c1}$. On peut souligner le fait étonnant que cette température critique est très faible devant la largeur de bande nue, de l'ordre de $D/40$, un effet qui est à la fois observé sur le diagramme de phase expérimental de V_2O_3 et des conducteurs organiques bidimensionnels (figures 1.1 et 1.2). La physique de ce point critique est associée au comportement d'un modèle d'Ising (pour la solution à $d = \infty$), ce que des expériences récentes sur V_2O_3 semblent confirmer [7].

On en vient maintenant à la description du point critique de température nulle, $U_{c2}(T = 0)$. Pour cela, il est plus parlant d'illustrer la transition de Mott sur une quantité qui est reliée à un paramètre d'ordre de la transition, comme la fonction spectrale locale (plus précisément, le paramètre d'ordre sera le poids Z du pic de quasi-particules). Celle-ci, tracée à la figure 4.6, montre la décroissance systématique de Z lorsque l'interaction U augmente, et la disparition complète du pic à $U > U_{c2}(T = 0)$, laissant la place à un gap de Mott *préformé* dans l'isolant (par continuité de la branche isolante à $U > U_{c1}(T = 0)$). Ainsi, la fonction spectrale dans l'isolant de Mott ne présente que des excitations de haute énergie, les bandes de Hubbard, qui proviennent de la dispersion d'un état avec un site doublement occupé (ou un site vide). La solution métallique, quant à elle, montre ces bandes superposées à un pic de quasiparticule étroit.

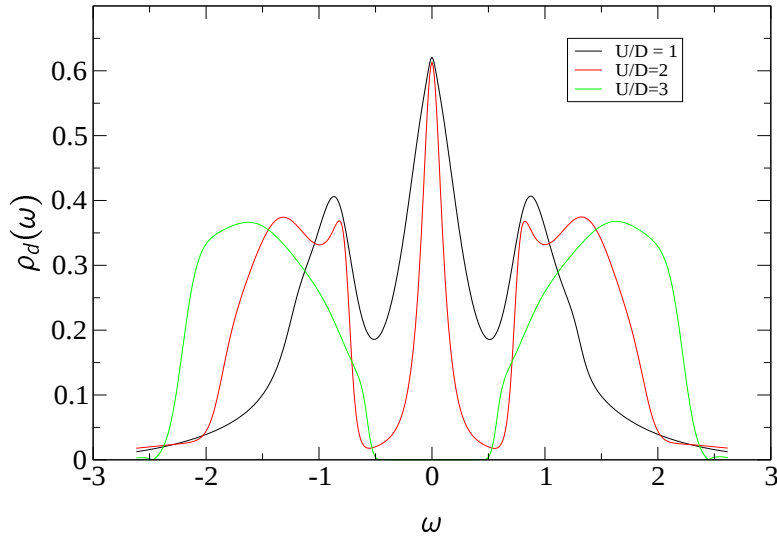


Fig. 4.6 – Densité d'état locale du modèle de Hubbard à température nulle, illustrant la transition de Mott en fonction des corrélations (ici $U = 1, 2, 3$). Ces courbes illustrent clairement la règle de Friedel, les effets de renormalisation dans le métal, et le gap préformé de l'isolant de Mott.

La manière dont ce pic de quasi-particule disparaît à la transition a été caractérisée avant même la conception de DMFT par Brinkman et Rice : le poids $Z \sim 1 - U/U_{c2}$ s'annule linéairement à la transition, et, à cause de l'effet de pincement de la densité d'état au niveau de Fermi, on assiste à une divergence simultanée de la masse effective. Si ce scénario est bien vérifié lorsqu'on résout le problème DMFT avec la méthode de rotateur, il faut noter que l'on

ne peut pas proprement définir Z par la formule usuelle :

$$Z = \left[1 - \frac{\partial \Sigma(\omega + i0^+)}{\partial \omega} \Big|_{\omega=0} \right]^{-1} \quad (4.15)$$

car la self-énergie physique dans l'approche de rotateur possède des corrections qui violent le Liquide de Fermi à basse température (Z est formellement zéro à température nulle). On peut tout de même définir Z par le poids du pic central, et celui-ci s'annule effectivement à U_{c2} . De même, le secteur de spin est relativement mal décrit : la solution correcte des équations DMFT présente une susceptibilité de spin locale finie dans le métal, qui diverge à U_{c2} (traduisant la formation des moments locaux qui peuplent l'état isolant paramagnétique). La méthode de rotateur donne en fait un sur-écranage du spin, qui conduit à une divergence de la susceptibilité dans la phase métallique (à température nulle). Pour une étude complète des quantités à deux particules, voir l'appendice D.

On peut donc dire que le scénario DMFT pour la transition de Mott, initialement bâti grâce aux résultats de la méthode IPT et des calculs de Monte-Carlo quantique, est retrouvé dans ses grandes lignes par l'approche de rotateur dynamique, malgré les remarques précédentes. Ce succès est dû au caractère interpolatif de la méthode (les limites $U = 0$ et $t = 0$ étant traitées exactement), et en particulier à la présence d'une règle de somme (3.38), qui est cruciale pour retrouver l'image attendue de Brinkman et Rice à la transition. Il faut remarquer que l'utilisation d'équations intégrales par la méthode de boson esclave (approximation U-NCA [8]) manque cet effet de pincement de la densité d'état, et échoue par conséquent à prédire correctement le diagramme de phase du modèle de Hubbard [9] (pour une comparaison critique, voir l'Article-3). L'accord de la U-NCA avec les résultats numériques n'est pas très satisfaisant non plus, même qualitativement.

4.2.2 Étude de la dégénérescence orbitale

Nous terminons l'analyse des équations intégrales par une étude rapide de l'effet de la dégénérescence orbitale sur la transition de Mott, dans le cadre du modèle à symétrie $SU(N)$. Cet effet est décrit d'une manière assez simple dans la structure des équation intégrales : N apparaît juste comme facteur multiplicatif dans la self-énergie de rotateur, équation (3.34)⁷. On peut voir que l'effet de N est d'impliquer une diminution des corrélations, puisque les interactions critiques U_{c1} et U_{c2} sont repoussées à des valeurs plus grandes lorsque N augmente (figure 4.7).

Si l'on s'intéresse de plus près au diagramme de phase de ce modèle multi-orbital, on constate, à partir de la solution numérique, que ces lignes à une température donnée, vérifient le comportement d'échelle :

$$U_{c1}(N, T) \sim \sqrt{N} \tilde{U}_{c1}(T) \quad (4.16)$$

$$U_{c2}(N, T) \sim N \tilde{U}_{c2}(T) \quad (4.17)$$

⁷En fait il s'agit du coefficient $\mathcal{N} \equiv N/M$. Ici M (paramètre libre) est fixé tel que $1/M \simeq 1.5$ pour caler correctement le point de transition de température nulle $U_{c2}(T = 0)$ à $N = 2$ sur la valeur obtenue par la méthode projective (autour de $U \simeq 2.9$).

Cela sera démontré être une propriété exacte du modèle de Hubbard à la section 4.3 (dans le cadre de DMFT et pour N grand). On remarque de plus une croissance de la température critique avec N . S'ajoutant à des effets magnétiques réduits dus à la frustration induite par la dégénérescence orbitale, cette dilatation globale de la région de coexistence pour les systèmes orbitalement dégénérés permet de prédire un régime plus étendu en température où l'on peut observer la physique de Mott.

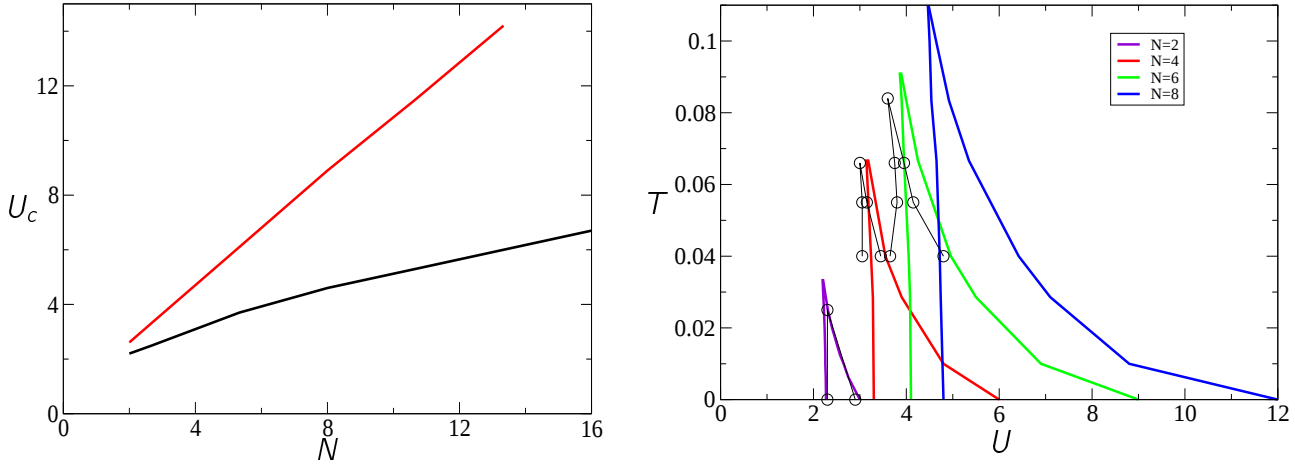


Fig. 4.7 – À gauche : interactions critiques U_{c1} (en bas) et U_{c2} (en haut) à $\beta = 80$ en fonction du nombre de saveurs N . À droite : diagramme de phase multi-orbital pour $N = 2, 4, 6, 8$ par la méthode de rotateurs, et comparaison avec des calculs Monte-Carlo (cercles) réalisés par B. Amadon pour le modèle de Hubbard symétrique avec 1,2,3 orbitales.

4.2.3 Conclusion partielle

Les équations intégrales étudiées dans cette section sont donc plus précises que l'approximation où l'on condense le rotateur pour décrire la transition de Mott (cette dernière méthode prédit formellement $U_{c1} = 0$ et a des problèmes sérieux à température finie). Cependant, dans sa formulation actuelle, l'approximation de rotateurs dynamiques est relativement mauvaise hors du demi-remplissage (à cause du passage des θ aux X). Nous allons voir finalement une dernière approche analytique qui permet d'étudier le modèle de Hubbard multiorbital.

4.3 Résultats exacts sur la transition métal-isolant à grande dégénérescence orbitale

Cette section fait la connection avec les deux précédentes. Nous nous proposons de laisser pour un moment la technique de rotateur esclave, pour traiter l'hamiltonien d'Anderson multi-orbital (3.1) par une approche directe de N grand, dans le formalisme de DMFT. Nous allons montrer que les résultats obtenus à la section 4.2.2 pour la dépendance en N des interactions critiques U_{c1} et U_{c2} , équations (4.16-4.17), sont exacts asymptotiquement à N grand. D'autre part nous allons voir que la valeur de Gutzwiller pour $U_{c2}(T = 0)$, équation (4.11), est en fait exacte à $N = \infty$, en accord avec les calculs de la section 4.1. Nos résultats vont finalement valider à N grand l'image de Brinkman-Rice près du point critique. L'idée de départ, due à Moeller et Kotliar, est de faire une projection de basse énergie des équations DMFT [10, 11]. Je vais présenter ici les idées de base, et référer le lecteur à l'Article-4, concernant les détails plus techniques.

4.3.1 Méthode projective multi-orbitale

La remarque cruciale est que la solution des équations DMFT présente *une séparation d'échelles à la transition de Mott* [12]. En effet, la solution métallique disparaît en montrant un pic de quasiparticules bien séparé des bandes de Hubbard (laissant la place à un gap préformé dans la phase isolante), voir la figure 4.6. Il semble donc possible de se concentrer sur les degrés de liberté de basse énergie, en intégrant les énergies supérieures à ZD (les bandes de Hubbard). Cela nécessite de restreindre à la fois les équations de champ moyen dynamique au secteur de basse énergie, et de dériver par une méthode de projection un hamiltonien effectif agissant dans ce sous-espace. Il faut noter que cette méthode, appliquée au modèle de Hubbard à une bande, a permis d'effectuer une estimation très précise des interactions critiques à température nulle.

Ce qui est très particulier à DMFT est que le bain $\Delta(i\omega) \equiv \sum_k |V_k|^2 / (i\omega - \varepsilon_k)$ reflète cette séparation d'échelle à cause de l'équation d'autocohérence. On définit ainsi un secteur de haute énergie ($k \in H^\pm$) associé aux bandes de Hubbard supérieure (H^+) et inférieure (H^-), et un secteur de basse énergie ($k \in L$) associé à la résonance de quasiparticule. Cela conduit à séparer l'hamiltonien d'Anderson de la façon suivante (par simplicité, on prend V_L et V_H indépendants de k dans chaque secteur) :

$$H = H_L + H_H + H_{HL} \quad (4.18)$$

$$H_L = \sum_{k \in L, \sigma} \varepsilon_k c_{k,\sigma}^\dagger c_{k,\sigma} \quad (4.19)$$

$$\begin{aligned} H_H = & \sum_{k \in H^\pm, \sigma} \varepsilon_k c_{k,\sigma}^\dagger c_{k,\sigma} + \frac{U}{2} \left[\sum_\sigma d_\sigma^\dagger d_\sigma - n \right]^2 - \tilde{\mu} \sum_\sigma d_\sigma^\dagger d_\sigma \\ & + \sum_{k \in H^\pm, \sigma} V_H c_{k,\sigma}^\dagger d_\sigma + \text{h.c.} \end{aligned} \quad (4.20)$$

$$H_{HL} = \sum_{k \in L, \sigma} V_L c_{k,\sigma}^\dagger d_\sigma + \text{h.c.} \quad (4.21)$$

À cause de l'équation d'autocohérence, V_L s'annule à la transition de Mott à U_{c2} , et l'on peut obtenir un hamiltonien effectif pour le secteur $k \in L$ en intégrant le secteur $H^\pm$ à l'ordre le plus bas en V_L . Ceci nécessite de diagonaliser la partie de haute énergie H_H . L'intérêt de cette approche est que le problème de haute énergie ne possède plus qu'une seule échelle, le gap de Mott, et est attaquant plus facilement par les méthodes numériques (diagonalisation exacte). Le cas multi-orbital reste bien entendu difficile pour des raisons de grande taille de l'espace de Hilbert, mais nous allons montrer que le problème se simplifie énormément dans la limite de N grand.

Le problème de haute énergie (hamiltonien H_H) est un modèle d'Anderson dans un bain qui possède un gap (puisqu'on se restreint aux énergies ε_k avec $k \in H^\pm$). Ce modèle est parfaitement régulier (pas d'effet Kondo), et présente un fondamental qui est C_N^Q dégénéré (pour une charge $Q = nN$), recouvert par des vecteurs propres $|\mu\rangle$ (associés à l'énergie E_{gs}). L'expression de ces états est bien sûr compliquée, puisque les états atomiques sont mélangés par V_H , mais forment une représentation du groupe $SU(N)$, de dimension C_N^Q . On peut donc dériver un hamiltonien de spin, qui agit dans l'espace de charge Q sur l'orbitale d , et qui couple au bain de basse énergie. Ceci est réalisé par une transformation de Schrieffer-Wolff généralisée, à l'ordre V_L^2 , qui aboutit à un modèle Kondo effectif :

$$H_{\text{eff}} = \sum_{k \in L, \sigma} \varepsilon_k c_{k, \sigma}^\dagger c_{k, \sigma} + \frac{V_L^2}{U} \sum_{kk', \mu\nu, \sigma\sigma'} J_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'} X^{\mu\nu} c_{k, \sigma}^\dagger c_{k', \sigma'} \quad (4.22)$$

où $X^{\mu\nu} \equiv |\mu\rangle\langle\nu|$ est un opérateur de Hubbard agissant dans le sous-espace des fondamentaux de H_H . Les constantes de couplages (sans dimension) sont déterminées par l'équation :

$$J_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'} \equiv \langle\mu| d_\sigma^\dagger \frac{U}{H_H - E_{gs}} d_\sigma |\nu\rangle - \langle\mu| d_\sigma \frac{U}{H_H - E_{gs}} d_\sigma^\dagger |\nu\rangle \quad (4.23)$$

En insistant sur le fait que l'on a projeté sur des états de charge fixée, on notera $f_\sigma^\dagger$ les excitations fermioniques sur l'orbitale, avec la contrainte $\sum_\sigma f_\sigma^\dagger f_\sigma = Q$. Cet hamiltonien effectif, obtenu à l'ordre V_L^2 , est valide asymptotiquement au point critique, et permet de déterminer l'interaction critique, comme on va le voir maintenant.

□ Simplifications à grand N

On peut tout d'abord utiliser un argument de symétrie général pour simplifier l'expression des couplages Kondo. On trouve ainsi :

$$J_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'} = A \delta_{\sigma\sigma'} \delta_{\mu\nu} + B \langle\mu| d_\sigma^\dagger d_\sigma |\nu\rangle \quad (4.24)$$

où $A(N, n; V_H/U)$ et $B(N, n; V_H/U)$ sont des coefficients à déterminer en résolvant le problème de haute énergie. On peut en fait montrer que lorsque U est d'ordre N , la théorie de perturbation en V_H autour de la limite atomique ne produit pas de correction à l'ordre dominant en N . On trouve donc :

$$A = -2, B = 4 \quad (4.25)$$

De même, l'élément de matrice apparaissant dans (4.24) peut être évalué dans la limite atomique.

4.3.2 Solution explicite à grand N

Les coefficients de l'hamiltonien de basse énergie ayant été déterminés, il reste quand même à résoudre ce dernier. L'hamiltonien Kondo effectif s'écrivant :

$$H_{\text{eff}} = \sum_{k \in L, \sigma} \varepsilon_k c_{k, \sigma}^\dagger c_{k, \sigma} + \frac{4V_L^2}{N\tilde{U}} \sum_{kk' \in L, \sigma\sigma'} \left(f_{\sigma'}^\dagger f_{\sigma} - \frac{\delta_{\sigma\sigma'}}{2} \right) c_{k, \sigma}^\dagger c_{k', \sigma'} \quad (4.26)$$

on remarque qu'on peut résoudre ce problème exactement en grand N [1] puisque le couplage Kondo est proportionnel à $1/N$, lorsqu'on pose $U = N\tilde{U}$. Pour cela, on introduit un boson auxiliaire b conjugué à $\sum_{k\sigma} f_{\sigma}^\dagger c_{k\sigma}$, et un multiplicateur de Lagrange λ pour imposer la contrainte $\sum_{\sigma} f_{\sigma}^\dagger f_{\sigma} = Nn$. À $N = \infty$, le champ de boson se condense, et le problème est résolu par les équations de col :

$$G_f^{-1}(\omega) = \omega + \lambda - b^2 G_{\text{cL}}^0(\omega) \quad (4.27)$$

$$n = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^0 d\omega \operatorname{Im} G_f(\omega) \quad (4.28)$$

$$\frac{\tilde{U}}{4V_L^2} = \int d\tau G_f(\tau) G_{\text{cL}}^0(\tau) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^0 d\omega \operatorname{Im} [G_f(\omega) G_{\text{cL}}^0(\omega)] \quad (4.29)$$

Dans cette expression, G_{cL}^0 denote la fonction de Green de la partie de basse énergie du bain d'électrons de conduction (sans couplage Kondo) :

$$G_{\text{cL}}^0(i\omega) = \sum_{k \in L} \frac{1}{i\omega - \varepsilon_k} = \frac{1}{V_L^2} \Delta_L(i\omega) \quad (4.30)$$

Pour écrire l'équation d'autocohérence DMFT dans le secteur de basse énergie, on a besoin de la fonction de Green physique projetée $G_{dL}(i\omega_n)$. On peut relier celle-ci à celle du fermion auxiliaire, $G_f(i\omega_n)$, en réalisant que la matrice- $\mathcal{T}$ des électrons de conduction peut être obtenue à la fois à partir du modèle d'Anderson original et du modèle Kondo effectif. En effet la fonction de Green en interaction des électrons du bain, G_{cL} , est reliée à la matrice- $\mathcal{T}$ par :

$$G_{\text{cL}} = G_{\text{cL}}^0 + (G_{\text{cL}}^0)^2 \mathcal{T} \quad (4.31)$$

Pour le modèle d'Anderson, la matrice- $\mathcal{T}$ est simplement $V_L^2 G_{dL}$ à basse énergie, mais aussi $b^2 G_f$ si l'on considère le modèle Kondo. On obtient donc une relation entre la fonction de Green physique et celle des fermions de basse énergie : $\mathcal{T} = V_L^2 G_{dL} = b^2 G_f$. D'après l'équation (4.27), on en déduit ainsi l'expression de G_{dL} en terme de la fonction d'hybridation de basse énergie $\Delta_L = V_L^2 G_{\text{cL}}^0$:

$$G_{dL}^{-1}(\omega) = \frac{\omega + \lambda}{Z} - \Delta_L(\omega) \quad (4.32)$$

où l'on note de façon claire $Z \equiv b^2/V_L^2$. On obtient finalement G_{dL} en insérant l'expression (4.32) dans l'équation d'autocohérence (limitée à basse énergie) :

$$G_{dL}(i\omega) = \int d\epsilon \frac{D(\epsilon)}{\Delta_L(i\omega) + G_{dL}^{-1}(i\omega) - \epsilon} = \int d\epsilon \frac{D(\epsilon)}{\frac{i\omega + \lambda}{Z} - \epsilon} \quad (4.33)$$

La partie de basse énergie de la fonction spectrale locale s'écrit donc :

$$\rho_{dL}(\omega) \equiv -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{dL}(\omega + i0^+) = D\left(\frac{\omega + \lambda}{Z}\right) \quad (4.34)$$

Celle-ci est réminiscente du résultat obtenu par la méthode de boson (ou rotateur) esclave, et confirme l'identification du coefficient Z avec le résidu de quasiparticule. Puisque l'on a $\rho_d = Z\rho_f$, l'équation (4.28) donne :

$$n = \int_{-\infty}^0 d\omega \frac{1}{Z} D\left(\frac{\omega + \lambda}{Z}\right) = \int_{-\infty}^{\mu_0} d\epsilon D(\epsilon) \quad (4.35)$$

où on définit le potentiel chimique non-renormalisé $\lambda/Z = \mu_0(n)$. Finalement, en utilisant l'équation (4.29) et $\mathcal{I}m[\Delta_L G_f] = (1/Z)(\omega + \lambda)\mathcal{I}m G_f$, on obtient :

$$\frac{\tilde{U}}{4} = -\frac{1}{Z^2} \int_{-\infty}^0 d\omega (\omega + \lambda) \rho_{dL}(\omega) = -\int_{-\infty}^0 \frac{d\omega}{Z} \frac{\omega + \lambda}{Z} D\left(\frac{\omega + \lambda}{Z}\right) \quad (4.36)$$

Clairement, Z disparaît de cette équation, ce qui laisse une condition qui détermine l'interaction critique $\tilde{U}_{c2}$ à laquelle Z s'annule exactement. Ceci est attendu : l'hamiltonien de basse énergie n'est valide par construction qu'au point de transition, et la détermination du comportement critique autour de U_{c2} n'est possible qu'à condition de rajouter des termes d'ordre supérieur dans le développement en V_L de l'hamiltonien effectif. On aboutit finalement à l'expression de l'interaction critique :

$$\tilde{U}_{c2} = \frac{U_{c2}}{N} = 4\bar{\epsilon}(n) \quad (4.37)$$

$$\bar{\epsilon}(n) \equiv -\int_{-\infty}^{\mu_0(n)} d\epsilon \epsilon D(\epsilon) \quad (4.38)$$

On retrouve donc les résultats Gutzwiller, obtenus de manière approchée par la méthode de rotateur esclave à la section 4.1. Bien sûr, à N fini, on doit trouver une transition de Mott seulement pour les remplissages commensurables $n = Q/N$ où Q est entier (ceux-ci deviennent denses dans la limite $N = \infty$).

□ Remarques finales

On peut en fait obtenir le résultat précédent pour U_{c2} de manière plus directe, à partir d'un argument de stabilité de la solution métallique tiré des équations DMFT, qui se simplifie drastiquement dans la limite N grand. Cette façon de procéder, décrite dans l'Article-4, permet aussi une étude à N grand de l'interaction critique qui déstabilise la solution isolante, U_{c1} . Le résultat de cette analyse est que ces deux couplages ont un comportement différent avec N (à température nulle) :

$$U_{c1}(N) \sim \sqrt{N} \tilde{U}_{c1} \quad (4.39)$$

$$U_{c2}(N) \sim N \tilde{U}_{c2} \quad (4.40)$$

en accord avec les résultats obtenus par les équations intégrales de la méthode de rotateurs. Ceci explique l'élargissement de la fenêtre de coexistence observé dans les calculs Monte-Carlo à deux orbitales de M. Rozenberg [13], et dans les calculs plus récents de B. Amadon et S. Biermann. Par rapport aux calculs plus anciens [14], limités à haute température, et qui présentaient une dépendance en $\sqrt{N}$ de l'interaction critique, nous sommes amenés à conclure que ces résultats concordent avec notre estimation de U_{c1} , dans la mesure où la ligne $U_{c1}(T)$ est très verticale, et que ces calculs n'ont pas été menés à suffisamment basse température pour observer le régime de coexistence.

Les résultats obtenus ici pourront servir à tester les méthodes numériques de résolution du modèle de Hubbard multi-orbital, actuellement développées dans l'optique de multiples applications (étude des fullèrenes, des oxydes à couches d et f partiellement remplies...). Nous confirmons aussi par ce calcul que l'image physique de la transition de Mott obtenue pour le modèle de Hubbard à une bande est encore valide dans le cas multi-orbital. Malheureusement, nous n'avons pas été capable d'étudier les effets de température finie dans cette limite de N grand, même si l'on peut obtenir une borne inférieure, en $\sqrt{N} \lesssim T_c$, pour le comportement de la température du point critique de Mott terminal.

4.4 Conclusion

Ce chapitre a été consacré à l'analyse de quelques effets multi-orbitaux sur la transition de Mott dans un modèle simplifié. Ce problème a été abordé par diverses techniques qui donnent une image cohérente de la physique : Monte Carlo Quantique, limite de grand N , ainsi qu'une nouvelle approche développée dans ce but, le rotateur esclave. Le résultat essentiel qui transparaît de cette étude est que les prédictions concernant la transition de Mott obtenues sur le modèle Hubbard à une bande sont directement transposables dans le cas dégénéré : le scénario Brinkman-Rice de température nulle semble valide pour toute valeur de N , et la transition est du premier ordre à température finie (avec un domaine de coexistence qui s'étend avec N).

Concernant l'utilité pratique de la méthode de rotateur esclave dans le domaine des fermions corrélés, il faudra penser à des généralisations qui permettent d'aborder des hamiltoniens plus réalistes que (3.1), en particulier incluant des anisotropies de champ cristallin et des couplages inter-bande. Cette méthode reste malgré tout une alternative économique aux techniques existantes, et peut être combinée dans des calculs de structure électronique associant champ moyen dynamique et LDA.

D'un point de vue plus fondamental, nous avons vérifié que la méthode de rotateur (dans sa version dynamique) est assez précise pour décrire la physique du modèle de Hubbard dans l'approche de champ moyen dynamique. Sa simplicité est par ailleurs un atout pour aborder des problèmes difficilement accessibles aux approches traditionnelles, en particulier lorsqu'on essaie d'aller au-delà de DMFT. C'est le sujet du chapitre suivant.

Bibliographie du chapitre 4

- [1] **D. M. Newns et N. Read**, *Adv. Phys.* **36**, 799 (1987).
- [2] **W. F. Brinkmann et T. M. Rice**, *Phys. Rev. B* **2**, 4302 (1970).
- [3] **G. Kotliar et A. E. Ruckenstein**, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1362 (1986).
- [4] **J. P. Lu**, *Phys. Rev. B* **49**, 5687 (1994).
- [5] **J. Bünnemann et W. Weber**, *Phys. Rev. B* **55**, 4011 (1997).
- [6] **B. Amadon et S. Biermann** Communication privée.
- [7] **P. Limelette** Résultats préliminaires.
- [8] **T. Pruschke et N. Grewe**, *Z. Phys. B* **74**, 439 (1989).
- [9] **P. Lombardo et G. Albinet**, *Phys. Rev. B* **65**, 115110 (2002).
- [10] **G. Moeller, Q. Si, G. Kotliar, M. Rozenberg et D. S. Fisher**, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2082 (1995).
- [11] **G. Kotliar**, *Euro. Phys. J. B* **11**, 29 (1999).
- [12] **A. Georges et G. Kotliar**, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3500 (2000).
- [13] **M. J. Rozenberg**, *Phys. Rev. B* **55**, 4855 (1997).
- [14] **J. E. Han, M. Jarrell et D. L. Cox**, *Phys. Rev. B* **58**, 4199 (1998).

Article 3

Phys. Rev. B **66**, 165111 (2002)

PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)**Quantum impurity solvers using a slave rotor representation**Serge Florens^{1,2} and Antoine Georges^{1,2}¹*Laboratoire de Physique Théorique, Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France*²*Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, Bât. 510, 91405 Orsay, France*

(Received 1 July 2002; revised manuscript received 7 August 2002; published 29 October 2002)

We introduce a representation of electron operators as a product of a spin-carrying fermion and of a phase variable dual to the total charge (slave quantum rotor). Based on this representation, a method is proposed for solving multiorbital Anderson quantum impurity models at finite interaction strength U . It consists in a set of coupled integral equations for the auxiliary field Green's functions, which can be derived from a controlled saddle point in the limit of a large number of field components. In contrast to some finite- U extensions of the noncrossing approximation, the method provides a smooth interpolation between the atomic limit and the weak-coupling limit, and does not display violation of causality at low frequency. We demonstrate that this impurity solver can be applied in the context of dynamical mean-field theory, at or close to half-filling. Good agreement with established results on the Mott transition is found, and large values of the orbital degeneracy can be investigated at low computational cost.

DOI: 10.1103/PhysRevB.66.165111

PACS number(s): 71.27.+a, 71.30.+h

I. INTRODUCTION

The Anderson quantum impurity model (AIM) and its generalizations play a key role in several recent developments in the field of strongly correlated electron systems. In single-electron devices, it has been widely used as a simplified model for the competition between the Coulomb blockade and the effect of tunneling.¹ In a different context, the dynamical mean-field theory (DMFT) of strongly correlated electron systems replaces a spatially extended system by an Anderson impurity model with a self-consistently determined bath of conduction electrons.^{2,3} Naturally, the AIM is also essential to our understanding of local moment formation in metals and to that of heavy-fermion materials, particularly in the mixed-valence regime.⁴

It is therefore important to have at our disposal quantitative tools allowing for the calculation of physical quantities associated with the AIM. The quantity of interest depends on the specific context. Many recent applications require a calculation of the localized level Green's function (or spectral function) and possibly of some two-particle correlation functions.

Many such "impurity solvers" have been developed over the years. Broadly speaking, these methods fall in two categories: numerical algorithms which attempt at a direct solution on the computer and analytical approximation schemes (which may also require some numerical implementation). Among the former, the quantum Monte Carlo (QMC) approach (based on the Hirsch-Fye algorithm) and the numerical renormalization group play a prominent role. However, such methods become increasingly costly as the complexity of the model increases. In particular, the rapidly developing field of applications of DMFT to electronic structure calculations⁵ requires methods that can handle impurity models involving orbital degeneracy. For example, materials involving f electrons are a real challenge to DMFT calculations when using the quantum Monte Carlo approach. Similarly, cluster extensions of DMFT require one to handle a large number of correlated local degrees of freedom. The

dimension of the Hilbert space grows exponentially with the number of these local degrees of freedom, and this is a severe limitation to all methods, particularly the exact diagonalization and numerical renormalization group methods.

The development of fast and accurate (although approximate) impurity solvers is therefore essential.³¹ In the one-orbital case, the iterated perturbation theory (IPT) approximation⁶ has played a key role in the development of DMFT, particularly in elucidating the nature of the Mott transition.⁷ A key reason for the success of this method is that it becomes exact both in the limit of weak interactions and in the atomic limit. Unfortunately, however, extensions of this approach to the multiorbital case have not been as successful.⁸ Another widely employed method is the noncrossing approximation (NCA).^{9,10} This method takes the atomic limit as a starting point and performs a self-consistent resummation of the perturbation theory in the hybridization to the conduction bath. It is thus intrinsically a strong-coupling approach, and indeed it is in the strong-coupling regime that the NCA has been most successfully applied. The NCA does suffer from some limitations, however, which can become severe for some specific applications. These limitations, are of two kinds.

(i) The low-energy behavior of NCA integral equations is well known to display non-Fermi-liquid power laws. This can be better understood when formulating the NCA approach in terms of slave bosons.^{11,12} It becomes clear then that the NCA actually describes accurately the overscreened regime of multichannel models. This is in a sense a remarkable success of the NCA, but also calls for some care when applying the NCA to Fermi-liquid systems in the screened regime. It must be noted that recent progresses have been made to improve the low-energy behavior in the Fermi-liquid case.¹³

(ii) A more important limitation for practical applications has to do with the finite- U extensions of NCA equations. Standard extensions do not reproduce correctly the noninteracting $U=0$ limit. In contrast to IPT, they are not "interpolative solvers" between the weak-coupling and strong-

SERGE FLORENS AND ANTOINE GEORGES

PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)

coupling limits. Furthermore, the physical self-energy tends to develop noncausal behavior at low frequency [i.e., $\Sigma_d''(\omega) > 0$] below some temperature (the “NCA pathology”). At half-filling and large U , this only happens at a rather low-energy scale, but away from half-filling or for smaller U , this scale can become comparable to the bandwidth, making the finite- U NCA of limited applicability.

In this article, we introduce new impurity solvers which overcome some of these difficulties. Our method is based on a rather general representation of strongly correlated electron systems, which has potential applications to lattice models as well.²⁷ The general idea is to introduce a new slave particle representation of physical electron operators, which emphasizes the *phase variable dual to the total charge* on the impurity. This should be contrasted to slave boson approaches to a multiorbital AIM: there, one introduces as many auxiliary bosons as there are fermion states in the local Hilbert space. This is far from economical: when the local interaction depends on the total charge only, it should be possible to identify a collective variable which provides a minimal set of collective slave fields. We propose that the phase dual to the total charge precisely plays this role. This turns a correlated electron model (at finite U) into a model of spin- (and orbital-) carrying fermions coupled to a *quantum rotor degree of freedom*. Various types of approximations can then be made on this model. In this article, we emphasize an approximate treatment based on a σ -model representation of the rotor degree of freedom, which is then solved in the limit of a large number of components. This results in coupled integral equations which share some similarities to those of the NCA, but do provide the following improvements.

(i) The noninteracting ($U=0$) limit is reproduced exactly. For a fully symmetric multiorbital model at half-filling and in the low-temperature range, the atomic limit is also captured exactly, so that the proposed impurity solver is an interpolative scheme between weak and strong coupling. The σ -model approximation does not treat as nicely the atomic limit far from half-filling, however (though improvements are possible; see Sec. V E).

(ii) The physical self-energy does not display any violation of causality (even at low temperature or small U). This is guaranteed by the fact that our integral equations become exact in the formal limit of a large number of orbitals and components of the σ -model field.

It should be emphasized, though, that the low-energy behavior of our equations is similar to the (infinite- U) NCA and characterized by non-Fermi-liquid power laws below some low-energy scale.

As a testing ground for the new solver, we apply it in this paper to the DMFT treatment of the Mott transition in the multiorbital Hubbard model. We find an overall very good agreement with the general aspects of this problem, as known from numerical work and from some recently derived exact results. We also compare to other impurity solvers (IPT, exact diagonalization, QMC, NCA), particularly regarding the one-electron spectral function.

This article is organized as follows. In Sec. II, we introduce a representation of fermion operators in terms of the phase variable dual to the total charge (taking the finite- U ,

multiorbital Anderson impurity model as an example). In Sec. III, a σ -model representation of this phase variable is introduced, along with a generalization from $O(2)$ to $O(2M)$. In the limit of a large number of components, a set of coupled integral equations is derived. In Sec. IV, we test this “dynamical slave rotor” (DSR) approach on the single-impurity Anderson model. The rest of the paper (Sec. V) is devoted to applications of this approach in the context of DMFT, which puts in perspective the advantages and limitations of the new method.

II. ROTORIZATION

The present article emphasizes the role played by the total electron charge and its conjugate phase variable. We introduce a representation of the physical electron in terms of two auxiliary fields: a fermion field which carries spin (and orbital) degrees of freedom and the (total) charge raising and lowering operators which we represent in terms of a phase degree of freedom. The latter plays a role similar to a slave boson: here a “slave” $O(2)$ quantum rotor is used rather than a conventional bosonic field.

A. Atomic model

We first explain this construction on the simple example of an atomic problem, consisting in an N -fold degenerate atomic level subject to a local $SU(N)$ -symmetric Coulomb repulsion:

$$H_{\text{local}} = \sum_{\sigma} \epsilon_0 d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} + \frac{U}{2} \left[\sum_{\sigma} d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} - \frac{N}{2} \right]^2. \quad (1)$$

We use here $\epsilon_0 \equiv \epsilon_d + U/2$ as a convenient redefinition of the impurity level, and we recast the spin and orbital degrees of freedom into a single index $\sigma = 1, \dots, N$ (for $N=2$, we have a single orbital with two possible spin states $\sigma = \uparrow, \downarrow$). We note that ϵ_0 is zero at half filling, due to particle-hole symmetry.

The crucial point is that the spectrum of the atomic Hamiltonian (1) depends only on the total fermionic charge $Q = 0, \dots, N$ and has a simple quadratic dependence on Q :

$$E_Q = \epsilon_0 Q + \frac{U}{2} \left[Q - \frac{N}{2} \right]^2. \quad (2)$$

There are 2^N states, but only $N+1$ different energy levels, with degeneracies $\binom{N}{Q}$. In conventional slave boson methods,^{14,15} a bosonic field is introduced for each atomic state $|\sigma_1 \dots \sigma_Q\rangle$ (along with spin-carrying auxiliary fermions $f_{\sigma}^{\dagger}$). Hence, these methods are not describing the atomic spectrum in a very economical manner.

The spectrum of Eq. (1) can actually be reproduced by introducing, besides the set of auxiliary fermions $f_{\sigma}^{\dagger}$, a single additional variable—namely, the angular momentum $\hat{L} = -i\partial/\partial\theta$ associated with a quantum $O(2)$ rotor θ (i.e., an angular variable in $[0, 2\pi]$). Indeed, the energy levels (2) can be obtained using the Hamiltonian

$$H_{\text{local}} = \sum_{\sigma} \epsilon_0 f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} + \frac{U}{2} \hat{L}^2. \quad (3)$$

A constraint must be imposed which ensures that the total number of fermions is equal to the $O(2)$ angular momentum (up to a shift):

$$\hat{L} = \sum_{\sigma} \left[f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} - \frac{1}{2} \right]. \quad (4)$$

This restricts the allowed values of the angular momentum to be $l = Q - N/2 = -N/2, -N/2 + 1, \dots, N/2 - 1, N/2$, while in the absence of any constraint l can be an arbitrary (positive or negative) integer. The spectrum of Eq. (3) is $\epsilon_0 Q + Ul^2/2$, with $l = Q - N/2$ thanks to Eq. (4), so that it coincides with Eq. (2).

To be complete, we must show that each state in the Hilbert space can be constructed in terms of these auxiliary degrees of freedom, in a way compatible with the Pauli principle. This is achieved by the following identification:

$$|\sigma_1 \dots \sigma_Q\rangle_d = |\sigma_1 \dots \sigma_Q\rangle_f |l = Q - N/2\rangle_{\theta}, \quad (5)$$

in which $|\sigma_1 \dots \sigma_Q\rangle_{d,f}$ denotes the antisymmetric fermion state built out of d and f fermions, respectively, and $|l\rangle_{\theta}$ denotes the quantum rotor eigenstate with angular momentum l , i.e., $\langle \theta | l \rangle_{\theta} = e^{il\theta}$. The creation of a physical electron with spin σ corresponds to acting on such a state with $f_{\sigma}^{\dagger}$ as well as raising the total charge (angular momentum) by one unit. Since the raising operator is $e^{i\theta}$, this leads to the representation

$$d_{\sigma}^{\dagger} \equiv f_{\sigma}^{\dagger} e^{i\theta}, \quad d_{\sigma} \equiv f_{\sigma} e^{-i\theta}. \quad (6)$$

Let us illustrate this for $N=2$ by writing the four possible states in the form $|\uparrow\uparrow\rangle_d = |\uparrow\uparrow\rangle_f |0\rangle_{\theta}$, $|\uparrow\downarrow\rangle_d = |\uparrow\downarrow\rangle_f |0\rangle_{\theta}$, $|\downarrow\uparrow\rangle_d = |\downarrow\uparrow\rangle_f |1\rangle_{\theta}$, and $|\downarrow\downarrow\rangle_d = |\downarrow\downarrow\rangle_f |1\rangle_{\theta}$ and showing that this structure is preserved by $d_{\sigma}^{\dagger} = f_{\sigma}^{\dagger} e^{i\theta}$. Indeed,

$$|\uparrow\downarrow\rangle_d = d_{\uparrow}^{\dagger} |\downarrow\rangle_d = f_{\uparrow}^{\dagger} |\downarrow\rangle_f e^{+i\theta} |0\rangle_{\theta} = |\uparrow\downarrow\rangle_f |1\rangle_{\theta}. \quad (7)$$

The key advantage of the quantum rotor representation is that the original quartic interaction between fermions has been replaced in Eq. (3) by a simple kinetic term ($\hat{L}^2$) for the phase field.

B. Rotor representation of Anderson impurity models

We now turn to an $SU(N)$ -symmetric Anderson impurity model in which the atomic orbital is coupled to a conduction electron bath:

$$H = \sum_{\sigma} \epsilon_0 d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} + \frac{U}{2} \left[\sum_{\sigma} d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} - \frac{N}{2} \right]^2 + \sum_{k,\sigma} \epsilon_k c_{k,\sigma}^{\dagger} c_{k,\sigma} + \sum_{k,\sigma} V_k (c_{k,\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} + d_{\sigma}^{\dagger} c_{k,\sigma}). \quad (8)$$

Using the representation (6), we can rewrite this Hamiltonian in terms of the $(f_{\sigma}^{\dagger}, \theta)$ fields only:

$$H = \sum_{\sigma} \epsilon_0 f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} + \frac{U}{2} \hat{L}^2 + \sum_{k,\sigma} \epsilon_k c_{k,\sigma}^{\dagger} c_{k,\sigma} + \sum_{k,\sigma} V_k (c_{k,\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} e^{-i\theta} + f_{\sigma}^{\dagger} c_{k,\sigma} e^{i\theta}). \quad (9)$$

We then set up a functional integral formalism for the $f_{\sigma}^{\dagger}$ and θ degrees of freedom, and derive the action associated with Eq. (10). This is simply done by switching from phase and angular momentum operators $(\theta, \hat{L})$ to fields $(\theta, \partial_{\tau}\theta)$ depending on imaginary time $\tau \in [0, \beta]$. The action is constructed from $S \equiv \int_0^{\beta} d\tau [-iL \partial_{\tau}\theta + H + f_{\sigma}^{\dagger} \partial_{\tau} f_{\sigma}]$, and an integration over $\hat{L}$ is performed. It is also necessary to introduce a complex Lagrange multiplier h in order to implement the constraint $\hat{L} = \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} - N/2$. We note that, because of the charge conservation on the local impurity, h can be chosen to be independent of time, with $ih \in [0, 2\pi/\beta]$.

This leads to the following expression of the action:

$$S = \int_0^{\beta} d\tau \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} (\partial_{\tau} + \epsilon_0 - h) f_{\sigma} + \frac{(\partial_{\tau}\theta + ih)^2}{2U} + \frac{N}{2} h + \sum_{k,\sigma} [c_{k,\sigma}^{\dagger} (\partial_{\tau} + \epsilon_k) c_{k,\sigma} + V_k c_{k,\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} e^{-i\theta} + \text{H.c.}]. \quad (10)$$

We can recast this formula in a more compact form by introducing the hybridization function

$$\Delta(i\omega) \equiv \sum_k \frac{|V_k|^2}{i\omega - \epsilon_k} \quad (11)$$

and integrating out the conduction electron bath. This leads to the final form of the action of the $SU(N)$ Anderson impurity model in terms of the auxiliary fermions and phase field:

$$S = \int_0^{\beta} d\tau \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} (\partial_{\tau} + \epsilon_0 - h) f_{\sigma} + \frac{(\partial_{\tau}\theta + ih)^2}{2U} + \frac{N}{2} h + \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger}(\tau) f_{\sigma}(\tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')}. \quad (12)$$

C. Slave rotors, Hubbard-Stratonovich fields, and gauge transformations

In this section, we present an alternative derivation of the expression (12) of the action which does not rely on the concept of slave particles. This has the merit of giving a more explicit interpretation of the phase variable introduced above by relating it to a Hubbard-Stratonovich decoupling field. This section is, however, not essential to the rest of the paper and can be skipped upon first reading.

Let us start with the imaginary-time action of the Anderson impurity model in terms of the physical electron field for the impurity orbital:

SERGE FLORENS AND ANTOINE GEORGES

 PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0) d_\sigma + \frac{U}{2} \left[\sum_\sigma d_\sigma^\dagger d_\sigma - \frac{N}{2} \right]^2 + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau'). \quad (13)$$

Because we have chosen an $SU(N)$ -symmetric form for the Coulomb interaction, we can decouple it with only one bosonic Hubbard-Stratonovich field $\phi(\tau)$:

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0 + i\phi(\tau)) d_\sigma + \frac{\phi^2(\tau)}{2U} - i\frac{N}{2}\phi(\tau) + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau'). \quad (14)$$

Hence, a linear coupling of the field $\phi(\tau)$ to the fermions has been introduced. The idea is now to eliminate this linear coupling for all the Fourier modes of the ϕ field, except that corresponding to zero frequency: $\phi_0 \equiv \int_0^\beta \phi [2\pi]$. This can be achieved by performing the following gauge transformation:

$$d_\sigma^\dagger(\tau) = f_\sigma^\dagger(\tau) \exp\left(i \int_0^\tau \phi\right) \exp(-i\phi_0\tau/\beta). \quad (15)$$

The reason for the second phase factor in this expression is that it guarantees that the new fermion field $f_\sigma^\dagger$ also obeys antiperiodic boundary conditions in the path integral. It is easy to check that this change of variables does not provide any Jacobian, so that the action simply reads

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma f_\sigma^\dagger \left(\partial_\tau + \epsilon_0 + i\frac{\phi_0}{\beta} \right) f_\sigma + \frac{\phi_0^2}{2U} - i\frac{N}{2}\frac{\phi_0}{\beta} + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma f_\sigma^\dagger(\tau) f_\sigma(\tau') \times \exp\left(i \int_{\tau'}^\tau \left[\phi - \frac{\phi_0}{\beta} \right]\right). \quad (16)$$

We now set

$$\phi(\tau) = \frac{\partial\theta}{\partial\tau} + \frac{1}{\beta} \phi_0 \quad \left(\text{with } \phi_0 \equiv \int_0^\beta \phi [2\pi] \right) \quad (17)$$

and notice that the field $\theta(\tau)$ has the boundary condition $\theta(\beta) = \theta(0) + [2\pi]$. It therefore corresponds to an $O(2)$ quantum rotor, and the expression of the action finally reads

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma f_\sigma^\dagger \left(\partial_\tau + \epsilon_0 + i\frac{\phi_0}{\beta} \right) f_\sigma + \frac{\left(\partial_\tau \theta + \frac{\phi_0}{\beta} \right)^2}{2U} - i\frac{N}{2}\frac{\phi_0}{\beta} + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma f_\sigma^\dagger(\tau) f_\sigma(\tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')}. \quad (18)$$

This is exactly expression (12), with the identification $\phi_0/\beta \equiv ih$. This, together with Eq. (17), provides an explicit relation between the quantum rotor and Lagrange multiplier fields on one side, and the Hubbard-Stratonovich field conjugate to the total charge, on the other.

III. SIGMA-MODEL REPRESENTATION AND SOLUTION IN THE LIMIT OF MANY COMPONENTS

A. From quantum rotors to a σ model

Instead of using a phase field to represent the $O(2)$ degree of freedom, one can use a constrained (complex) bosonic field $X \equiv e^{i\theta}$ with

$$|X(\tau)|^2 = 1. \quad (19)$$

The action (12) can be rewritten in terms of this field, provided a Lagrange multiplier field $\lambda(\tau)$ is used to implement this constraint:

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma f_\sigma^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0 - h) f_\sigma + \frac{N}{2}h - \frac{h^2}{2U} + \int_0^\beta d\tau \frac{|\partial_\tau X|^2}{2U} + \frac{h}{2U} (X^* \partial_\tau X - \text{H.c.}) + \lambda(\tau) (|X|^2 - 1) + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma f_\sigma^\dagger(\tau) f_\sigma(\tau') X(\tau) X^*(\tau'). \quad (20)$$

Hence, the Anderson model has been written as a theory of auxiliary fermions coupled to a nonlinear $O(2)$ σ model, with a constraint (implemented by h) relating the fermions and the σ -model field $X(\tau)$.

A widely used limit in which σ models become solvable is the limit of a large number of components of the field. This motivates us to generalize Eq. (20) to a model with an $O(2M)$ symmetry. The bosonic field X is thus extended to an M -component complex field X_α ($\alpha = 1, \dots, M$) with $\sum_\alpha |X_\alpha|^2 = M$. The corresponding action reads

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma f_\sigma^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0 - h) f_\sigma + \frac{N}{2}h - M\frac{h^2}{2U} - M\lambda + \int_0^\beta d\tau \sum_\alpha \frac{|\partial_\tau X_\alpha|^2}{2U} + \frac{h}{2U} (X_\alpha^* \partial_\tau X_\alpha - \text{H.c.}) + \lambda |X_\alpha|^2 + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{1}{M} \Delta(\tau - \tau') \times \sum_{\sigma, \alpha} f_\sigma^\dagger(\tau) f_\sigma(\tau') X_\alpha(\tau) X_\alpha^*(\tau').$$

(18) Let us note that this action corresponds to the Hamiltonian

165111-4

$$H = \sum_{\sigma} \epsilon_0 f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} + \frac{U}{2M} \sum_{\alpha, \beta} \hat{L}_{\alpha, \beta}^2 + \sum_{k, \sigma \alpha} \epsilon_k c_{k, \sigma \alpha}^{\dagger} c_{k, \sigma \alpha} + \sum_{k, \sigma, \alpha} \frac{V_k}{\sqrt{M}} (c_{k, \sigma \alpha}^{\dagger} f_{\sigma} X_{\alpha}^{*} + f_{\sigma}^{\dagger} c_{k, \sigma \alpha} X_{\alpha}). \quad (21)$$

In this expression, $\hat{L}_{\alpha, \beta}$ denotes the angular momentum tensor associated with the X_{α} vector. The Hamiltonian (21) is a generalization of the $SU(N) \times O(2) = U(N)$ Anderson impurity model to an $SU(N) \times O(2M)$ model in which the total electronic charge is associated with a specific component of $\hat{L}$. It reduces to the usual Anderson model for $M=1$.

In the following, we consider the limit where both N and M become large, while keeping a fixed ratio N/M . We shall demonstrate that exact coupled integral equations can be derived in this limit, which determine the Green's functions of the fermionic and σ -model fields (and the physical electron Green's function as well). The fact that these coupled integral equations do correspond to the exact solution of a well-defined Hamiltonian model [Eq. (21)] guarantees that no unphysical features (like, e.g., violation of causality) arise in the solution. Naturally, the generalized Hamiltonian (21) is a formal extension of the Anderson impurity model of physical

interest. Extending the charge symmetry from $O(2)$ to $O(2M)$ is not entirely innocuous, even at the atomic level: as we shall see below, the energy levels of a single $O(2M)$ quantum rotor have multiple degeneracies and depend on the charge (angular momentum) quantum number in a way which does not faithfully mimic the $O(2)$ case. Nevertheless, the basic features defining the generalized model (a localized orbital subject to a Coulomb charging energy and coupled to an electron bath by hybridization) are similar to the original model of physical interest.

B. Integral equations

In this section, we derive coupled integral equations which become exact in the limit where *both* M and N are large with a fixed ratio:

$$\mathcal{N} \equiv \frac{N}{M} \quad (N, M \rightarrow \infty). \quad (22)$$

Following Ref. 12 (see also Ref. 11), the two-body interaction between the auxiliary fermions and the σ -model fields is decoupled using (bosonic) bilocal fields $Q(\tau, \tau')$ and $\bar{Q}(\tau, \tau')$ depending on two times. Hence, we consider the action

$$\begin{aligned} S = & \int_0^{\beta} d\tau \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} (\partial_{\tau} + \epsilon_0 - h) f_{\sigma} + \frac{N}{2} h - M \frac{h^2}{2U} - M\lambda + \int_0^{\beta} d\tau \sum_{\alpha} \frac{|\partial_{\tau} X_{\alpha}|^2}{2U} + \frac{h}{2U} (X_{\alpha}^{*} \partial_{\tau} X_{\alpha} - \text{H.c.}) + \lambda |X_{\alpha}|^2 \\ & + \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' M \frac{Q(\tau, \tau') \bar{Q}(\tau, \tau')}{\Delta(\tau - \tau')} - \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' \bar{Q}(\tau, \tau') \sum_{\alpha} X_{\alpha}(\tau) X_{\alpha}^{*}(\tau') \\ & + \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' Q(\tau, \tau') \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger}(\tau) f_{\sigma}(\tau'). \end{aligned} \quad (23)$$

In the limit (22), this action is controlled by a saddle point, at which the Lagrange multipliers take static expectation values h and λ , while the saddle-point values of the Q and $\bar{Q}$ fields are translation-invariant functions of time $Q(\tau - \tau')$ and $\bar{Q}(\tau - \tau')$.

Introducing the imaginary-time Green's functions of the auxiliary fermion and σ -model fields as

$$G_f(\tau) \equiv -\langle T_{\tau} f_{\sigma}(\tau) f_{\sigma}^{\dagger}(0) \rangle, \quad (24)$$

$$G_X(\tau) \equiv +\langle T_{\tau} X_{\alpha}(\tau) X_{\alpha}^{*}(0) \rangle, \quad (25)$$

we differentiate the effective action (23) with respect to $Q(\tau)$ and $\bar{Q}(\tau)$, which leads to the following saddle-point equations $\bar{Q}(\tau) = -\mathcal{N} \Delta(\tau) G_f(-\tau)$ and $Q(\tau) = \Delta(\tau) G_X(\tau)$. The functions $Q(i\omega_n)$ ($=\Sigma_f$) and $\bar{Q}^{*}(i\nu_n)$ ($=\Sigma_X$) define fermionic and bosonic self-energies:

$$G_f^{-1}(i\omega_n) = i\omega_n - \epsilon_0 + h - \Sigma_f(i\omega_n), \quad (26)$$

$$G_X^{-1}(i\nu_n) = \frac{\nu_n^2}{U} + \lambda - \frac{2ih\nu_n}{U} - \Sigma_X(i\nu_n), \quad (27)$$

where ω_n (ν_n) is a fermionic (bosonic) Matsubara frequency. The saddle-point equations read

$$\Sigma_X(\tau) = -\mathcal{N} \Delta(-\tau) G_f(\tau), \quad (28)$$

$$\Sigma_f(\tau) = \Delta(\tau) G_X(\tau), \quad (29)$$

together with the constraints associated with h and λ :

$$G_X(\tau=0) = 1, \quad (30)$$

$$\begin{aligned} G_f(\tau=0^{-}) &= \frac{1}{2} - \frac{2h}{\mathcal{N}U} \\ &+ \frac{1}{\mathcal{N}U} [\partial_{\tau} G_X(\tau=0^{-}) + \partial_{\tau} G_X(\tau=0^{+})]. \end{aligned} \quad (31)$$

SERGE FLORENS AND ANTOINE GEORGES

 PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)

There is a clear similarity between the structure of these coupled integral equations and the infinite- U NCA equations.⁹ We note also significant differences, such as the constraint equations. Furthermore, the finite value of the Coulomb repulsion U enters the bosonic propagator (27) in a quite novel manner.

The two key ingredients on which the present method are based is the use of a slave rotor representation of fermion operators and the use of integral equations for the frequency-dependent self-energies and Green's functions. For this reason, we shall denote the integral equations above under the name of "dynamical slave rotor" method in the following.

C. Some remarks

We make here some technical remarks concerning these integral equations.

First, we clarify how the interaction parameter U was scaled in order to obtain the DSR equations above. This issue is related to the manner in which the atomic limit ($\Delta=0$) is treated in this method. In the original O(2) atomic Hamiltonian (1), the charge gap between the ground state and the first excited state is $U/2$ at half-filling ($\epsilon_0=0$). In the DSR method, the charge gap is associated with the gap in the slave rotor spectrum. If the O(2M) generalization of Eq. (1) is written as in Eq. (21),

$$H_{int} = \frac{U}{2M} \sum_{\alpha,\beta} \hat{L}_{\alpha,\beta}^2, \quad (32)$$

the spectrum reads $E_l = U(l+2M-2)/(2M)$. As a result, the energy difference from the ground state to the first excited state is $E_1 - E_0 = U(2M-1)/(2M) \approx U$ at large M , whereas it is $U/2$ at $M=1$. In order to use the DSR method in practice as an approximate impurity solver, the parameter U should thus be normalized in a different way than in Eq. (21), so that the gap is kept equal to $U/2$ in the large- M limit as well. Technically this can be enforced by choosing the normalization

$$H'_{int} = \frac{U}{4M-2} \sum_{\alpha,\beta} \hat{L}_{\alpha,\beta}^2 \quad (33)$$

instead of Eq. (32). Note that this scaling coincides with Eq. (32) for $M=1$, but does yield $E_1 - E_0 = U/2$ for large M , as desired. This definition of U was actually used when writing the saddle-point integral equations (27), although we postponed the discussion of this point to the present section for reasons of simplicity.

Let us elaborate further on the accuracy of the DSR integral equations in the atomic limit. In Appendix A, we show that the physical electron spectral function obtained within DSR in the atomic limit coincides with the exact O(2) result at half-filling and at $T=0$. This is a nontrivial result, given the fact that the constraint is treated on average and the above remark on the spectrum. In contrast to the NCA, the DSR method (in its present form) is not based by construction on a strong-coupling expansion around the exact atomic spectrum, so that this is a crucial check for the applicability of this method in practice. In the context of DMFT, for ex-

ample, it is essential in order to describe correctly the Mott insulating state.⁷ However, the DSR integral equations fail to reproduce exactly the O(2) atomic limit off half-filling, as explained in Appendix A. Deviations become severe for too high dopings, as discussed in Sec. V E. This makes the present form of DSR applicable only for systems in the vicinity of half-filling.

We now discuss some general spectral properties of the DSR solver. From the representation of the physical electron field $d_\sigma^\dagger = f_\sigma^\dagger X$ and from the convention chosen for the pseudoparticle Green's functions (24) and (25), the one-electron physical Green's function is simply expressed as

$$G_d(\tau) = G_f(\tau) G_X(-\tau). \quad (34)$$

Therefore Eq. (30), combined with the fact that $f_\sigma^\dagger$ has a (-1) discontinuity at $\tau=0$ [which is obvious from Eq. (26)], shows that $d_\sigma^\dagger$ possesses also a (-1) jump at zero imaginary time. This ensures that the physical spectral weight is unity in our theory and thus that physical spectral function are correctly normalized. Because the DSR integral equations result from a controlled large- N, M limit, it also ensures that the physical self-energy always has the correct sign [i.e., $\text{Im} \Sigma_d(\omega + i0^+) < 0$]. This is *not* the case¹⁶ for the finite- U version of the NCA,¹⁰ which is constructed as a resummation of the strong-coupling expansion in the hybridization function $\Delta(\tau)$. (Strong-coupling resummations generically suffer from noncausality; see also Ref. 17 for an illustration.)

Finally, we comment on the noninteracting limit $U \rightarrow 0$. This is a major failure of the usual NCA, which limits its applicability in the weakly correlated regime. In the DSR formalism, this limit is *exact* as can be noticed from Eq. (27). Indeed, as U vanishes, only the zero-frequency component of $G_X(i\nu_n)$ survives, so that $G_X(\tau)$ simply becomes a constant. Because of the constraint (30), we get correctly $G_X(\tau) = 1$ at $U=0$. From Eqs. (29) and (34), this proves that $G_d(\tau)$ is the noninteracting Green's function:

$$G_d^{U=0}(i\omega_n) = \frac{1}{i\omega_n - \epsilon_0 - \Delta(i\omega_n)}. \quad (35)$$

We finally acknowledge that an alternative dynamical approximation to the finite- U Anderson model¹³ was recently developed as an extension of the NCA by Kroha and Wölfle (a conventional slave boson representation was used in this work). Much progress has been made following this method, but to the authors' knowledge, this technique has not yet been implemented in the context of DMFT (one of the reasons is its computational cost). By developing the DSR approximation, we pursue a rather complementary goal: the aim here is not to improve the low-energy singularities usually encountered with integral equations, but rather to have a fast and efficient solver which reproduces correctly the main features of the spectral functions and interpolates between weak and strong coupling. In that sense, it is very well adapted to the DMFT context.

IV. APPLICATION TO THE SINGLE-IMPURITY ANDERSON MODEL

We now discuss the application of the DSR in the simplest setting: that of a single impurity hybridized with a fixed bath of conduction electrons. For simplicity, we focus on the half-filled, particle-hole-symmetric case, which implies $\epsilon_0 = \hbar = 0$. The doped (or mixed valence) case will be addressed in the next section, in the context of DMFT.

As the strength of the Coulomb interaction U is increased from weak to strong coupling, two well-known effects are expected (see, e.g., Ref. 4). First, the width of the low-energy resonance is reduced from its noninteracting value $\Delta_0 \equiv |\Delta''(0)|$. As one enters the Kondo regime $\Delta_0 \ll U \ll \Lambda$ (with Λ the conduction electrons bandwidth), this width becomes a very small energy scale, of the order of the Kondo temperature:

$$T_K = \sqrt{2U\Delta_0} \exp[-\pi U/(8\Delta_0)]. \quad (36)$$

A (local) Fermi-liquid description applies, with quasiparticles having a large effective mass and small weight: $Z = m/m^* \sim T_K/\Delta_0$. The impurity spin is screened for $T < T_K$.

Second, the corresponding spectral weight is transferred to high energies, into ‘‘Hubbard bands’’ associated to the atomiclike transitions (adding or removing an electron into the half-filled impurity orbital), broadened by the hybridization to the conduction electron bath. The suppression of the low-energy spectral weight corresponds to the suppression of the charge fluctuations on the local orbital. These satellites are already visible at moderate values of the coupling U/Δ_0 . As temperature is increased from $T < T_K$ to $T > T_K$, the Kondo quasiparticle resonance is quickly destroyed, and the missing spectral weight is added to the Hubbard bands.

The aim of this section is to investigate whether the integral equations introduced in this paper reproduce these physical effects in a satisfactory manner.

A. Spectral functions

We have solved numerically these integral equations by iteration, both on the imaginary axis and for real frequencies. Working on the imaginary axis is technically much easier. A discretization of the interval $\tau \in [0, \beta]$ is used (with typically 8192 points and up to 32 768 for reaching the lowest temperatures), as well as fast fourier transforms for the Green’s functions. Searching by dichotomy for the saddle-point value of the Lagrange multiplier λ [Eq. (30)] is conveniently implemented at each step of the iterative procedure. Technical details about the analytic continuation of Eqs. (28)–(31) to real frequencies, as well as their numerical solution, are given in Appendix B.

In Fig. 1, we display our results for the impurity-orbital spectral function $\rho_d(\omega)$, at three different temperatures (the density of states of the conduction electron bath is chosen as a semicircle with half-width $\Lambda = 6$, the resonant level width is $\Delta_0 = 0.16$, and we take $U = 2$). The growth of the Kondo resonance as the temperature is lowered is clearly seen. The temperatures in Fig. 1 have been chosen such as to illustrate

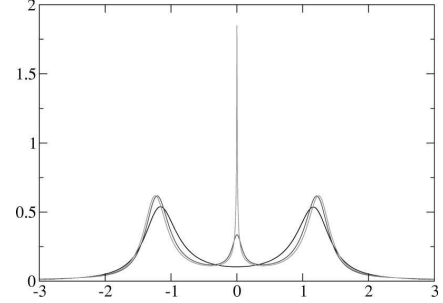


FIG. 1. d -level spectral function $\rho_d(\omega)$ for fixed $U=2$ and inverse temperatures $\beta=4, 20, 2000$, with the conduction electron bath described in the text.

three different regimes: for $T \gg T_K$, no resonance is seen and the spectral density displays a ‘‘pseudogap’’ separating the two high-energy bands; for $T \approx T_K$, transfer of spectral weight to low energy is seen, resulting in a fully developed Kondo resonance for $T \ll T_K$. We have not obtained an analytical determination of the Kondo temperature within the present scheme. In the case of NCA equations, it is possible to derive a set of differential equations in the limit of infinite bandwidth which greatly facilitates this. This procedure cannot be applied here, because of the form (27) of the boson propagator. Nevertheless, we checked that the numerical estimates of the width of the Kondo peak are indeed exponentially small in U as in formula (36); see Fig. 2. However, because U is normalized as in Eq. (33) (which gives the correct atomic limit), the prefactor inside the exponential appears to be twice too small.

In Fig. 3, we display the spectral function for a fixed low temperature and increasing values of U . The strong reduction of the Kondo scale (resonance width) upon increasing U is clear in this figure. We note that the high-energy peaks have a width which remains of order Δ_0 , independently of U , which is satisfactory. However, we also note that they are not peaked exactly at the atomic value $\pm U/2$, which might be an artifact of these integral equations. The shift is rather small, however.

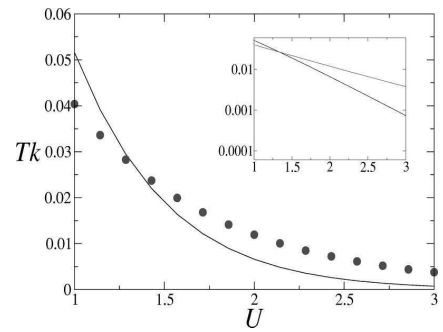


FIG. 2. Kondo temperature T_K from the exact formula (line) and from the numerical solution of the DSR equations (dots). Units of energy are such that $\Delta_0 = 0.16$.

SERGE FLORENS AND ANTOINE GEORGES

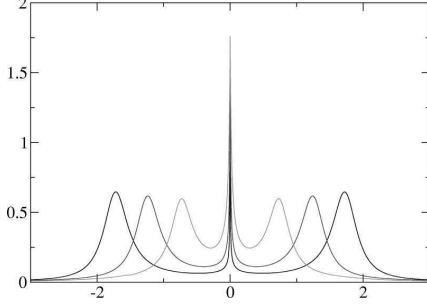
 PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)


FIG. 3. $\rho_d(\omega)$ at low temperature ($\beta=600$) and for increasing $U=1, 2, 3$.

Figure 4 illustrates how the high- and low-energy features in the d -level spectral functions are associated with corresponding features in the auxiliary particle spectral functions ρ_f and ρ_x . In particular, the σ -model boson (slave rotor) is entirely responsible for the Hubbard bands at high energy (as expected, since it describes charge fluctuations).

As stressed in the Introduction, an advantage of our scheme is that the d -level self-energy is always causal, even for small U or large doping. This is definitely an improvement as compared to the usual U -NCA approximation. This is illustrated by Fig. 5, from which it is also clear that Σ_d decreases (and eventually vanishes) as U goes to zero (for a more detailed discussion and comparison to the NCA, see Sec. III). However, it is also clear from this figure that the low-energy behavior of the self-energy is not consistent with Fermi-liquid theory. This is a generic drawback of NCA-like integral equation approaches, which we now discuss in more detail.

B. Low-energy behavior and Friedel sum rule

We discuss here the low-energy behavior of the integral equations (in the case of a featureless conduction electron bath), for both the d -level and auxiliary field Green's functions. As explained below, this low-energy behavior depends sensitively on the ratio $\mathcal{N}=N/M$ which is kept fixed in the

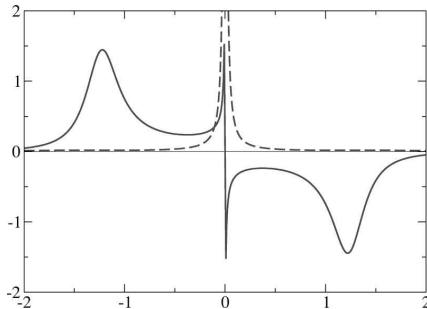


FIG. 4. Pseudoparticle spectral function at $U=2$ and $\beta=600$. The Kondo resonance is visible in $\rho_f(\omega)$, dashed curve, whereas $\rho_x(\omega)$ displays higher-energy features, solid curve.

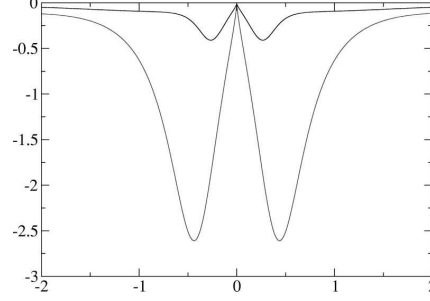


FIG. 5. Imaginary part of the physical self-energy on the real-frequency axis, for $U=0.5$ (upper curve) and $U=2$ (lower curve) at $\beta=600$.

limit considered in this paper. The calculations are detailed in Appendix C, where we establish the following.

(i) *Friedel sum rule.* The zero-frequency value of the d -level spectral function at $T=0$ is independent of U and reads

$$\rho_d(\omega=T=0) = \frac{-1}{\pi\Delta''(0)} \frac{\pi/2}{\mathcal{N}+1} \tan\left(\frac{\pi}{2} \frac{\mathcal{N}}{\mathcal{N}+1}\right). \quad (37)$$

This is to be contrasted with the exact value for the O(2) model ($M=1$), which is independent of N and reads

$$\rho_d^{\text{exact}}(\omega=T=0) = \frac{-1}{\pi\Delta''(0)} \quad (M=1, \text{ any } N). \quad (38)$$

This is the *Friedel sum rule*,^{4,18} which in this particle-hole-symmetric case simply follows from the Fermi-liquid requirement that the (inverse) lifetime $\Sigma_d''(\omega=0)$ should vanish at $T=0$ [since $G_d^{-1} = i\omega - \Delta(i\omega) - \Sigma_d(i\omega)$]. As a result, $\rho_d(0)$ is pinned at its noninteracting value. The integral equations discussed here yield a nonvanishing $\Sigma_d''(\omega=0)$ (albeit always negative in order to satisfy causality) and hence do not describe a Fermi-liquid at low energy. The result (37) is identical to that found in the NCA for $U=\infty$, but holds here for arbitrary U . There is actually no contradiction between this remark and the fact that our integral equations yield the exact spectral function in the $U \rightarrow 0$ limit. Indeed, the limit $U \rightarrow 0$ at finite T, ω does not commute with $\omega, T \rightarrow 0$ at finite U [in which Eq. (37) holds].

(ii) *Low-frequency behavior.* The auxiliary particle spectral functions have a low-frequency singularity characterized by exponents which depend continuously on $\mathcal{N}$ (as in the $U=\infty$ NCA): $\rho_f(\omega) \propto 1/\Sigma_f''(\omega) \propto 1/|\omega|^{\alpha_f}$, $\rho_x(\omega) \propto 1/\Sigma_x''(\omega) \propto \text{sgn}(\omega)/|\omega|^{\alpha_x}$, with $\alpha_f = 1 - \alpha_x = 1/(\mathcal{N}+1)$. These behaviors are characterized more precisely in Appendix C. A power-law behavior is also found for the physical self-energy $\Sigma_d''(\omega) - \Sigma_d''(0)$ at low frequency (as evident from Fig. 5).

Let us comment on the origin of these low-energy features, as well as on their consequences for practical uses of the present method.

First, it is clear from expression (21) that the Anderson impurity Hamiltonian generalized to $\text{SU}(N) \times \text{O}(2M)$ actu-

ally involves M channels of conduction electrons. Hence, the non-Fermi-liquid behavior found when solving the integral equations associated with the $N, M \rightarrow \infty$ limit simply follows from the fact that multichannel models lead to *overscreening* of the impurity spin and correspond to a non-Fermi-liquid fixed point. In that sense, these integral equations reproduce very accurately the expected low-energy physics, as previously studied for the simplest case of the Kondo model in Refs. 11 and 12.

Naturally, this means that the use of such integral equations to describe the one-channel (exactly screened) case becomes problematic in the low-energy region. In particular, the exact Friedel sum rule is violated, the d -level lifetime remains finite at low energy, and non-Fermi-liquid singularities are found. While the approach is reasonable in order to reproduce the overall features of the one-electron spectra, it should not be employed to calculate transport properties at low energy, for example. We note, however, that the deviation from the exact Friedel sum rule vanishes in the $\mathcal{N} \rightarrow \infty$ limit. This is expected from the fact that in this limit the number of channels (M) is small as compared to orbital degeneracy (N). The violation of the sum rule remains rather small even for reasonable values of $\mathcal{N}$. This parameter can actually be used as an adjustable parameter when using the present method as an approximate impurity solver. There is no fundamental reason for which $\mathcal{N}=N$ should provide the best approximate description of the spectral functions of the one-channel case. We shall use this possibility when applying this method in the DMFT context in the next section: there, we choose $\mathcal{N}=3$ in order to adjust to the known critical value of U for a single orbital. We also used this value in the calculations reported above. The zero-frequency value of the spectral density is thus $\rho_d(0) \approx 1.85$, while the Friedel sum rule would yield $\rho_d(0) \approx 1.95$ (cf. Fig. 3). Hence the violation of the sum rule is a small effect (of the order of 5%), comparable to the one found with “numerically exact” solvers, due to discretization errors.¹⁹ Also, we point out that the pinning of $\rho_d(0)$ at a value independent of U (albeit not that of the Friedel sum rule) is an important aspect of the present method, which will prove to be crucial in the context of DMFT in order to recover the correct scenario for the Mott transition.

Finally, we emphasize that increasing the parameter $\mathcal{N}$ also corresponds to increasing the orbital degeneracy of the impurity level. This will be studied in more details in Sec. V D. In particular, we shall see that correlation effects become weaker as $\mathcal{N}$ is increased (for a given value of U), due to enhanced orbital fluctuations.

V. APPLICATIONS TO DYNAMICAL MEAN-FIELD THEORY AND THE MOTT TRANSITION

A. One-orbital case: Mott transition, phase diagram

Dynamical mean-field theory has led to significant progress in our understanding of the physics of a correlated metal close to the Mott transition.² The detailed description of this transition itself within DMFT is now well established.^{2,7,15,19–22} In this section, we use these established results as a benchmark and test the applicability of the

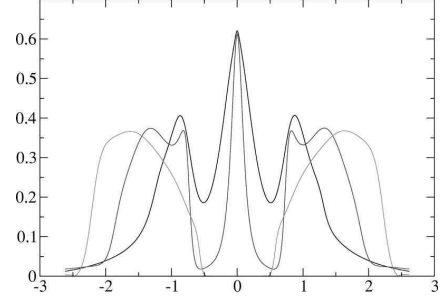


FIG. 6. Local spectral function at $\beta=40$ and $U=1,2,3$ for the half-filled Hubbard model within DMFT, as obtained with the DSR solver.

method introduced in this paper in the context of DMFT, with very encouraging results. As explained above, this is particularly relevant in view of the recent applications of DMFT to electronic structure calculations of correlated solids,⁵ which call for efficient multiorbital impurity solvers.

As is well known,^{2,3,6} DMFT maps a lattice Hamiltonian onto a self-consistent quantum impurity model. We discuss first the half-filled Hubbard model and address later the doped case. We then have to solve a particle-hole-symmetric Anderson impurity model:

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger \partial_\tau d_\sigma + \frac{U}{2} \left[\sum_\sigma d_\sigma^\dagger d_\sigma - 1 \right]^2 + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau'), \quad (39)$$

subject to the self-consistency condition

$$\Delta(\tau) = t^2 G_d(\tau). \quad (40)$$

In this expression, a semicircular density of states with half-bandwidth $D=2t$ has been considered, corresponding to an infinite-connectivity Bethe lattice ($z=\infty$) with hopping $t_{ij} = t/\sqrt{z}$. In the following, we shall generally express all energies in units of D ($D=1$).

In practice, one must iterate numerically the “DMFT loop”: $\Delta(\tau) \rightarrow G_d(\tau) \rightarrow \Delta(\tau)_{\text{new}} = t^2 G_d$, using some “impurity solver.” Here, we make use of the integral equations (28)–(31). The hybridization function $\Delta(\tau)$ being determined by the self-consistency condition (40), there are only two free parameters, the local Coulomb repulsion U and the temperature T (normalized by D).

We display in Fig. 6 the spectral functions obtained at low temperature, for increasing values of U , and in Fig. 7 the corresponding phase diagram. The value of the parameter $\mathcal{N}$ has been adapted to the description of the one-orbital case (see below). The most important point is that we find a *coexistence region* at low enough temperature: for a range of couplings $U_{c1}(T) \leq U \leq U_{c2}(T)$, both a metallic solution and an insulating solution of the (paramagnetic) DMFT equations exist. The Mott transition is thus first order at finite temperatures. This is in agreement with the results established for

SERGE FLORENS AND ANTOINE GEORGES

PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)

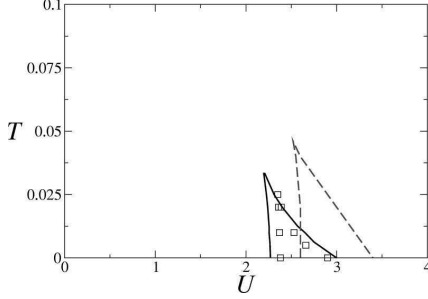


FIG. 7. Single-orbital (paramagnetic) phase diagram at half-filling. Squares indicate the exact diagonalization (ED) result, the DSR result is the solid line, and IPT the dashed line.

this problem by solving the DMFT equations with controlled numerical methods,^{19,21} as well as with analytical results.^{20,22} In particular, the spectral functions that we obtain (Fig. 6) display the well-known separation of energy scales found within DMFT: there is a gradual narrowing of the quasiparticle peak, together with a preformed Mott gap at the transition. In the next section, we compare these spectral functions to those obtained using other approximate solvers. As pointed out there, despite some formal similarity in the method, it is well known that the standard U -NCA does not reproduce correctly this separation of energy scales close to the transition.²³

Let us explain how the parameter $\mathcal{N}$ has been chosen in these calculations. As demonstrated below, the values of the critical couplings U_{c1} and U_{c2} (and hence the whole phase diagram and coexistence window) strongly depend on the value of this parameter. This is expected, since $\mathcal{N}$ is a measure of orbital degeneracy. What has been done in the calculations displayed above is to choose $\mathcal{N}$ in such a way that the known value²⁰ $U_{c2}(T=0) \approx 2.9$ of the critical coupling, at which the $T=0$ metallic solution disappears in the single-orbital case, is accurately reproduced. We found that this requires $\mathcal{N} \approx 3$ (note that $\mathcal{N}/M=2$ in the one-orbital case, so that the best agreement is not found by a naive application of the large $\mathcal{N}, M$ limit). This value being fixed, we find a critical coupling $U_{c1}(T=0) \approx 2.3$ in good agreement with the value from (adaptive) exact diagonalizations $U_{c1} \approx 2.4$. The whole domain of coexistence in the (U, T) plane is also in good agreement with established results (in particular we find the critical end point at $T_c \approx 1/30$, while QMC yields $T_c \approx 1/40$). These are very stringent tests of the applicability of the present method, since we have allowed ourselves to use only one adjustable parameter ($\mathcal{N}$). In Sec. V D, we study how the Mott transition depends on the number of orbitals, which further validates the procedure followed here.

B. Comparison to other impurity solvers: Spectral functions

Let us now compare the spectral functions obtained by the present method with other impurity solvers commonly used for solving the DMFT equations. We start with the iterated perturbation theory approximation and the exact diagonalization method. Both methods have played a major role in the

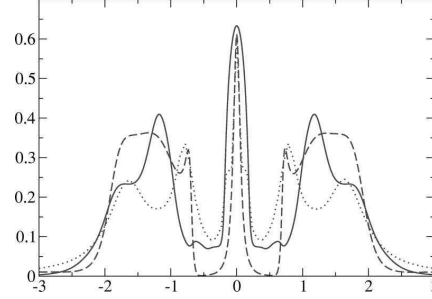


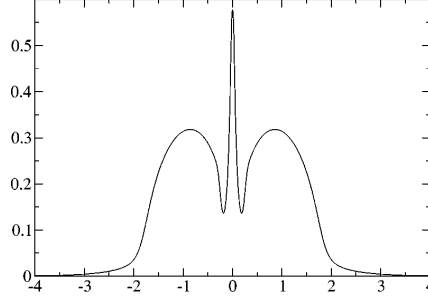
FIG. 8. Comparison between DSR (dashed line), IPT (solid line), and ED (dotted line) at $U=2.4$ and $\beta=60$.

early developments of the DMFT approach to the Mott transition.⁷ A comparison of the spectral functions obtained by the present method to those obtained with IPT and ED is displayed in Fig. 8, for a value of U corresponding to a correlated metal close to the transition.

The overall shape and characteristic features of the spectral function are quite similar for the three methods. A narrow quasiparticle peak is formed, together with Hubbard bands, and there is a clear separation of energy scales between the width of the central peak (related to the quasiparticle weight) and the “preformed” Mott (pseudo)gap associated with the Hubbard bands: this is a distinguishing aspect of DMFT. It is crucial for an approximate solver to reproduce this separation of energy scales in order to yield a correct description of the Mott transition and phase diagram.

There are of course some differences between the three methods, on which we now comment. First, we note that the IPT approximation has a somewhat larger quasiparticle bandwidth. This is because the transition point U_{c2} is overestimated within IPT (cf. Fig. 7), so that a more fair comparison should perhaps be made at fixed U/U_{c2} . It is true, however, that the DSR method has a tendency to underestimate the quasiparticle bandwidth and particularly at smaller values of U . Accordingly, the Hubbard bands have a somewhat too large spectral weight, but are correctly located in first approximation. The detailed shape of the Hubbard bands is not very accurately known, in any case. (The ED method involves a broadening of the δ -function peaks obtained by diagonalizing the impurity Hamiltonian with a limited number of effective orbitals, so that the high-energy behavior is not very accurate on the real axis. This is also true, actually, of the more sophisticated numerical renormalization group.) We emphasize that, since the DSR method does not have the correct low-frequency Fermi-liquid behavior, the quasiparticle bandwidth should be interpreted as the width of the central peak in $\rho_d(\omega)$ (while the quasiparticle weight Z cannot be defined formally).

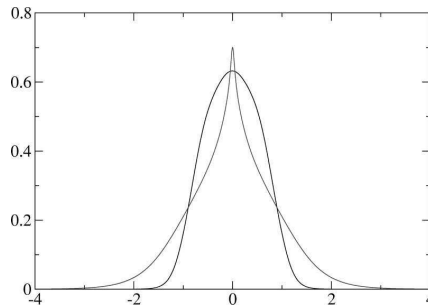
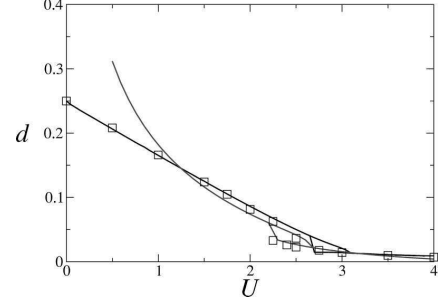
In Figs. 9 and 10, we display the spectral functions obtained by using the NCA method (extended at finite U in the simplest manner). It is clear that the U -NCA underestimates considerably the quasiparticle bandwidth (and thus yields a Mott transition at a rather low value of the coupling). This is not very surprising, since this method is based on a strong-coupling expansion around the atomic limit, and one could


 FIG. 9. U -NCA spectral function for $U = 1.5$ at low temperature.

think again of a comparison for fixed U/U_c . More importantly, the U -NCA misses the important separation of energy scales between the central peak and the Mott gap. As a result, it does not reproduce correctly the phase diagram for the Mott transition within DMFT (in particular regarding coexistence). A related key observation is that the U -NCA does not have the correct weak-coupling (small- U) limit. To illustrate this point, we display in Fig. 10 the U -NCA and DSR spectral functions for a tiny value of the interaction $U/D = 0.1$: the DSR result is shown to approach correctly the semicircular shape of the noninteracting density of states, while the U -NCA displays a characteristic inverted V shape: in this regime the violation of the Friedel sum rule becomes large and the negative lifetime pathology is encountered within U -NCA. In contrast, the DSR yields a pinning of the spectral density at a U -independent value and does not lead to a violation of causality. It should be emphasized, however, that, even though it yields the exact $U = 0$ density of states at $T = 0$, the DSR method is not quantitatively very accurate in the weak-coupling regime.

C. Double occupancy

Finally, we demonstrate that two-particle correlators in the charge sector can also be reliably studied with the DSR method, taking the fraction of doubly occupied sites $d_{\uparrow\downarrow} \equiv \langle n_{\uparrow} n_{\downarrow} \rangle$ as an example.


 FIG. 10. Results for $U = 0.1$ showing how U -NCA overshoots the Friedel's sum rule. The slave rotor method is correctly converging towards the free density of states (semicircular).

 FIG. 11. Double occupancy at $\beta = 80$ as a function of U . The ED result is indicated with squares. DSR overshoots the exact result on the left, whereas IPT is slightly displaced to the right.

Using the constraint (4), we calculate the connected charge susceptibility in the following manner:

$$\begin{aligned} \chi_c(\tau) &\equiv \left\langle \sum_{\sigma} \left(n_{\sigma}(\tau) - \frac{1}{2} \right) \sum_{\sigma'} \left(n_{\sigma'}(0) - \frac{1}{2} \right) \right\rangle \\ &= \langle \hat{L}(\tau) \hat{L}(0) \rangle = \frac{1}{U^2} \langle \partial_{\tau} \theta(\tau) \partial_{\tau} \theta(0) \rangle \\ &= \frac{2}{U^2} \{ G_X(\tau) \partial_{\tau}^2 G_X(\tau) + U \delta(\tau) - [\partial_{\tau} G_X(\tau)]^2 \}. \end{aligned} \quad (41)$$

The double occupancy is obtained by taking the equal-time value

$$\chi_c(\tau=0) = 2 \langle n_{\uparrow} n_{\downarrow} \rangle = 2 d_{\uparrow\downarrow}. \quad (42)$$

In Fig. 11, we plot the double occupancy obtained in that manner, in comparison to the ED and IPT results. Within ED, $d_{\uparrow\downarrow}$ is calculated directly from the charge correlator. Within IPT, $\chi_c(\tau)$ is not approximated very reliably,²⁴ but the double occupancy can be accurately calculated by taking a derivative of the internal energy with respect to U .

Figure 11 demonstrates that the DSR method is very accurate in the Mott transition region and in the insulator. In particular, the hysteretic behavior is well reproduced. In the weak-coupling regime, however, the approximation deteriorates. This issue actually depends on the quantity: the physical Green's function has the correct limit $U \rightarrow 0$, as emphasized above, but this is not true for the charge susceptibility (hence for $d_{\uparrow\downarrow}$). The mathematical reason is that the constraint (4) is crucial for writing Eq. (41), but this constraint is only treated on average within our method. This shows the inherent limitations of slave boson techniques for evaluating two-particle properties. The frequency dependence of two-particle correlators will be dealt with in a forthcoming publication.

SERGE FLORENS AND ANTOINE GEORGES

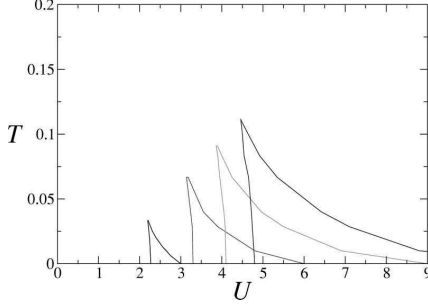
 PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)


FIG. 12. Instability lines $U_{c1}(T)$, $U_{c2}(T)$ and coexistence region for one, two, three, and four orbitals ($N=2, 4, 6, 8$) as obtained by DMFT (DSR solver).

D. Multiorbital effects

In this section, we apply the DSR method to study the dependence of the Mott transition on orbital degeneracy N . We emphasize that there are at this stage very few numerical methods which can reliably handle the multiorbital case, especially when N becomes large. Multiorbital extensions of IPT have been studied,⁸ but the results are much less satisfactory than in the one-orbital case. The ED method is severely limited by the exponential growth of the size of the Hilbert space. The Mott transition has been studied in the multiorbital case using the QMC approach, with a recent study²⁵ going up to $N=8$ (4 orbitals with spin). Furthermore, we have recently obtained¹⁵ some analytical results on the values of the critical couplings in the limit of large N . Those, together with the QMC results, can be used as a benchmark of the DSR approximation presented here. As explained above, a value of $N_{N=2} \approx 3$ was found to describe best the single-orbital case ($N=2$). Hence, upon increasing N , we choose the parameter N such that $N_N/N_{N=2} = N/2$. However, for N large enough, it might be more accurate to use the naive value $N_N = N$.

In Fig. 12, we display the coexistence region in the (U, T) plane for increasing values of N , as obtained with DSR. The values of the critical interactions grow with N . A fit of the transition lines $U_{c1}(T)$ (where the insulator disappears) and $U_{c2}(T)$ (where the metal disappears) yields

$$U_{c1}(N, T) = A_1(T) \sqrt{N}, \quad (43)$$

$$U_{c2}(N, T) = A_2(T) N. \quad (44)$$

These results are in good accordance with both the QMC data,²⁵ and the exact results established in Ref. 15. When increasing the number of orbitals, the coexistence region widens and the critical temperature associated with the end point of the Mott transition line also increases.

We display in Fig. 13 the DSR result for the spectral function for $N=2$ and $N=4$, at a fixed value of U and T . Two main effects should be noted. First, correlations effects in the metal become weaker as N is increased (for a fixed U), as clear, e.g., from the increase of the quasiparticle bandwidth. This is due to increasing orbital fluctuations. Sec-

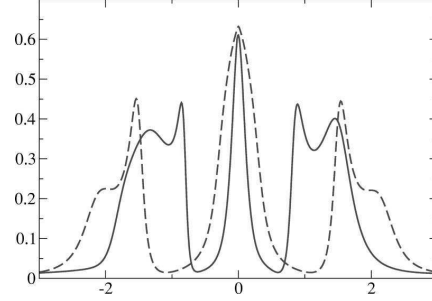


FIG. 13. Spectral function at $U=2$, $\beta=60$ and for one (solid line) and two orbitals (dashed line).

ond, the Hubbard bands also shift towards larger energies, an effect which can be understood in the way atomic states broadens in the insulator.²⁶

To conclude this section, we have found that the DSR yields quite satisfactory results when used in the DMFT context for multiorbital models. In the future, we plan to use this method in the context of realistic electronic structure calculations combined with DMFT, in situations where “numerically exact” solvers (e.g., QMC) become prohibitively heavy. There are, however, some limitations to the use of DSR (at least in the present version of the approach), which are encountered when the occupancy is not close to $N/2$. We examine this issue in the next section.

E. Effects of doping

Up to now, we studied the half-filled problem (i.e., containing exactly $N/2$ electrons), with exact particle-hole symmetry. In that case, $\epsilon_0 \equiv \epsilon_d + U/2 = 0$ and the Lagrange multiplier h enforcing the constraint (31) could be set to $h=0$. In realistic cases, particle-hole symmetry will be broken (so that $\epsilon_0 \neq 0$), and we need to consider fillings different from $N/2$. Hence, the Lagrange multiplier h must be determined in order to fulfill Eq. (31), which we rewrite more explicitly as

$$n_f = \frac{1}{2} - \frac{2h}{N\bar{U}} + \frac{1}{N\bar{U}} \frac{1}{\beta} \sum_n \frac{-i\nu_n(e^{i\nu_n 0^+} + e^{i\nu_n 0^-})}{\nu_n^2/U + \lambda - 2ih\nu_n/U - \sum_X(i\nu_n)}. \quad (45)$$

In this expression, $n_f = (1/N) \sum_\sigma \langle f_\sigma^\dagger f_\sigma \rangle = (1/N) \sum_\sigma \langle d_\sigma^\dagger d_\sigma \rangle$ is the average occupancy per orbital flavor. [Note that the numbers of auxiliary fermions and physical fermions coincide, as clear from Eq. (34).] Here n_f is related to the d -level position (or chemical potential, in the DMFT context) by

$$n_f = \frac{1}{\beta} \sum_n \frac{e^{i\omega_n 0^+}}{i\omega_n - \epsilon_0 + h - \sum_f(i\omega_n)}. \quad (46)$$

We display in Fig. 14 the spectral function obtained with the DSR solver when doping the Mott insulator away from half-filling. A critical value of the chemical potential (i.e., of ϵ_0) is required to enter the metallic state. The spectral function displays the three expected features: lower and upper Hubbard bands, as well as a quasiparticle peak (which, in

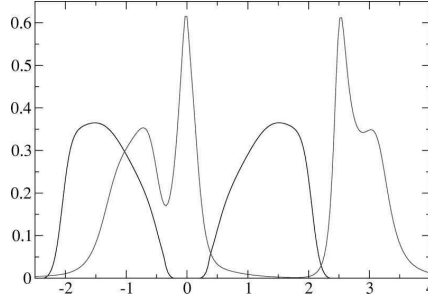


FIG. 14. Doping the insulator ($U=3$ and $\beta=60$) with $\epsilon_0=0,1$ (corresponding to $n_f=0.5, 0.4$, respectively).

this case where the doping is rather large, is located almost at the top of the lower Hubbard band). However, it is immediately apparent from this figure that the DSR method in the doped case overestimates the spectral weight of the upper Hubbard band. This can be confirmed by a comparison to other solvers (e.g., ED). Note that the energy scale below which a causality violation appears within the U -NCA becomes rapidly large as the system is doped, while no such violation occurs within DSR.

The DSR method encounters severe limitations however as the total occupancy becomes very different from $N/2$. This is best understood by studying the dependence of the occupancy upon ϵ_0 , in the atomic limit. As explained in Appendix. A, the use of σ -model variables X (in the large- M limit) results in a poor description of the n_f vs ϵ_0 dependence (“Coulomb staircase”). As a result, it is not possible to describe the Mott transitions occurring in the multiorbital model at integer fillings different from $N/2$ using the DSR approximation. It should be emphasized, however, that this pathology is only due to the approximation of the $O(2)$ quantum rotor $e^{i\theta}$ by a $O(M)$ σ -model field. A perfect description of the Coulomb staircase is found for all fillings when treating the constraint (4) on average while keeping a true quantum rotor.²⁷ Hence, it seems feasible to overcome this problem and extend the practical use of the (dynamical) slave rotor approach to all fillings. We intend to address this issue in a future work.

VI. CONCLUSION

We conclude by summarizing the strong points as well as the limitations of the new quantum impurity solver introduced in this paper, as well as possible extensions and applications.

On the positive side, the DSR method provides an interpolating scheme between the weak coupling and atomic limits (at half-filling). It is also free of some of the pathologies encountered in the simplest finite- U extensions of NCA (negative lifetimes at low temperature). When applied in the context of DMFT, it is able to reproduce many of the qualitatively important features associated with the Mott transition, such as coexisting insulating and metallic solutions and the existence of two energy scales in the DMFT description of a correlated metal (the quasiparticle coherence bandwidth

and the “preformed gap”). Hence the DSR solver is quite useful in the DMFT context, at a low computational cost, and might be applicable to electronic structure calculations for systems close to half-filling when the orbital degeneracy becomes large. To incorporate more realistic modeling, one can introduce different energy levels for each correlated orbital, while the extension to nonsymmetric Coulomb interactions (such as the Hund’s coupling) may require some additional work.

The DSR method does not reproduce Fermi-liquid behavior at low energy, however, which makes it inadequate to address physical properties in the very-low-energy regime (as is also the case with the NCA). The main limitation, however, is encountered when departing from half-filling (i.e., from $N/2$ electrons in an N -fold degenerate orbital). While the DSR approximation can be used at small dopings, it fails to reproduce the correct atomic limit when the occupancy differs significantly from $N/2$ (and in particular cannot deal with the Mott transition at other integer fillings in the multiorbital case). We would like to emphasize, however, that this results from extending the slave rotor variable to a field with a large number of components. It is possible to improve this feature of the DSR method by dealing directly with an $O(2)$ phase variable, which does reproduce accurately the atomic limit even when the constraint is treated at the mean-field level. We intend to address this issue in a future work. Another possible direction is to examine systematic corrections beyond the saddle-point approximation in the large- N, M expansion.

Finally, we would like to outline some other possible applications of the slave rotor representation introduced in this paper (Sec. II). This representation is both physically natural and economical. In systems with strong Coulomb interactions, the phase variable dual to the local charge is an important collective field. Promoting this single field to the status of a slave particle avoids the redundancies of the usual slave boson representations. In forthcoming publications, we intend to use this representation for (i) constructing impurity solvers in the context of *extended* DMFT,²⁹ in which the frequency-dependent charge correlation function must be calculated,²⁸ (ii) constructing mean-field theories of *lattice* models of correlated electrons (e.g., the Hubbard model),²⁷ and (iii) dealing with quantum effects on the Coulomb blockade in mesoscopic systems.

ACKNOWLEDGMENTS

We are grateful to B. Amadon and S. Biermann for sharing with us their QMC results on the multiorbital Hubbard model and to T. Pruschke and P. Lombardo for sharing with us their expertise of the NCA method. We also acknowledge discussions with G. Kotliar (thanks to CNRS funding under Contract No. PICS-1062) and with H.R. Krishnamurthy (thanks to IFCPAR Contract No. 2404-1), as well as with M. Devoret and D. Esteve.

APPENDIX A: THE ATOMIC LIMIT

In this appendix we prove the claim that the atomic limit of the model is exact at half-filling and at zero temperature

SERGE FLORENS AND ANTOINE GEORGES

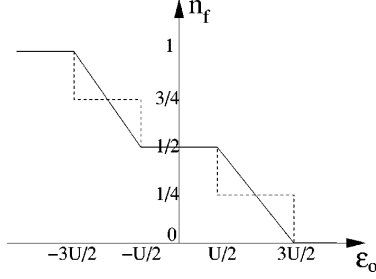
 PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)


FIG. 15. Impurity occupancy in function of the d -level position in the rotor description (solid curve) and the exact result (dotted curve), in the two-orbital case.

[at finite temperature, deviations from the exact result are of order $\exp(-\beta U)$ and therefore negligible for practical purposes]. To do this, we first extract the values of the mean-field parameters λ and h from the saddle-point equations at zero temperature and $\Delta(\tau) \equiv 0$:

$$1 = \int \frac{d\nu}{2\pi} \frac{1}{\nu^2 \frac{1}{U + \lambda + \frac{2ih\nu}{U}}},$$

$$\theta(h - \epsilon_0) = \frac{1}{2} - \frac{2h}{NU} + \frac{4h}{NU^2} \int \frac{d\nu}{2\pi} \frac{\nu^2}{\left(\frac{\nu^2}{U} + \lambda\right)^2 + \left(\frac{2h\nu}{U}\right)^2}. \quad (\text{A1})$$

Performing the integrals shows that $\lambda = (U^2 - 4h^2)/(4U)$ and $\theta(h - \epsilon_0) = 1/2$, so that $h = \epsilon_0$. If $|\epsilon_0| > U/2$, the equations lead actually to a solution with an empty or full valence, which we show in Fig. 15.

We can now compute the physical Green's function $G_d(\tau) = G_f(\tau)G_X(-\tau)$ from the pseudopropagators $G_f(i\omega_n) = 1/(i\omega_n)$ and

$$G_X(i\nu_n) = \frac{1}{\nu_n^2/U + (U/4 - \epsilon_0^2/U) - 2i\epsilon_0\nu_n/U} \\ = \frac{-1}{i\nu_n + \epsilon_0 - U/2} + \frac{1}{i\nu_n + \epsilon_0 + U/2}. \quad (\text{A2})$$

Performing the convolution in imaginary frequency and taking the limit $T=0$ leads to

$$G_d(i\omega_n) = \frac{1}{\beta} \sum_{i\nu_n} G_X(i\nu_n)G_f(i\omega_n + i\nu_n) \quad (\text{A3})$$

$$= \frac{1/2}{i\omega_n - \epsilon_0 + U/2} + \frac{1/2}{i\omega_n - \epsilon_0 - U/2}. \quad (\text{A4})$$

Because $\epsilon_0 = -\mu + U/2$, this is the correct atomic limit of the single-band model (at half-filling). The result for the empty or full orbital, is however, not accurate, as shown in

Fig. 15. This discrepancy with the correct result (even for one orbital) finds its root in the large M treatment of the slave rotor X .

APPENDIX B: NUMERICAL SOLUTION OF THE REAL-TIME EQUATIONS

Here we show how the saddle-point equations (28)–(31) can be analytically continued along the real axis. We start with $\Sigma_X(\tau) = -\mathcal{N}\Delta(\tau)G_f(-\tau)$, which can be first Fourier transformed into

$$\Sigma_X(i\nu_n) = \int_0^\beta d\tau \Sigma_X(\tau)e^{i\nu_n\tau} = \\ -\mathcal{N} \int \frac{d\epsilon_1}{\pi} G_f''(\epsilon_1) \int \frac{d\epsilon_2}{\pi} \Delta''(\epsilon_2) \frac{n_F(\epsilon_1) - n_F(\epsilon_2)}{i\nu_n + \epsilon_1 - \epsilon_2}, \quad (\text{B1})$$

where we used the spectral representation

$$G(z) = - \int \frac{d\omega}{\pi} \frac{G''(\omega)}{z - \omega} \quad (\text{B2})$$

for each Green's function. The notation here is quite standard: $G''(\epsilon) \equiv \text{Im } G(\epsilon + i0^+)$, $n_F(\epsilon)$ is the Fermi factor, and $n_B(\epsilon)$ denotes the Bose factor.

It is then immediate to continue $i\nu_n \rightarrow \nu + i0^+$ in Eq. (B1), and using again the spectral decomposition (B2), we derive an equation between retarded quantities:

$$\Sigma_X(\nu) = -\mathcal{N} \int \frac{d\epsilon}{\pi} G_f''(\epsilon)n_F(\epsilon)\Delta(\epsilon + \nu) \\ - \mathcal{N} \int \frac{d\epsilon}{\pi} \Delta''(\epsilon)n_F(\epsilon)G_f(\epsilon - \nu). \quad (\text{B3})$$

A calculation along the same lines for the fermionic self-energy $\Sigma_f(\tau) = \Delta(\tau)G_X(\tau)$ leads to

$$\Sigma_f(\omega) = - \int \frac{d\epsilon}{\pi} G_X''(\epsilon)n_B(\epsilon)\Delta(\omega - \epsilon) \\ - \int \frac{d\epsilon}{\pi} \Delta''(\epsilon)n_F(\epsilon)G_X(\omega - \epsilon). \quad (\text{B4})$$

The numerical implementation is then straightforward because Eqs. (B3) and (B4) can each be expressed as the convolution product of two quantities, so that they can be calculated rapidly using the fast Fourier transform (FFT). The algorithm is looped back using the Dyson equations (for real frequency)

$$G_f^{-1}(\omega) = \omega - \epsilon_0 + h - \Sigma_f(\omega), \quad (\text{B5})$$

$$G_X^{-1}(\nu) = -\frac{\nu^2}{U} + \lambda + \frac{2h\nu}{U} - \Sigma_X(\nu). \quad (\text{B6})$$

At each iteration, λ and h are determined using a bisection on Eqs. (30) and (31), which can be properly expressed in terms of retarded Green's functions:

$$1 = \int \frac{d\epsilon}{\pi} G_X''(\epsilon) n_B(\epsilon), \quad (\text{B7})$$

$$n_f = \frac{1}{2} - \frac{2h}{\mathcal{N}U} - \frac{2}{\mathcal{N}U} \int \frac{d\epsilon}{\pi} G_X''(\epsilon) \epsilon n_B(\epsilon), \quad (\text{B8})$$

where n_f , the average number of physical fermions, is

$$n_f = G_f(\tau=0^-) = - \int \frac{d\epsilon}{\pi} G_f''(\epsilon) n_F(\epsilon). \quad (\text{B9})$$

We note here that solving these real-time integral equations can be quite difficult deep in the Kondo regime of the Anderson model or very close to the Mott transition for the full DMFT equations. The reason is that $G_f(\omega)$ and $G_X(\omega)$ develop low-energy singularities (this is analytically shown in the next appendix), which make the numerical resolution very unprecise if one uses the FFT. In that case, it is necessary to introduce a logarithmic mesh of frequency (losing the benefit of the FFT speed, but increasing the accuracy) or to perform a Padé extrapolation of the imaginary-time solution.

APPENDIX C: FRIEDEL'S SUM RULE

We present here for completeness the derivation of the slave rotor Friedel's sum rule, equation (37), at half-filling. The idea, motivated by the numerical analysis as well as theoretical arguments,^{12,30} is that the pseudoparticles develop low-frequency singularities at zero temperature:

$$G_f''(\omega) = A_f |\omega|^{-\alpha_f}, \quad (\text{C1})$$

$$G_X''(\omega) = A_X |\omega|^{-\alpha_X} \text{sgn}(\omega). \quad (\text{C2})$$

Using the spectral representation

$$G(\tau) = \int_0^{+\infty} \frac{d\omega}{\pi} e^{-\omega\tau} G''(\omega), \quad (\text{C3})$$

we deduce the long-time behavior of the Green's functions [we denote by $\Gamma(z)$ the gamma function]:

$$G_f(\tau) = \frac{A_f \Gamma(1-\alpha_f)}{\pi} \frac{\text{sgn}(\tau)}{|\tau|^{1-\alpha_f}}, \quad (\text{C4})$$

$$G_X(\tau) = \frac{A_X \Gamma(1-\alpha_X)}{\pi} \frac{1}{|\tau|^{1-\alpha_X}}. \quad (\text{C5})$$

We have similarly

$$\Delta(\tau) = \frac{\Delta''(0)}{\pi\tau} \quad (\text{C6})$$

if one assumes a regular bath density of states at zero frequency. The previous expressions allow to extract the long-time behavior of the pseudo-self-energies [using the saddle-point equations (28) and (29)]:

$$\Sigma_X(\tau) = \frac{\mathcal{N} A_f \Gamma(1-\alpha_f)}{\pi^2} \frac{\Delta''(0)}{|\tau|^{2-\alpha_f}}, \quad (\text{C7})$$

$$\Sigma_f(\tau) = \frac{A_X \Gamma(1-\alpha_X)}{\pi^2} \frac{\Delta''(0)}{|\tau|^{2-\alpha_X}} \text{sgn}(\tau). \quad (\text{C8})$$

The next step is to use Eq. (C3) the other way around to get from Eqs. (C7) and (C8) the ω dependance of the self-energies:

$$\Sigma_X''(\omega) = \frac{\mathcal{N} A_f \Delta''(0)}{\pi} \frac{1}{1-\alpha_f} |\omega|^{1-\alpha_f} \text{sgn}(\omega), \quad (\text{C9})$$

$$\Sigma_f''(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{A_X \Delta''(0)}{1-\alpha_X} |\omega|^{1-\alpha_X}. \quad (\text{C10})$$

It is necessary at this point to calculate the real part of both self-energies. This can be done using the Kramers-Kronig relation, but analyticity provides a simpler route. Indeed, by noticing that $\Sigma(z)$ is an analytic function of z and must be univaluated above the real axis, we find

$$\Sigma_X(z) = \frac{\mathcal{N} A_f \Delta''(0)}{\pi} \frac{1}{1-\alpha_f} \frac{e^{i(\alpha_f-1)\pi/2}}{\sin[(\alpha_f-1)\pi/2]} |z|^{1-\alpha_f},$$

$$\Sigma_f(z) = \frac{1}{\pi} \frac{A_X \Delta''(0)}{1-\alpha_X} \frac{e^{i\alpha_X\pi/2}}{\sin[\alpha_X\pi/2]} |z|^{1-\alpha_X}.$$

The same argument shows from Eqs. (C1) and (C2) that

$$G_f(z) = A_f \frac{e^{i(\alpha_f+1)\pi/2}}{\sin[(\alpha_f+1)\pi/2]} |z|^{-\alpha_f}, \quad (\text{C11})$$

$$G_X(z) = A_X \frac{e^{i\alpha_X\pi/2}}{\sin[\alpha_X\pi/2]} |z|^{-\alpha_X}. \quad (\text{C12})$$

We can therefore collect the previous expressions, using Dyson's formula for complex argument,

$$G_f^{-1}(z) = z - \Sigma_f(z), \quad (\text{C13})$$

$$G_X^{-1}(z) = -\frac{z^2}{U} + \lambda - \Sigma_X(z), \quad (\text{C14})$$

and this enables us to extract the leading exponents, as well as the product of the amplitudes:

$$\alpha_f = \frac{1}{\mathcal{N}+1}, \quad (\text{C15})$$

$$\alpha_X = \frac{\mathcal{N}}{\mathcal{N}+1}, \quad (\text{C16})$$

$$A_f A_X = \frac{\pi}{\mathcal{N}+1} \frac{1}{\Delta''(0)} \sin^2\left(\frac{\pi}{2} \frac{\mathcal{N}}{\mathcal{N}+1}\right). \quad (\text{C17})$$

We finish by computing the long-time behavior of the

SERGE FLORENS AND ANTOINE GEORGES

PHYSICAL REVIEW B **66**, 165111 (2002)

physical Green's function $G_d(\tau) = G_f(\tau)G_X(-\tau)$ together with Eqs. (C4) and (C5):

$$G_d(\tau) = \frac{\pi}{2(\mathcal{N}+1)} \tan\left(\frac{\pi}{2} \frac{\mathcal{N}}{\mathcal{N}+1}\right) \frac{1}{\pi\Delta''(0)} \frac{1}{\tau}. \quad (\text{C18})$$

This proves Eq. (37). In principle, next to leading order corrections can be computed by the same line of arguments, although this is much more involved.¹² Non-Fermi-liquid correlations in the physical Green's function would appear in this computation.

- ¹For an introduction, see L. Kouwenhoven and L. Glazman, Phys. World **14**, 33 (2001).
- ²For a review, see A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. **68**, 13 (1996).
- ³For a review, see T. Pruschke, M. Jarrell, and J.K. Freericks, Adv. Phys. **42**, 187 (1995).
- ⁴See, e.g. A. Hewson, *The Kondo Problem to Heavy Fermions* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1997).
- ⁵For recent reviews, see *Strong Coulomb Correlations in Electronic Structure Calculations* (Advances in Condensed Matter Science), edited by V. Anisimov (Taylor & Francis, London, 2001); K. Held *et al.*, in *Quantum Simulations of Complex Many-Body Systems*, edited by J. Grotendorst, D. Marx, and A. Muramatsu (NIC Series Volume 10, Juelich, 2002).
- ⁶A. Georges and G. Kotliar, Phys. Rev. B **45**, 6479 (1992).
- ⁷X.Y. Zhang, M.J. Rozenberg, and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **70**, 1666 (1993); A. Georges and W. Krauth, Phys. Rev. B **48**, 7167 (1993); M.J. Rozenberg, G. Kotliar, and X.Y. Zhang, *ibid.* **49**, 10 181 (1994).
- ⁸G. Kotliar and H. Kajueter, Phys. Rev. B **54**, R14 221 (1996). H. Kajueter and G. Kotliar, Int. J. Mod. Phys. B **11**, 729 (1997).
- ⁹N. Bickers, Rev. Mod. Phys. **59**, 845 (1993).
- ¹⁰T. Pruschke and N. Grewe, Z. Phys. B: Condens. Matter **74**, 439 (1989).
- ¹¹D.L. Cox and A.E. Ruckenstein, Phys. Rev. Lett. **71**, 1613 (1993).
- ¹²O. Parcollet, A. Georges, G. Kotliar, and A. Sengupta, Phys. Rev. B **58**, 3794 (1998). O. Parcollet, Ph.D. thesis, Paris University, 1999.
- ¹³J. Kroha and P. Wölfle, cond-mat/0105491 (unpublished).
- ¹⁴G. Kotliar and A.E. Ruckenstein, Phys. Rev. Lett. **57**, 1362 (1986).
- ¹⁵S. Florens, A. Georges, G. Kotliar, and O. Parcollet, Phys. Rev. B (to be published).
- ¹⁶T. Pruschke (private communication).
- ¹⁷S. Pairault, D. Senechal, and A-M. Tremblay, Eur. Phys. J. B **16**, 85 (2000).
- ¹⁸K. Yamada, Prog. Theor. Phys. **53**, 970 (1975).
- ¹⁹R. Bulla, A.C. Hewson, and T. Pruschke, J. Phys.: Condens. Matter **10**, 8365 (1998); R. Bulla, T.A. Costi, and D. Vollhardt, Phys. Rev. B **64**, 045103 (2001).
- ²⁰G. Moeller, Q. Si, G. Kotliar, M. Rozenberg, and D.S. Fisher, Phys. Rev. Lett. **74**, 2082 (1995).
- ²¹M.J. Rozenberg, R. Chitra, and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **83**, 3498 (1999); W. Krauth, Phys. Rev. B **62**, 6860 (2000); J. Joo and V. Oudovenko, *ibid.* **64**, 193102 (2001).
- ²²G. Kotliar, Eur. Phys. J. B **11**, 27 (1999); G. Kotliar, E. Lange, and M.J. Rozenberg, Phys. Rev. Lett. **84**, 5180 (2000).
- ²³T. Pruschke, D.L. Cox, and M. Jarrell, Phys. Rev. B **47**, 3553 (1993); P. Lombardo and G. Albinet, **65**, 115110 (2002).
- ²⁴J.K. Freericks and M. Jarrell, Phys. Rev. B **50**, 6939 (1994).
- ²⁵B. Amadon and S. Biermann (unpublished).
- ²⁶J.E. Han, M. Jarrell, and D.L. Cox, Phys. Rev. B **58**, R4199 (1998).
- ²⁷S. Florens and A. Georges (unpublished).
- ²⁸S. Florens, L. de Medici, and A. Georges (unpublished).
- ²⁹Q. Si and J.L. Smith, Phys. Rev. Lett. **77**, 3391 (1996); H. Kajueter Ph.D. thesis, Rutgers University, 1996; J.L. Smith and Q. Si, Phys. Rev. B **61**, 5184 (2000); A.M. Sengupta and A. Georges, *ibid.* **52**, 10 295 (1995).
- ³⁰E. Mueller-Hartmann, Z. Phys. B: Condens. Matter **57**, 281 (1984).
- ³¹This is still an active field of research. See, e.g., the recently developed Local Moment Approach: D. E. Logan, M. P. Eastwood, and M. A. Tusch, J. Phys.: Condens. Matter **10**, 2673 (1998).

Article 4

Phys. Rev. B **66**, 205102 (2002)

PHYSICAL REVIEW B **66**, 205102 (2002)**Mott transition at large orbital degeneracy: Dynamical mean-field theory**S. Florens,¹ A. Georges,¹ G. Kotliar,² and O. Parcollet³¹*Laboratoire de Physique Théorique, Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France
and Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, Bât. 510, 91405 Orsay, France*²*Center for Materials Theory, Department of Physics and Astronomy, Rutgers University, Piscataway, New Jersey 08854*³*Service de Physique Théorique, CEA Saclay, 91191 Gif-Sur-Yvette, France*

(Received 21 May 2002; published 8 November 2002)

We study analytically the Mott transition of the N -orbital Hubbard model using dynamical mean-field theory and a low-energy projection onto an effective Kondo model. It is demonstrated that the critical interaction at which the insulator appears (U_{c1}) and the one at which the metal becomes unstable (U_{c2}) have a different dependence on the number of orbitals as the latter becomes large: $U_{c1} \propto \sqrt{N}$ while $U_{c2} \propto N$. An exact analytical determination of the critical coupling U_{c2}/N is obtained in the large- N limit. The metallic solution close to this critical coupling has many similarities at low-energy with the results of slave boson approximations, to which a comparison is made. We also discuss how the critical temperature associated with the Mott critical endpoint depends on the number of orbitals.

DOI: 10.1103/PhysRevB.66.205102

PACS number(s): 71.10.-w, 71.27.+a

I. INTRODUCTION

The Mott transition is one of the central problems in the field of strongly correlated electronic systems. It is directly relevant to many compounds, such as V_2O_3 , $NiS_{2-x}Se_x$,¹ fullerenes,² and two-dimensional organics of the κ -BEDT family.³ Viewed from a more general perspective, the Mott transition confronts us with the need to describe electrons in a solid in an intermediate coupling regime, where perturbative methods around either the localized or the itinerant limit are of very limited use. The Mott phenomenon is also a key issue for the development of electronic structure calculations of strongly correlated materials, a subject of current intense investigation.⁴

A breakthrough in the understanding of this problem resulted from the development of dynamical mean-field theory (DMFT).⁵⁻⁸ Following the observation that a Mott transition as a function of the interaction strength U takes place in a (fully frustrated) one-band Hubbard model at half-filling⁹ within the DMFT, a rather surprising scenario was unraveled.¹⁰ In the parameter space defined by temperature and interaction strength, two kinds of solutions of the DMFT equations were found, corresponding to an insulator and a metal, with a region $U_{c1}(T) < U < U_{c2}(T)$ in which both types of solution coexist. The spectral function of the insulating solution has only high-energy features corresponding to Hubbard bands, while the metallic solution also has a low-energy quasiparticle resonance. Coexistence results in a *first-order* phase transition at finite temperature. The first order line ends into a second-order critical endpoint at $T = T_{MIT}$, $U = U_{MIT}$ at which the coexistence domain closes ($U_{c1}(T_{MIT}) = U_{c2}(T_{MIT}) = U_{MIT}$). At $T=0$, the transition is also second-order, because the metallic solution always has lower energy than the insulating one. A qualitative picture of the evolution of the spectral function as a function of control parameters was obtained, and this resulted in successful experimental predictions.¹¹

Early work on these issues relied heavily on an accurate but approximate technique, the iterative perturbation

theory.^{6,10} Later on, exact results near $U_{c2}(T=0)$ were obtained,^{12,13} thanks to the development of a renormalization method exploiting the separation of energy scales that holds true close to this critical coupling. This method performs a projection onto a low-energy effective theory after elimination of the degrees of freedom corresponding to Hubbard bands. A clear picture of the structure of the DMFT equations near the Mott transition and of the different critical points was finally obtained through the introduction of a Landau functional approach.¹⁴ These established results for the one-band Hubbard model together with numerical methods for solving DMFT equations, such as Quantum Monte Carlo^{9,15} and Numerical Renormalization Group,¹⁶ provide now a consistent picture of the Mott transition within DMFT.

In this paper, we investigate the Mott transition in the limit of large orbital degeneracy, within the DMFT. We establish analytically that the critical couplings $U_{c1}(T=0)$ and $U_{c2}(T=0)$ are not only different, but that they have very different scalings as a function of the number N of orbitals. Indeed, U_{c1} increases as $\sqrt{N}$, while U_{c2} increases as N , so that the coexistence region widens. Close to U_{c2} , the separation of scales which is at the heart of the projective method becomes asymptotically exact for large N . This allows us to determine exactly the value of the critical coupling U_{c2}/N at large N , and also to demonstrate that slave-boson-like approximations become asymptotically valid at low energy in this limit. Finally, we discuss how the finite temperature metal-insulator transition depends on the number of orbitals.

Our findings on the critical couplings are in agreement with early QMC results for the two-orbital model ($N=4$),¹⁷ and with recent results for higher values of N .¹⁸ A widening of the coexistence window $[U_{c1}, U_{c2}]$ as N increases is clearly seen in these simulations. Also, for fixed N , the critical coupling required to enter the Mott state is largest¹⁹ at the particle-hole symmetric filling $n=1/2$. The present work also puts the results of Refs. 20 and 21 in a new perspective; there, a $\sqrt{N}$ scaling of the critical coupling was proposed. We find that this indeed applies to the coupling where the insu-

S. FLORENS, A. GEORGES, G. KOTLIAR, AND O. PARCOLLET

 PHYSICAL REVIEW B **66**, 205102 (2002)

lator becomes unstable (U_{c1}), while the true $T=0$ Mott transition (at which the quasiparticle residue vanishes) takes place at $U_{c2} \propto N$. Indeed, in Ref. 20, the $\sqrt{N}$ scaling was rationalized on the basis of a stability argument for the insulator. Finally, the rather high temperatures considered in Ref. 21 explain why only the $\sqrt{N}$ dependence was reported there: distinguishing U_{c2} from U_{c1} requires significantly lower temperatures.¹⁸

The limit of large orbital degeneracy is relevant to the physics of systems with partially filled d - or f -shells, as well as to fullerenes. Direct numerical approaches become prohibitively difficult as the number of orbital increases (QMC methods scale as a power law of N , while exact diagonalizations²² scale exponentially). It is therefore important for future research to develop approximate but accurate impurity solvers which can handle many orbitals. The controlled results that we establish in this paper can be used as tests of these approximation methods.

II. MULTI-ORBITAL HUBBARD MODEL

We consider a generalized Hubbard model involving N species of electrons, with Hamiltonian,

$$H = - \sum_{i,j} \sum_{\sigma=1}^N t_{ij} d_{i\sigma}^\dagger d_{j\sigma} + \frac{U}{2} \sum_i \left[\sum_{\sigma=1}^N (d_{i\sigma}^\dagger d_{i\sigma} - n) \right]^2 - \tilde{\mu} \sum_i \sum_{\sigma=1}^N d_{i\sigma}^\dagger d_{i\sigma}, \quad (1)$$

where i, j are sites indices, σ is the orbital index, $\tilde{\mu}$ is the chemical potential, and n is the average density of particles per species,

$$n = \frac{1}{N} \sum_{\sigma} \langle d_{i\sigma}^\dagger d_{i\sigma} \rangle. \quad (2)$$

Introducing n in the Hamiltonian is just a convention for the chemical potential $\tilde{\mu}$. In particular, it is convenient at half-filling where the particle-hole symmetry implies $n = \frac{1}{2}$ and $\tilde{\mu} = 0$. For a single site (atom), the spectrum consists of $N+1$ levels, with energies $(U/2)(Q - nN)^2$ depending only on the total charge on the orbital, $Q = 0, \dots, N$ and with degeneracies $\binom{N}{Q}$.

The usual single-orbital Hubbard model corresponds to $N=2$ ($\sigma = \uparrow, \downarrow$). The Hamiltonian considered here has a full $SU(N)$ symmetry which includes both spin and orbital degrees of freedom. Starting from a more realistic model which assumes an interaction matrix $U_{mm'}$ between opposite spins and $U_{mm'} - J_{mm'}$ between parallel spins, it corresponds to the limit of isotropic $U_{mm'} = U$ and vanishing Hund's coupling $J_{mm'} = 0$.

When U is large enough, we expect a Mott insulating state to exist at fillings $n = Q/N$, corresponding to an integer occupancy of each site on average $Q = 1, \dots, N-1$. In this paper, we investigate analytically the nature of these Mott transitions within the DMFT. We consider only phases with no magnetic ordering and study the transition between a paramagnetic metal and a paramagnetic Mott insulator. In Sec.

III, we extract the large- N behavior of U_{c1} and U_{c2} using the low-energy projective technique analysis of the DMFT equations introduced in Ref. 12 for $N=2$ and extended in Ref. 23; we show that the equations for the U_c 's derived by this method are greatly simplified for $N \rightarrow \infty$ in the sense that an atomic limit becomes exact. In Sec. IV, we find quantitative agreement between these results and a multi-orbital slave boson method. Finally, in Sec. V, we consider the Mott transition at finite temperature.

III. LARGE- N BEHAVIOR OF U_{c1} AND U_{c2}

A. DMFT and the low-energy projective method

Let us recall briefly the DMFT equations and their low-energy projective analysis.^{12,13} DMFT maps the lattice Hamiltonian above onto a multi-orbital Anderson impurity model with the same local interaction term than in (1) and a hybridization function $\Delta(i\omega_n)$. The local Green's function reads $G_d(i\omega_n)^{-1} = i\omega_n + \tilde{\mu} - \Delta(i\omega_n) - \Sigma_d(i\omega_n)$. In this expression, $\tilde{\mu}$ is the chemical potential (shifted by the Hartree contribution) and $\Sigma_d(i\omega_n)$ is a local self-energy. A self-consistency requirement is imposed, which identifies $G_d(i\omega_n)$ with the on-site Green's function of the lattice model with the same self-energy $\Sigma_d(i\omega_n)$. This reads

$$G_d(i\omega_n) = \int d\varepsilon \frac{D(\varepsilon)}{i\omega_n + \tilde{\mu} - \varepsilon - \Sigma_d(i\omega_n)}. \quad (3)$$

In this expression, $D(\varepsilon)$ is the free electron density of state (d.o.s.) corresponding to the Fourier transform of the hopping matrix elements t_{ij} . In the particular case of a semicircular d.o.s. with half-width $D=2t$, Eq. (3) simplifies to

$$\Delta(i\omega_n) = t^2 G_d(i\omega_n). \quad (4)$$

Solving the impurity model subject to (3) determines both the hybridization function and the local Green's function in a self-consistent manner. In order to give an explicit Hamiltonian form to the Anderson impurity model, the function Δ can be represented with an auxiliary bath of conduction electrons $c_{k\sigma}$, with effective single-particle energies ϵ_k and effective hybridizations V_k to the local orbital such that

$$\Delta(i\omega) \equiv \sum_k \frac{|V_k|^2}{i\omega - \epsilon_k}, \quad (5)$$

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k c_{k,\sigma}^\dagger c_{k,\sigma} + \sum_{k,\sigma} V_k (c_{k,\sigma}^\dagger d_\sigma + d_\sigma^\dagger c_{k,\sigma}) - \tilde{\mu} \sum_\sigma d_\sigma^\dagger d_\sigma + \frac{U}{2} \left[\sum_\sigma (d_\sigma^\dagger d_\sigma - n) \right]^2. \quad (6)$$

Within the DMFT, the Mott transition at U_{c2} and $T=0$ is associated with a separation of energy scales. For U slightly smaller than U_{c2} , the d -electron spectral function has a sharp quasiparticle peak, well separated from the high-energy Hubbard bands. Naturally, a small amount of spectral weight does connect these two features in the metal. Slightly above U_{c2} , the Mott gap Δ_g separating the Hubbard bands of the insulating solution is finite. While the weight Z of the quasi-

particle peak vanishes at U_{c2} , the Mott gap Δ_g disappears only at the smaller critical coupling U_{c1} . Because of the self-consistency condition (3), the hybridization function of the effective conduction bath (and hence the ϵ_k 's) also displays this separation of scales.

This remark led the authors of Ref. 12 to use a *projective method* in order to study the critical behavior at U_{c2} . Within this approach, the effective conduction electron bath is separated into a high energy sector ($k \in H^\pm$) associated with the upper (H^+) and lower (H^-) Hubbard bands, and a low-energy sector ($k \in L$) associated with the quasiparticle resonance. The impurity model Hamiltonian is thus written as (for simplicity we take V_L and V_H independent of k)

$$H = H_L + H_H + H_{HL}, \quad (7a)$$

$$H_L = \sum_{k \in L, \sigma} \epsilon_k c_{k, \sigma}^\dagger c_{k, \sigma}, \quad (7b)$$

$$H_H = \sum_{k \in H^\pm, \sigma} [\epsilon_k c_{k, \sigma}^\dagger c_{k, \sigma} + V_{Hc} c_{k, \sigma}^\dagger d_\sigma + \text{h.c.}] + \frac{U}{2} \left[\sum_\sigma d_\sigma^\dagger d_\sigma - n \right]^2 - \bar{\mu} \sum_\sigma d_\sigma^\dagger d_\sigma, \quad (7c)$$

$$H_{HL} = \sum_{k \in L, \sigma} [V_L c_{k, \sigma}^\dagger d_\sigma + \text{h.c.}]. \quad (7d)$$

We note that the self-consistency condition (3) implies that $\sum_{k \in L} V_L^2/t^2$ is proportional to the quasiparticle residue Z , so that it is clear that the low-energy hybridization vanishes at U_{c2} .

In order to obtain an effective theory close to U_{c2} , one first diagonalizes the high-energy part H_H of the Hamiltonian, and obtains an effective low-energy Hamiltonian by expanding in V_L . From the presence of a finite gap in the high-energy bath ϵ_k (for $k \in H^\pm$), H_H describes an impurity in a semiconducting bath. The position of the d -level (i.e., the chemical potential) fixes the number of electrons in the ground-state. For a charge $Q = nN$, this high-energy problem has a $\binom{N}{Q}$ degenerate ground-state, spanned by eigenvectors $|\mu\rangle$ (with eigenenergy E_{gs}). The detailed form of these states is complicated (they mix with higher impurity charge states through V_H), but they form a representation of the $SU(N)$ “spin” group, of dimension $\binom{N}{Q}$.

Using a generalized Schrieffer-Wolff (SW) transformation to order V_L^2 in order to project onto the low-energy Hilbert space (defined by the selected charge sector of the impurity d , and the low-energy sector for the conduction bath $k \in L$), one obtains an effective Kondo Hamiltonian,^{12,13,23}

$$H_{\text{eff}} = \sum_{k \in L, \sigma} \epsilon_k c_{k, \sigma}^\dagger c_{k, \sigma} + \frac{V_L^2}{U} \sum_{kk', \mu\nu, \sigma\sigma'} J_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'} X^{\mu\nu} c_{k, \sigma}^\dagger c_{k', \sigma'}, \quad (8)$$

where $X^{\mu\nu} \equiv |\mu\rangle\langle\nu|$ is a Hubbard operator connecting two states in the ground state manifold. The Hamiltonian contains potential scattering terms for $\sigma = \sigma'$ and spin-flip

(Kondo) terms for $\sigma \neq \sigma'$, with the spin operator $S_{\mu\nu} = X^{\mu\nu} - \delta_{\mu\nu} X^{\rho\rho}$. The matrix of (dimensionless) coupling constants reads^{13,23}

$$J_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'} \equiv \left\langle \mu \left| d_{\sigma'}^\dagger \frac{U}{H_H - E_{gs}} d_\sigma \right| \nu \right\rangle - \left\langle \mu \left| d_\sigma \frac{U}{H_H - E_{gs}} d_{\sigma'}^\dagger \right| \nu \right\rangle. \quad (9)$$

We emphasize that the low-energy Hamiltonian has been derived to first order in V_L^2 ; this is asymptotically justified exactly at the critical point (and hence sufficient to determine the critical coupling), but deviations away from the critical point require to consider higher order terms in V_L . Finally, we note that the bandwidth of this Kondo problem is of order Zt , while the coupling is of order $V_L^2/U \sim Zt^2/U$. Hence, the dimensionless coupling constant of the effective low-energy Kondo problem is of order one: we have an *intermediate coupling* Kondo problem.¹⁴

The conditions that determine U_{c1} and U_{c2} have been derived within the projective method^{12,23} and within the more general Landau functional approach¹⁴ [in which the stability of the insulating solution to different kinds of low-energy perturbations is studied using a Landau functional of the hybridization function $\Delta(i\omega_n)$]. The condition for U_{c2} reads

$$\frac{U_{c2}^2}{t^2} = \sum_{\alpha\beta\mu\nu} \binom{N}{nN}^{-1} |J_{\mu\nu}^{\alpha\beta}|^2 + \langle X_{\mu\nu} c_{\alpha}^\dagger c_{\beta} \rangle (J_{\rho\nu}^{\gamma\beta} J_{\rho\mu}^{\gamma\alpha*} - J_{\mu\rho}^{\gamma\beta} J_{\nu\rho}^{\gamma\alpha*}). \quad (10)$$

As explained in Refs. 14 and 23, an analogous equation is found for U_{c1} , where off-diagonal terms in the average are taken to zero. For finite N , this equation is complicated to solve, since the average on the right-hand side is a function of J which we can only obtain by solving the low energy Kondo problem explicitly. However, we will show in the following that:

- (1) Using the $SU(N)$ symmetry, the tensor structure of J can be parametrized with only two numbers A and B , which are dimensionless functions of N , n , and V_H/U . This greatly simplifies (10) (Sec. III B).
- (2) An explicit calculation of A and B can be performed in the atomic limit $V_H = 0$. This allows us to show that the two critical couplings have the following N -dependence at large N :

$$U_{c1} = \sqrt{N} \tilde{U}_{c1} + \dots, \quad (11a)$$

$$U_{c2} = N \tilde{U}_{c2} + \dots. \quad (11b)$$

In fact, the atomic limit evaluation of A and B becomes asymptotically exact when U is taken to be proportional to N . This is not the case when $U \propto \sqrt{N}$, but we show that corrections to the atomic limit do not modify the scaling (11a).

- (3) For $U \propto N$, the effective Kondo problem can actually be solved explicitly at large N , using standard techniques. This allows for an explicit computation of the matrix element $\langle X_{\mu\sigma} c_{\alpha}^\dagger c_{\beta} \rangle$ involved in (10). Since, from the

S. FLORENS, A. GEORGES, G. KOTLIAR, AND O. PARCOLLET

 PHYSICAL REVIEW B **66**, 205102 (2002)

above remark, the effective couplings entering the Kondo problem can be evaluated in the atomic limit in that case, this allows us to determine the prefactor $\tilde{U}_{c2}$ exactly (Sec. III D). Because the atomic limit is not asymptotically exact for $U \propto \sqrt{N}$, we are not able to obtain an exact determination of $\tilde{U}_{c1}$.

B. Simplification due to the $SU(N)$ symmetry

Computing the couplings (9) is a complicated task in general, since it requires a knowledge of the states $|\mu\rangle$, $|\nu\rangle$, and thus a diagonalization of H_H . However, general considerations based on the $SU(N)$ symmetry of the model allow one to reduce the unknown Kondo couplings $J_{\mu\sigma}^{\sigma\sigma'}$ to two dimensionless numbers only. Let us consider the operator,

$$O_1^{\sigma\sigma'} \equiv d_{\sigma} \frac{1}{H_H - E_{\text{gs}}} d_{\sigma'}^{\dagger}. \quad (12)$$

Since the Hamiltonian is $SU(N)$ symmetric, this operator transforms under $SU(N)$ with the representation $F \otimes F^* = \text{id} \oplus \text{ad}$: the tensor product of the fundamental F (one box in the Young tableau language) and its complex conjugate F^* ($N-1$ boxes), which reduces to the sum of the identity id and the adjoint ad . If we denote by R the ground state representation (a column with $Q = nN$ boxes), the tensor structure of J is then given by the Wigner-Eckart theorem; we have to find the occurrence of R in $(\text{id} \oplus \text{ad}) \otimes R$. We have a trivial term $\text{id} \otimes R = R$ and a *single* nontrivial one since $\text{ad} \otimes R = R \oplus \dots$, where $\dots$ denotes other irreducible representations. Then we have

$$\left\langle \nu \left| d_{\sigma} \frac{1}{H_H - E_{\text{gs}}} d_{\sigma'}^{\dagger} \right| \mu \right\rangle = A_1 \delta_{\sigma\sigma'} \delta_{\mu\nu} + B_1 C_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'}, \quad (13)$$

where C are the Clebsch-Gordan coefficients $\langle R | \text{ad} \otimes R \rangle$.

In order to avoid the computation of C , we can use the following argument. Let us consider the operator $d_{\sigma} d_{\sigma'}^{\dagger}$, which has the same symmetry as O_1 , so the previous symmetry argument gives

$$\langle \nu | d_{\sigma} d_{\sigma'}^{\dagger} | \mu \rangle = A_2 \delta_{\sigma\sigma'} \delta_{\mu\nu} + B_2 C_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'} \quad (14)$$

with the *same* C , but *different coefficients* A_2 , B_2 . Since $B_2 \neq 0$, we can eliminate C between the two equations. We finally obtain the general form, valid to first order in V_L^2 for an $SU(N)$ symmetric model,

$$J_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'} = A \delta_{\sigma\sigma'} \delta_{\mu\nu} + B \langle \mu | d_{\sigma'}^{\dagger} d_{\sigma} | \nu \rangle. \quad (15)$$

In this expression, $A(N, n; V_H/U)$ and $B(N, n; V_H/U)$ are dimensionless coefficients which depend only on the dimensionless ratio V_H/U associated with the high-energy problem (and of course *a priori* also on orbital number N and density n).

Inserting (15) into Eq. (10), we obtain the simplified form of the conditions which determine the critical couplings,

$$\frac{U_{c1}^2}{t^2} = (A + nB)^2 + B^2 n(1-n)(N+1), \quad (16a)$$

$$\frac{U_{c2}^2}{t^2} = (A + nB)^2 + B^2 n(1-n)(N+1) - B^2 \sum_{\sigma\sigma'} \langle S_{\sigma\sigma'} c_{\sigma'}^{\dagger} c_{\sigma} \rangle. \quad (16b)$$

C. The atomic limit

The atomic limit approximation is defined by $V_H = 0$. In this limit, the states $|\mu\rangle$ are just the impurity states $|\mu\rangle_0 \equiv |\sigma_1 \dots \sigma_Q\rangle$ ($Q = 0, \dots, N$), without mixing with the high-energy electron sector. In that case, A and B [from (15)] can be computed explicitly (we choose here $\tilde{\mu} = 0$, i.e., the chemical potential is bound to be at the center of a step in the Coulomb staircase). We find

$$A = -2, \quad B = 4. \quad (17)$$

We note that these coefficients do not depend on N in the atomic limit. Moreover, it is clear that, in general (for an explicit proof, see Sec. III D)

$$\sum_{\sigma\sigma'} \langle S_{\sigma\sigma'} c_{\sigma'}^{\dagger} c_{\sigma} \rangle \propto N^2. \quad (18)$$

When using these results in (16a)–(16b), we obtain the N -dependence of the critical couplings quoted in (11a)–(11b).

This derivation relies on the use of the atomic limit $V_H = 0$. An important question is therefore to check that the N -dependence of the critical couplings is not modified by the interaction V_H that dresses the atomic states $|\mu\rangle$. We examine carefully this question in Appendix A, where we give an explicit proof that this is indeed the case. The problem is in fact quite different for U_{c1} and U_{c2} . For the latter, U must be scaled as $U = N\tilde{U}$. In that case, we show in the Appendix that the atomic limit calculation of A and B is in fact *exact* at large N . This can be expected since the band gap diverges with N , so that the Hubbard bands are well separated from the low energy degrees of freedom. However, one might worry that the growing number of orbitals (N) could counterbalance this effect. This is actually not the case, and we show that the corrections to J (or A, B) coming from V_H are subdominant in large- N , order by order in perturbation theory. Moreover, the low-energy effective Kondo problem becomes exactly solvable when $U \propto N$ (i.e., close to U_{c2}). This is the subject of the next section (Sec. III D), in which the exact value of the prefactor $\tilde{U}_{c2}$ is obtained.

The problem is more involved for U_{c1} , corresponding to the scaling $U \propto \sqrt{N}$. In that case, corrections in V_H beyond the atomic limit do produce corrections to A and B (hence to J). However, we are able to show (Sec. 2 of the Appendix) that these corrections are of order one, so that the scaling $U_{c1} = \sqrt{N}\tilde{U}_{c1}$ does hold.

D. Explicitly large- N solution of the effective low energy Kondo problem at U_{c2}

In this section, we explicitly solve the low energy effective Kondo problem in the large- N limit using standard methods,²⁴ in order to obtain the prefactor $\tilde{U}_{c2}$. The effective Hamiltonian (8) reduces at order $(1/N^2)$ to

$$H_{\text{eff}} = \sum_{k \in L, \sigma} \epsilon_k c_{k, \sigma}^\dagger c_{k, \sigma} + \frac{4V_L^2}{N\tilde{U}} \sum_{kk' \in L, \sigma\sigma'} \left(f_{\sigma'}^\dagger f_{\sigma} - \frac{\delta_{\sigma\sigma'}}{2} \right) c_{k, \sigma}^\dagger c_{k', \sigma'}. \quad (19)$$

This model becomes exactly solvable at large N because the Kondo coupling scales as $1/N$ (which is a result of $U \propto N$). Introducing an auxiliary boson field b conjugate to $\sum_{k\sigma} f_{\sigma}^\dagger c_{k\sigma}$, and a Lagrange multiplier field λ to enforce the constraint $\sum_{\sigma} f_{\sigma}^\dagger f_{\sigma} = Nn$, we see that, as $N \rightarrow \infty$, the field b undergoes a Bose condensation, and the saddle-point values of the b, λ fields are determined by the equations (at $T=0$)

$$G_f^{-1}(\omega) = \omega + \lambda - b^2 G_{cL}^0(\omega), \quad (20a)$$

$$n = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^0 d\omega \text{Im} G_f(\omega), \quad (20b)$$

$$\frac{\tilde{U}_{c2}}{4V_L^2} = \int d\tau G_f(\tau) G_{cL}^0(\tau) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^0 d\omega \text{Im}[G_f(\omega) G_{cL}^0(\omega)]. \quad (20c)$$

In this expression, G_{cL}^0 denotes the Green's function of the low-energy part of the effective bath of conduction electrons, in the absence of Kondo coupling, namely,

$$G_{cL}^0(i\omega) = \sum_{k \in L} \frac{1}{i\omega - \epsilon_k} = \frac{1}{V_L^2} \Delta_L(i\omega). \quad (21)$$

First we express the self-consistency condition (3) or more precisely its low-energy counterpart. We relate the low-energy part of the on-site Green's function, $G_{dL}(i\omega_n)$, to the auxiliary-fermion one, $G_f(i\omega_n)$, by imposing that the low-energy part of the interacting Green's function of the effective bath of conduction electrons, G_{cL} , can be calculated either from the original Anderson model or from the low-energy projected Kondo model, with identical results. G_{cL} is related to G_{cL}^0 through the conduction electron $\mathcal{T}$ matrix,

$$G_{cL} = G_{cL}^0 + (G_{cL}^0)^2 \mathcal{T}. \quad (22)$$

The Anderson model $\mathcal{T}$ -matrix is $V_L^2 G_{dL}$, while it is $b^2 G_f$ for the low-energy Kondo model. Therefore G_{dL} is directly related to G_f by

$$V_L^2 G_{dL} = b^2 G_f \equiv \mathcal{T}. \quad (23)$$

Using this in Eq. (20a), one finds the expression of G_{dL} in terms of the low-energy hybridization Δ_L ,

$$G_{dL}^{-1}(i\omega_n) = \frac{1}{Z}(i\omega_n + \lambda) - \Delta_L(i\omega_n), \quad (24)$$

where we have introduced the notation,

$$Z \equiv \frac{b^2}{V_L^2}. \quad (25)$$

We can finally obtain G_{dL} in closed form by making use of (24) into the self-consistency condition (3) (restricted to the low-energy sector). This yields

$$G_{dL}(i\omega) = \int d\varepsilon \frac{D(\varepsilon)}{\Delta_L(i\omega) + G_{dL}^{-1}(i\omega) - \varepsilon} \quad (26)$$

$$= \int d\varepsilon \frac{D(\varepsilon)}{\frac{1}{Z}(i\omega + \lambda) - \varepsilon}. \quad (27)$$

The low-energy part of the local spectral density reads

$$\rho_{dL}(\omega) \equiv -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{dL}(\omega + i0^+) = D\left(\frac{\omega + \lambda}{Z}\right). \quad (28)$$

By comparing this form of G_{dL} to its expression in terms of the local self-energy, we recognize that Z is the quasiparticle weight and λ yields the zero-frequency limit of Σ_d ,

$$\mu - \Sigma_d(0) = \frac{\lambda}{Z}, \quad Z = \left[1 - \frac{\partial \Sigma_d}{\partial \omega} \Big|_{\omega=0} \right]^{-1}. \quad (29)$$

The value of λ/Z can be determined by using the explicit form of $\rho_d = Z\rho_f$ into (20b),

$$n = \int_{-\infty}^0 d\omega \frac{1}{Z} D\left(\frac{\omega + \lambda}{Z}\right). \quad (30)$$

Changing variables, this leads to $\lambda/Z = \mu_0(n)$, where $\mu_0(n)$ is the noninteracting value of the chemical potential, defined by

$$n = \int_{-\infty}^{\mu_0} d\varepsilon D(\varepsilon). \quad (31)$$

We note that this is precisely the result expected from Luttinger's theorem [we have $\mu - \Sigma_d(0) = \mu_0(n)$ which insures that the Fermi surface volume is unchanged by interactions]. Hence, the low-energy part of the spectral function (quasiparticle resonance) is simply given by

$$\rho_{dL}(\omega) = D\left(\frac{\omega}{Z} + \mu_0(n)\right). \quad (32)$$

Its shape is simply given by the noninteracting d.o.s., centered at $\omega = -Z\mu_0$ and with a width renormalized by Z .

Second, we can now use (20c) and $\text{Im}[\Delta_L G_f] = [(\omega + \lambda)/Z] \text{Im} G_f$, to obtain

$$\frac{\tilde{U}_{c2}}{4} = -\frac{1}{Z^2} \int_{-\infty}^0 d\omega (\omega + \lambda) \rho_{dL}(\omega) \quad (33)$$

S. FLORENS, A. GEORGES, G. KOTLIAR, AND O. PARCOLLET

 PHYSICAL REVIEW B **66**, 205102 (2002)

$$= - \int_{-\infty}^0 \frac{d\omega}{Z} \frac{\omega + \lambda}{Z} D \left(\frac{\omega + \lambda}{Z} \right). \quad (34)$$

Clearly, Z drops out of this equation, which has therefore a unique solution, the critical coupling $\tilde{U}_{c2}$ at which Z vanishes. This is expected: the low-energy effective Hamiltonian is valid only exactly at the critical point. A determination of the critical behavior of Z slightly away from the critical point would require considering higher-order terms in the effective low-energy Hamiltonian. We therefore obtain the large- N value of the critical coupling (using the expression of λ/Z found above)

$$\tilde{U}_{c2} = \frac{U_{c2}}{N} = 4\varepsilon_0(n) \quad (35)$$

with

$$\varepsilon_0(n) \equiv - \int_{-\infty}^{\mu_0(n)} d\varepsilon \varepsilon D(\varepsilon). \quad (36)$$

This result is reminiscent of the critical coupling obtained in the Gutzwiller or slave-boson method.²⁵ A detailed comparison is made in Sec. IV. Taking for example a rectangular d.o.s. of half-width D , Eq. (35) yields

$$\frac{U_{c2}}{N} = 4Dn(1-n). \quad (37)$$

$\tilde{U}_{c2}$ is largest at half-filling ($n = 1/2$). This is because orbital fluctuations are maximum there, so that it is more difficult to destroy the metallic phase (see however Ref. 19). Obviously, for finite N , a Mott transition is found only for rational values of $n = Q/N$ with integer Q (these values are dense on the interval $[0, 1]$ as N becomes large).

Another way to obtain U_{c2} is to use the criterion of Sec. III C together with the present large- N limit in order to compute the matrix element $\sum_{\sigma\sigma'} \langle S_{\sigma\sigma'} c_{\sigma'}^\dagger c_\sigma \rangle$. This can be exactly evaluated at $N = \infty$ using the effective action for the Kondo model (20),

$$\begin{aligned} S_{\text{eff}} = & \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma f_\sigma^\dagger \partial_\tau f_\sigma - \lambda \sum_\sigma (f_\sigma^\dagger f_\sigma - n) \\ & + \int_0^\beta d\tau \frac{-N\tilde{U}}{4V_L^2} b^2 + \sum_\sigma b f_\sigma^\dagger c_\sigma + b c_\sigma^\dagger f_\sigma \\ & - \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_\sigma c_\sigma^\dagger(\tau) G_{cL}^0(\tau - \tau')^{-1} c_\sigma(\tau'). \end{aligned} \quad (38)$$

Because this action is Gaussian, it is straightforward to get the following average (here $\sigma \neq \sigma'$):

$$\begin{aligned} \langle f_\sigma^\dagger f_{\sigma'} c_{\sigma'}^\dagger c_\sigma \rangle &= \left\langle f_\sigma^\dagger f_{\sigma'} \int_0^\beta d\tau G_{cL}^0(\tau) b f_{\sigma'}^\dagger(\tau) \int_0^\beta d\tau' G_{cL}^0(\tau') b f_\sigma(\tau') \right\rangle \\ &= -b^2 \left[\int_0^\beta d\tau G_{cL}^0(\tau) G_f(\tau) \right]^2. \end{aligned} \quad (39)$$

We find therefore,

$$\sum_{\sigma\sigma'} \langle S_{\sigma\sigma'} c_{\sigma'}^\dagger c_\sigma \rangle = -N^2 b^2 \left[\int d\tau G_f(\tau) G_{cL}^0(\tau) \right]^2 + \mathcal{O}(N) \quad (40)$$

which indeed scales as N^2 . Inserting this into (16b), we have

$$U_{c2} = 4t \frac{V_L}{\sqrt{Z}t} N b \int d\tau G_f(\tau) G_{cL}^0(\tau) \quad (41)$$

which coincides with Eq. (20c) since $\sqrt{Z} = b/V_L$. Hence, we have checked that both methods (explicit large- N solution and projective criterion of Sec. III C) yield the same result for the critical interaction U_{c2} .

IV. COMPARISON TO A SLAVE-BOSON APPROACH

In this section, we show that a multiorbital slave boson approximation reproduces the previous results close to the critical coupling U_{c2} . This method is an extension to many orbitals of the Gutzwiller approximation, formulated in terms of slave bosons by Kotliar and Ruckenstein²⁶ and extended to many orbitals in Ref. 27. Indeed, with the scaling $U = N\tilde{U}$, the Mott gap is of order N and quasiparticles dominate the physics over most of the energy range. Furthermore, expression (28) for the physical spectral function close to U_{c2} contains precisely the same ingredients than in slave boson methods, namely, a shift of the effective level which insures Luttinger's theorem, and a quasiparticle weight Z (vanishing at the transition). The self-energy contains no further renormalizations (in particular the quasiparticle lifetime is infinite). This bare-bone picture of a strongly correlated Fermi liquid is precisely that emphasized by slave boson approaches.

Following (Ref. 27), one introduces 2^N slave bosons $\phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p}$ associated with a given spin configuration $\sigma_1 \dots \sigma_p$ on the impurity orbital. The probability that the orbital is in a given spin configuration is simply given by $\langle \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p}^\dagger \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p} \rangle$. The physical electron operator is represented as

$$d_\alpha^\dagger = z_\alpha f_\alpha^\dagger, \quad (42)$$

with

MOTT TRANSITION AT LARGE ORBITAL . . .

 PHYSICAL REVIEW B **66**, 205102 (2002)

$$z_\alpha \equiv g_1 \left(\sum_p \sum_{\alpha \in (\sigma_1, \dots, \sigma_p)} \phi_{\alpha\sigma_1 \dots \sigma_p}^\dagger \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p} \right) g_2, \quad (43)$$

$$g_1 \equiv \left[1 - \sum_p \sum_{\alpha \in (\sigma_1, \dots, \sigma_p)} \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p}^\dagger \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p} \right]^{-1/2},$$

$$g_2 \equiv \left[1 - \sum_p \sum_{\alpha \in (\sigma_1, \dots, \sigma_p)} \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p}^\dagger \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p} \right]^{-1/2}.$$

This representation is supplemented by two constraints

$$f_\alpha^\dagger f_\alpha = \sum_p \sum_{\alpha \in (\sigma_1, \dots, \sigma_p)} \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p}^\dagger \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p}, \quad (44a)$$

$$1 = \sum_p \sum_{(\sigma_1, \dots, \sigma_p)} \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p}^\dagger \phi_{\sigma_1 \dots \sigma_p}. \quad (44b)$$

At this stage, this is an exact representation of the Hilbert space, which can be used to rewrite the Hubbard Hamiltonian. In order to obtain an approximate solution, we shall assume that all auxiliary bosons undergo a Bose-condensation, i.e., become static c -numbers, and that furthermore the corresponding expectation value depends only on the total charge p and not on the specific spin configuration $\sigma_1, \dots, \sigma_p$. We shall thus set, at each site,

$$\phi_{i\sigma_1 \dots \sigma_p} = \phi_p. \quad (45)$$

We emphasize that this approximation *does not* correspond to a controlled saddle-point, even in the large- N limit, since the number of auxiliary fields grows rapidly with N .

Using this ansatz, the Hubbard Hamiltonian can be rewritten in the form;

$$H = - \sum_{i,j} \sum_{\sigma=1}^N t_{ij} z^2 f_{i\sigma}^\dagger f_{j\sigma} + \frac{U}{2} \sum_i \sum_{p=0}^N \binom{N}{p} \phi_p^2 (p - Nn)^2 \quad (46)$$

with

$$z = \frac{1}{\sqrt{n(1-n)}} \sum_{p=0}^{N-1} \binom{N-1}{p} \phi_p \phi_{p+1} \quad (47)$$

and the constraints,

$$\sum_{p=0}^N \binom{N}{p} \phi_p^2 = 1, \quad (48)$$

$$\sum_{p=1}^N \binom{N-1}{p-1} \phi_p^2 = n \equiv \langle f_\sigma^\dagger f_\sigma \rangle. \quad (49)$$

The free-energy corresponding to this Hamiltonian must then be minimized with respect to the $N+1$ variational parameters ϕ_p 's, subject to the two constraints above. In the following, we briefly outline this procedure, focusing for simplicity on the half-filled case ($n = 1/2$) at zero-temperature.

In this case, particle-hole symmetry makes the analysis simpler. It implies that $\phi_p = \phi_{N-p}$, and it can then be shown that the constraint $\sum_{p=1}^N \binom{N-1}{p-1} \phi_p^2 = n = 1/2$ is automatically

satisfied when the first one [$\sum_{p=0}^N \binom{N}{p} \phi_p^2 = 1$] is. Evaluating the ground-state energy of (46) yields the following expression to be minimized at $T=0$ (subject to just one constraint):

$$\frac{1}{N} E_0 = -4\varepsilon_0 \left[\sum_{p=0}^{N-1} \binom{N-1}{p} \phi_p \phi_{p+1} \right]^2 + \frac{\tilde{U}}{2} \sum_{p=0}^N \binom{N}{p} \phi_p^2 \left(\frac{N}{2} - p \right)^2 \quad (50)$$

with ε_0 the (absolute value) of the noninteracting kinetic energy per orbital [as defined in (36)], and $\tilde{U} \equiv U/N$, as defined above.

It is clear from the Hamiltonian (46) that this slave-boson approximation leads to a picture of quasiparticles with no residual interactions. The quasiparticle weight reads

$$Z = z^2 = \frac{1}{n(1-n)} \left(\sum_{p=0}^{N-1} \binom{N-1}{p} \phi_p \phi_{p+1} \right)^2, \quad (51)$$

while the chemical potential shift λ in the previous section corresponds in the present context to the Lagrange multiplier associated with the constraint (44a) (it vanishes at half-filling).

We also note that the noninteracting limit is correctly reproduced, thanks to the square-root normalization factors²⁶ introduced in (43). In that limit, $Z=1$ and $E_0 = -N\varepsilon_0$.

In order to analyze the Mott transition, we note that within this approach, an insulating solution can be found *for arbitrary strength of the coupling* U . It corresponds to the trivial solution.

$$\phi_{N/2}^2 = \left(\frac{N}{2} \right)^{-1}, \quad \phi_p = 0 \left(p \neq \frac{N}{2} \right) \quad (52)$$

which yields the $T=0$ occupancies in the atomic limit. This solution is always an extremum of the variational energy (corresponding to a boundary), but not always a *minimum*. Indeed, a minimum with a lower energy exists for $\tilde{U} < \tilde{U}_{c2}$. To find this critical coupling, we perturb around the trivial solution. Close to U_{c2} , only the occupancies of the states with charge $N/2 \pm 1$ matter, and we set $\phi_{N/2}^2 = \left(\frac{N}{2} \right)^{-1} + \dots$, $\phi_{N/2 \pm 1} = \delta\phi$, and $\phi_p = \dots$ otherwise [where $(\dots)$ denote terms that can be neglected]. The energy difference with the trivial insulating solution reads

$$\Delta E = -4\varepsilon_0 \frac{\left(\binom{N-1}{N/2} + \binom{N-1}{N/2-1} \right)^2}{\left(\frac{N}{2} \right)} \delta\phi^2 + \frac{\tilde{U}}{2} \left(\frac{N}{N/2-1} \right) + \left(\frac{N}{N/2+1} \right) \delta\phi^2. \quad (53)$$

Hence, the critical coupling at which the metallic solution disappears reads

205102-7

$$\tilde{U}_{c2} = 16\epsilon_0 \frac{\binom{N-1}{N/2}^2}{\binom{N}{N/2} \binom{N}{N/2-1}} = 4\epsilon_0 \frac{N+2}{N}. \quad (54)$$

This value coincides with that obtained by Lu²⁵ using the Gutzwiller approximation. Remarkably, it agrees with our exact result in the $N \rightarrow \infty$ limit. Together with the considerations above, this suggests that such a slave boson approach becomes asymptotically exact, at low-energy and close to the critical coupling U_{c2} , in this limit. This estimate of the critical coupling is already quite accurate for the smallest value of $N=2$ (we take for reference a semicircular band with half-width $D=1$),

$$U_c(N=2) = \frac{8D}{3\pi}(N+2) \approx 3.3 \quad (55)$$

(the NRG and the projective analysis of the one-orbital model indicate that U_c is very close to 3). On the other hand, the large- N solution given by Eq. (35) obviously misses the subleading term of order N^0 , and is therefore inaccurate at small N .

The behavior of the quasiparticle weight close to the transition can be obtained by expanding the energy to next order in $\delta\phi$, taking into account that $\phi_{N/2\pm q}^2 \sim (1 - \tilde{U}/\tilde{U}_{c2})^q$ (so that only the terms with $q=0, \pm 1$ matter). This yields

$$Z = 1 - \frac{U}{U_{c2}} + \dots \quad (56)$$

We note that there are no $1/N$ prefactors in this expression when couplings are scaled properly.

It is not entirely obvious to decide what the critical coupling U_{c1} is within this approach. Since the insulating solution exists for arbitrary U , one might be tempted to conclude that $U_{c1}=0$. Another criterion would be to find at which coupling the optical gap of the insulator vanishes. Unfortunately, the above approximation (condensed bosons) is insufficient to discuss high-energy features (Hubbard bands). Studies that go beyond this approximation²⁸ and incorporate fluctuations of the slave bosons suggest that the optical gap closes at U_{c2} ; in that sense the slave boson approximation does not yield a coexistence regime, in contrast to the exact results established above (which are the generic situation within DMFT).

V. FINITE TEMPERATURE TRANSITIONS

We conclude this paper by addressing the finite-temperature aspects of the transitions discussed above. As in the one-band case, we expect a coexistence region $U_{c1}(T) \leq U \leq U_{c2}(T)$ at finite temperature, which closes at a second-order (liquid-gas) critical point $(U_{\text{MIT}}, T_{\text{MIT}})$, with $U_{c1}(T_{\text{MIT}}) = U_{c2}(T_{\text{MIT}}) = U_{\text{MIT}}$. Comparison of free-energies then yield a first-order transition line $T = T_c(U)$ for $T < T_{\text{MIT}}$. This has been the subject of many studies in the single orbital case, and is now established on firm grounds. However, no analytical estimate of the critical temperature

T_{MIT} is available. This is highly desirable, since this scale appears to be strongly reduced in comparison to the electronic bandwidth. It would also be interesting to know how this scale depends on the orbital degeneracy.

Let us start with a qualitative argument, which has two merits in our view: (i) it allows us to understand why T_{MIT}/t is such a small energy scale for a small number of orbitals, and (ii) it provides a *lower* bound on T_{MIT} . This argument is based on a comparison of the energy difference between the metallic and insulating solutions at $T=0$, to the corresponding entropy difference. For $U = N\tilde{U}$ close to U_{c2} , the energy difference $\Delta E_0 \equiv E_I(T=0) - E_M(T=0)$ is expected to behave as

$$\Delta E_0 = N \frac{(\tilde{U}_{c2} - \tilde{U})^2}{\tilde{U}_{c2}} + \dots \quad (57)$$

This is indeed supported by the slave-boson calculation of Sec. IV. The entropy difference $\Delta S = S_I - S_M$ is dominated by the entropy of the insulating solution (which has a degenerate ground-state) since the entropy of the metal vanishes linearly with T at low temperature T . Therefore,

$$\Delta S_0 \sim \ln \left(\frac{N}{N/2} \right) \sim N \ln 2. \quad (58)$$

This allows us to estimate the behavior of the first-order critical line $U_c(T)$ [or $T_c(U)$] at low-temperature (i.e., for U close to U_{c2}). Indeed, the transition into the insulating state upon raising temperature occurs when the entropic gain overcomes the energy cost, leading to

$$T_c(U) \approx \frac{(\tilde{U}_{c2} - \tilde{U})^2}{\tilde{U}_{c2}}. \quad (59)$$

This estimate is valid only at very low temperature, close to the $T=0$ critical point $U=U_{c2}$. It indicates a quadratic dependence of the critical line, with a prefactor which is independent of N .²⁹

When U_{c1} is close to U_{c2} , which is the case for a small number of orbitals (in particular in the one-band case), one can roughly estimate the critical endpoint T_{MIT} by using (59) in the regime of couplings where the insulating solution disappears, leading to $T_{\text{MIT}} \approx (\tilde{U}_{c2} - U_{c1}/N)^2 / \tilde{U}_{c2}$. It is clear from this formula that the ratio T_{MIT}/t is small because of the small energy difference between the metallic and insulating solutions. For a larger number of orbitals however, this can only produce a *lower bound* on the critical endpoint T_{MIT} . Indeed, the energy difference close to T_{MIT} is certainly underestimated by (57), while the entropy difference is reduced as compared to $N \ln 2$ since the entropy of the metal cannot be neglected at T_{MIT} (we note that it behaves as γT with $\gamma \propto N$). This argument shows that T_{MIT}/t must either saturate to a constant, or increase with N , as N increases.

We now turn to a more quantitative study of these finite-temperature issues, using the Landau functional formalism introduced in Ref. 14. A functional of the effective hybrid-

MOTT TRANSITION AT LARGE ORBITAL . . .

 PHYSICAL REVIEW B **66**, 205102 (2002)

ization is introduced, which reads, for the N -orbital model on the Bethe lattice (semicircular d.o.s.),

$$F[\Delta] = \frac{N}{2t^2} \frac{1}{\beta} \sum_n \Delta(i\omega_n)^2 + \ln Z_{\text{imp}}[\Delta] \quad (60)$$

in which Z_{imp} is the partition function $Z = \text{Tr} e^{-S_{\text{imp}}}$ of the effective impurity model, defined by the action,

$$S_{\text{imp}} = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger \partial_\tau d_\sigma + \frac{U}{2} \left[\sum_\sigma (d_\sigma^\dagger d_\sigma - n) \right]^2 + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau'). \quad (61)$$

This functional is locally stationary for these hybridization functions which satisfy the DMFT equations,

$$\frac{\delta F}{\delta \Delta} = 0 \Leftrightarrow \Delta(i\omega_n) = t^2 G(i\omega_n). \quad (62)$$

The local stability of these DMFT solutions is controlled by the matrix of second derivatives,

$$\chi_{nm} \equiv \frac{\delta^2 F}{\delta \Delta(i\omega_n) \delta \Delta(i\omega_m)} = \frac{N}{t^2} + K_{nm}, \quad (63)$$

with, using (60), (61),

$$K_{nm} = \frac{1}{\beta^2} \int_0^\beta \cdots \int_0^\beta d\tau_1 d\tau'_1 d\tau_2 d\tau'_2 e^{i\omega_n(\tau'_1 - \tau_1) + i\omega_m(\tau'_2 - \tau_2)} \times \sum_{\sigma_1 \sigma_2} [\langle T_\tau d_{\sigma_1}^\dagger(\tau_1) d_{\sigma_1}(\tau'_1) d_{\sigma_2}^\dagger(\tau_2) d_{\sigma_2}(\tau'_2) \rangle - \langle T_\tau d_{\sigma_1}^\dagger(\tau_1) d_{\sigma_1}(\tau'_1) \rangle \langle T_\tau d_{\sigma_2}^\dagger(\tau_2) d_{\sigma_2}(\tau'_2) \rangle]. \quad (64)$$

A solution of the DMFT equations is locally stable provided the χ_{nm} matrix has no negative eigenvalues when evaluated for this solution. Hence, the couplings $U_{c1}(T)$ [resp. $U_{c2}(T)$] correspond to the instability line of the (U, T) plane along which a negative eigenvalue appears when χ_{nm} is evaluated for the insulating (resp. metallic) solution. For $T = 0$, these instability criteria should coincide with those derived from the projective method described above [as verified below for $U_{c1}(T=0)$]. The critical endpoint $T = T_{\text{MIT}}$ is such that, for $T > T_{\text{MIT}}$, no negative eigenvalue is found, at any coupling U , when the stability matrix is evaluated on the (unique) DMFT solution. It should thus be noted that, in order to determine $(U_{\text{MIT}}, T_{\text{MIT}})$, it is not necessary to know both $U_{c1}(T)$ and $U_{c2}(T)$; either one of them is in principle sufficient.

The practical difficulty in performing this stability analysis at finite temperature is that (i) it requires a knowledge of the finite- T solution of the DMFT equations—or at least a reasonable approximation to it—and (ii) the two-particle correlator (64) must be evaluated for this solution. Completing this program, for arbitrary orbital degeneracy, using numerical methods, is beyond the scope of this paper. However, we would like to present here a simpler calculation which gives some insight in the dependence of $U_{c1}(T)$ (and of T_{MIT}) on

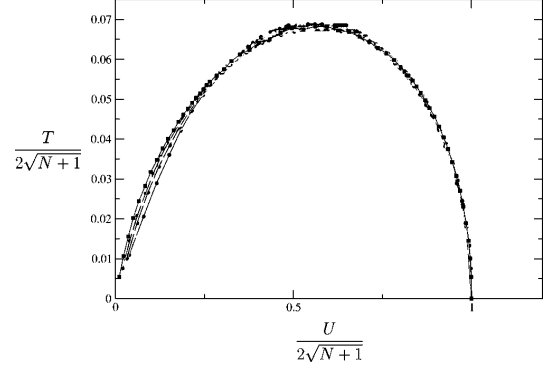


FIG. 1. Instability temperature below which a negative eigenvalue is found when the stability matrix χ_{nm} of Eq. (63) is evaluated in the atomic approximation. The various curves are for increasing number of orbitals ($N=2,4,6,8,10,20$), and an almost perfect scaling with $T/\sqrt{N+1}$ and $U/\sqrt{N+1}$ is found.

the orbital degeneracy N . What we have done is to use the atomic limit as a very rough first approximation to the insulating solution. We have evaluated the two-particle correlator K_{nm} and the stability matrix χ_{nm} in this limit, for arbitrary N . This can be directly implemented on the computer, using the spectral decomposition of K_{nm} onto atomic eigenstates (some details are provided in Appendix B). The stability matrix is then diagonalized numerically (a truncation to a large number of Matsubara frequencies is made), and we search for the line in the (U, T) plane where a negative eigenvalue is first found.

The result of this calculation (for the half-filled case $n = 1/2$) is depicted in Fig. 1. There, the temperature below which a negative eigenvalue is found is plotted as a function of U . We first observe that no instability is found above a critical value of U , which does coincide with the value (16a); $U_{c1}(T=0)/t \approx 4\sqrt{N+1}$ estimated above from the projective method (in the atomic approximation). This is a nontrivial consistency check on our calculations. Secondly, we find that the instability lines for different values of the orbital degeneracy N can all be collapsed on a single curve when both T and U are rescaled by $\sqrt{N+1}$. This can be understood from the fact that, in the atomic limit, only the two scales U and T enter the two-particle correlator K_{nm} (not t), and that K is of order N^2 , so that the instability criterion can be written (from dimensionality considerations), $\tilde{U}/t = \Phi((T/\sqrt{N+1})/\tilde{U})$. Naturally, we do not expect the curve in Fig. 1 to be a quantitatively reliable determination of $U_{c1}(T)$, because of the atomic approximation involved. In particular, we see that, instead of terminating at a critical endpoint $(U_{\text{MIT}}, T_{\text{MIT}})$, the instability line in Fig. 1 bends back, yielding a stability window at small U which is certainly a spurious aspect of the approximation. Hence only the branch of the curve corresponding to larger values of U has physical significance.

It is tempting to conclude, from the observed scaling with $\sqrt{N+1}$, that T_{MIT} itself will grow in that manner as N is increased. Indeed, we note that recent QMC calculations by Amadon and Biermann¹⁸ do show a marked increase of T_{MIT}

S. FLORENS, A. GEORGES, G. KOTLIAR, AND O. PARCOLLET

 PHYSICAL REVIEW B **66**, 205102 (2002)

with N , not inconsistent with a $\sqrt{N}$ scaling. However, we do not consider this issue to be entirely settled; rather, this atomic estimate provides an *upper bound* on the growth of T_{MIT} with N . Indeed, it neglects the presence of the quasi-particle resonance (which is reduced but still present as temperature is raised close to T_{MIT}). The resonance makes the solution less stable, so that the atomic calculation is likely to overestimate T_{MIT} . Combined with the above entropy argument (which provides a lower bound), we conclude that T_{MIT}/t is an increasing function of N at moderate values of N , which either saturates at large- N or increases at most as $\sqrt{N}$. Clearly, a more refined analysis of the above stability condition is required to settle this issue.

VI. CONCLUSION

In this paper, we have studied the Mott transition of the N -orbital Hubbard model in the fully symmetric case. The physical picture is qualitatively the same as for $N=2$, i.e., a coexistence region exists between an insulating and a metallic solution within two distinct critical couplings U_{c1} and U_{c2} . We have shown that these critical couplings *do not have the same dependence on the number of orbitals*, as the latter becomes large; $U_{c1} \propto \sqrt{N}$ while $U_{c2} \propto N$. We have obtained an exact analytical determination of the critical value $\tilde{U}_{c2} = U_{c2}/N$ in this limit. These results explain the widening of the coexistence window $[U_{c1}, U_{c2}]$ observed in the numerical simulations of Ref. 17, and more recently in Ref. 18. Our findings also put the results of Refs. 20 and 21 in a new perspective, as discussed in the Introduction.

We have shown that, at large N and close to the critical coupling U_{c2} , the scaling $U = N\tilde{U}$ is appropriate, so that the separation of scale which is at the heart of the projective method becomes asymptotically exact. The low-energy physics close to U_{c2} is then well described by slave-boson-like approximations. This is the case in particular for the quasi-particle peak in the spectral function, which is separated from Hubbard bands by a large energy (of order $N\tilde{U}$) and is accurately described by the simple form (32). In view of practical applications to electronic structure calculations with large orbital degeneracy (e.g., f -electron systems), it would be highly desirable to have also an analytical determination of the high-energy part of the spectral function in the large- N limit (or at least reasonable approximations to it). This is left for future investigations.

Another issue that we have only partly addressed is the finite-temperature aspects of these transitions. The whole finite-temperature coexistence region widens as N is increased, and the critical temperature associated with the Mott critical endpoint does increase with the number of orbitals at intermediate values of N . The precise behavior of T_{MIT}/t at large N deserves further studies, however.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank B. Amadon and S. Biermann for useful discussions, and for sharing with us their recent QMC numerical results for this model. This work was supported by the NSF

under Grant No. NSF DMR 0096462 and by the PICS program of the CNRS (under Contract No. PICS 1062).

APPENDIX A: LARGE- N SCALINGS AND THE ATOMIC LIMIT

In this Appendix, we provide a detailed proof that the corrections in V_H to the atomic limit ($V_H=0$) do not modify the large- N dependence of the critical couplings. This is done by an explicit investigation of the structure of these corrections. Moreover, we show that for $U \propto N$ (i.e., when U_{c2} is considered), these corrections only produce subdominant terms which can be ignored at large N .

1. Corrections in V_H for $U = N\tilde{U}$

For our purpose, the operator H_H can be written,

$$H_H = H_H^0 + H_H^1,$$

$$H_H^0 = \sum_{k \in H^\pm, \sigma} \epsilon_k c_{k,\sigma}^\dagger c_{k,\sigma} + \frac{U}{2} \left[\sum_{\sigma} (d_{\sigma}^\dagger d_{\sigma} - n) \right]^2,$$

$$H_H^1 = V_H \sum_{\sigma} \sum_k c_{k,\sigma}^\dagger d_{\sigma} + d_{\sigma}^\dagger c_{k,\sigma}. \quad (\text{A1})$$

First, let us consider the ground state energy E_{gs} . As the lower Hubbard band H^- is filled in $|\mu\rangle_0$, we prefer to remove the constant contribution $\sum_{k \in H^-, \sigma} \epsilon_k$, so that the zeroth order energy is $E_0 = {}_0\langle \mu | H_H^0 | \mu \rangle_0 = 0$. The next order term $\delta E_1 = {}_0\langle \mu | H_H^1 | \mu \rangle_0$ is zero by conservation of the total charge Q on the d -level, so we need to look at the second order contribution,

$$\delta E_2 = \sum_{|\psi\rangle} \frac{|\langle \psi | H_H^1 | \mu \rangle_0|^2}{E_0 - E_{\psi}}$$

$$= -(N-Q) \sum_{k \in H^-} \frac{V_H^2}{\frac{U}{2} - \epsilon_k} - Q \sum_{k \in H^+} \frac{V_H^2}{\frac{U}{2} + \epsilon_k} \quad (\text{A2})$$

since $|\psi\rangle$ can only possess a charge $Q+1$ (resp. $Q-1$) for the d -electron and a hole (resp. particle) excitation in the bath. Clearly as ϵ_k is negative (positive) for $k \in H^-$ (H^+), the denominators are of order N (since $U = N\tilde{U}$) and δE_2 is therefore scaling as N^0 at large N . We would like to infer this to be true at all order in the development in V_H . One can easily classify into two categories the intermediate states that appear at order V_H^4 and beyond. There can either be a charge different from Q on the impurity (as in the previous computation at order V_H^2) and then the denominator coming from this state provides (at least) a factor N^{-1} by the presence of the Coulomb energy $U = N\tilde{U}$. Or the impurity can be found in a charge Q state (with possibly a reorganization of the spin configuration) without a Coulomb energy cost. However this state possesses also many particle-hole excitations in the bath, and this leads to a denominator which scales as the Mott gap Δ_g . For example, let us consider such a ket generated at order V_H^4 , like $|\sigma_1 \dots \sigma_Q\rangle_d |2 \dots N\rangle_- |1\rangle_+$. This par-

ticular state (but the argument is general), contributes a factor $(\epsilon_k - \epsilon_{k'})^{-1}$, where $k \in H^-$ and $k' \in H^+$. This quantity is always smaller than Δ_g^{-1} because the Mott gap Δ_g is also the gap of the $c_{k,\sigma}$ electrons (through the self-consistency). As the gap Δ_g is expected to be of order $U = N\tilde{U}$ when U is close to U_{c2} , each particle-hole excitation also provides a factor N^{-1} in the perturbative expansion. This is enough to conclude that, at a given order in perturbation theory, each of the denominator gives a factor N^{-1} that balance the combinatorial factor coming from the string of charge excitation on the impurity level. Thus E_{gs} is at most of order 1 when N is large.

We finally need to compute $J_{\mu\nu}^{\sigma\sigma'}$ at large N . Let us consider first the case $\mu \neq \nu$, so that μ and ν will differ by only one spin flip $\sigma \leftrightarrow \sigma'$. We can now calculate at the lowest order in V_H the desired matrix element,

$$\Gamma \equiv \left\langle \mu \left| d_{\sigma_{H_H^0 + H_H^1 - E_{gs}}} d_{\sigma'}^\dagger \right| \nu \right\rangle, \quad (A3)$$

with

$$\begin{aligned} |\mu\rangle &\equiv |\mu\rangle_0 + |\mu\rangle_1, \\ |\mu\rangle_1 &= \sum_{k \in H^-, \sigma} \frac{V_H}{U} d_{\sigma}^\dagger c_{k,\sigma} |\mu\rangle_0 \\ &+ \sum_{k \in H^+, \sigma} \frac{V_H}{U} c_{k,\sigma}^\dagger d_{\sigma} |\mu\rangle_0. \end{aligned} \quad (A4)$$

The contribution at order $(V_H)^0$ is therefore

$$\delta\Gamma_0 = \left\langle \mu \left| d_{\sigma_{H_H^0 - E_{gs}}} d_{\sigma'}^\dagger \right| \nu \right\rangle_0 \sim \frac{2}{U} \quad (A5)$$

because $E_{gs} = \mathcal{O}(1)$ and $U = N\tilde{U}$. All terms coming at order V_H cancel by conservation of the charge, so we examine now the next leading order for Γ , $\delta\Gamma_2$, which is composed of three terms: one from the correction by V_H to each of the two external kets, one from the development of the denominator in (A5) at order V_H^2 , and a mixed term (between only one ket correction and the denominator developed at first order). Let us examine the first of these second order contributions,

$$\delta\Gamma_2^{(1)} = \left\langle \mu \left| d_{\sigma_{H_H^0 - E_{gs}}} d_{\sigma'}^\dagger \right| \nu \right\rangle_1. \quad (A6)$$

The state $d_{\sigma'}^\dagger |\nu\rangle_1$ is composed of charge $Q+2$ excitations (with energy $2^2 U/2$) and of particle-hole excitations in the bath with a charge Q on the impurity (this has the energy $\epsilon_k - \epsilon_{k'}$). Both energies scale like N and contribute an overall factor N^{-3} to $\delta\Gamma_2^{(1)}$. There is also a combinatorial factor of order N coming from the choice in the spin-excitation in $|\nu\rangle_1$, but there is none from the state $|\mu\rangle_1$ as the spin configuration in $d_{\sigma'}^\dagger |\mu\rangle_1$ is fixed by the one in $d_{\sigma'}^\dagger |\nu\rangle_1$. There-

fore $\delta\Gamma_2^{(1)} = \mathcal{O}(N^{-2})$. The same argument works for the two other contribution at order V_H^2 .

More generally, at a given order p in the development in V_H , each of the $p+1$ denominators provides a factor of order N^{-1} , because there is a finite gap $\Delta_g \sim U_{c2} \propto N$ between the two Hubbard bands.³⁰ However the string of p spin-flips generated by the H_{mix} terms only contributes to an overall combinatorial factor at most $N^{p/2}$ because one has to connect two fixed external configurations $|\nu\rangle$ and $|\mu\rangle$. Hence in the limit of large N all terms after the first one are subdominant, so that

$$\Gamma = \delta\Gamma_0 + \mathcal{O}\left(\frac{1}{N^2}\right) = \frac{2}{U} = \frac{2}{N\tilde{U}} \quad (A7)$$

meaning that the atomic result for Γ is exact in the large- N limit when $U \propto N$.

At this stage, we want to stress *a posteriori* that the hypotheses made in the preceding argument are consistent with this result. First it is correct to fix the chemical potential $\tilde{\mu} = 0$ from the atomic limit ($V_H = 0$), because perturbative corrections do not change the occupancy of the d -orbital, as can be checked from a direct expansion in V_H of $\langle \sum_{\sigma} d_{\sigma}^\dagger d_{\sigma} \rangle$. Finally the existence of a large Mott gap $\Delta_g \propto N$ can also be justified on the same grounds.

2. Some remarks about U_{c1}

When $U \propto \sqrt{N}$ on the other hand, the perturbative series for Γ does not appear to stop after the first contribution, showing that U_{c1} is affected by V_H in the large N limit. It is however straightforward to follow the line of arguments given in Sec. III C to see that each term in this development provides a leading contribution of order $1/\sqrt{N}$ (using $U \sim \Delta_g \propto \sqrt{N}$). Γ cannot be computed exactly in that case, because $B(N, n; V_H / (\sqrt{N}\tilde{U}))$ is now a nontrivial function of $V_H / \tilde{U}$ at $N = \infty$. But this is enough to conclude that $B(N, n; V_H / U)$ is of order 1 at large N when $U \propto \sqrt{N}$, so that the result $U_{c1} \sim \sqrt{N}\tilde{U}_{c1}$ holds. However, an exact evaluation of $\tilde{U}_{c1}$ appears to be a difficult task, even at $N = \infty$.

APPENDIX B: NUMERICAL CALCULATION OF THE STABILITY MATRIX IN THE ATOMIC LIMIT

In this appendix, we provide details on the computation of the stability matrix χ_{nm} in the N -orbital atomic limit (cf. Fig. 1). First, we use a spectral decomposition over the atomic eigenstates in Eq. (64). This yields

$$K_{nm} = A(i\omega_n, -i\omega_n, i\nu_n, -i\nu_n) / Z_{at} - B(i\omega_n) B(i\nu_n) / Z_{at}^2$$

with

$$Z_{at} = \sum_{Q=0}^N e^{-\beta E_Q} \binom{N}{Q},$$

$$A(\omega_j, j=1 \cdots 4) \equiv N \sum_{\substack{0 \leq Q \leq N \\ P \in S_4}} e^{-\beta E_Q} \epsilon(P) (C_1(Q, P) + (N-1)C_2(Q, P)) F_4(\omega_{P(j)} + \Delta_Q + \sum_{i=j+1}^4 a_{P(i)}, a_{P(j)}), \quad j=1 \cdots 4,$$

$$B(i\omega_n) \equiv N \sum_{Q=0}^N e^{-\beta E_Q} \left[\binom{N-1}{Q-1} F_2(i\omega_n + \Delta_{Q-1,1}, -i\omega_n + \Delta_{Q,-1}) - \binom{N-1}{Q} F_2(-i\omega_n + \Delta_{Q+1,-1}, i\omega_n + \Delta_{Q,1}) \right],$$

$$C_2(Q, P) \equiv \begin{cases} \epsilon(P) \binom{N-2}{Q-2} & \text{if } P^{-1}(1) < P^{-1}(2) \text{ and } P^{-1}(3) < P^{-1}(4) \\ \epsilon(P) \binom{N-2}{Q} & \text{if } P^{-1}(1) > P^{-1}(2) \text{ and } P^{-1}(3) > P^{-1}(4), \\ -\epsilon(P) \binom{N-2}{Q-1} & \text{else} \end{cases}$$

$$C_1(Q, P) \equiv \begin{cases} \binom{N-1}{Q-1} & \text{if } P^{-1}(\{1,3\}) = \{1,3\} \\ \binom{N-1}{Q} & \text{if } P^{-1}(\{1,3\}) = \{2,4\} \\ 0 & \text{else} \end{cases}$$

$$F_n(\omega_j, j=1 \cdots n) \equiv \int_{\beta > \tau_1 > \cdots > \tau_n} \left(\prod_{i=1}^n d\tau_i \right) \exp \left(\sum_{i=1}^n \omega_j \tau_j \right).$$

In these expressions, $E_Q \equiv U(Q - N/2)^2/2$ are the atomic energy levels, $\Delta_{Q,a} \equiv E_{Q+a} - E_Q$, ϵ is the signature of the permutation P , and we used the notation $f(x_j, j=1 \cdots 4) \equiv f(x_1, x_2, x_3, x_4)$. We compute F_4 and F_2 , using the relations $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 = 0$ and $\omega_1 + \omega_2 = 0$, respectively. The algorithm can be decomposed into three functions: (i) From U and T , compute χ_{nm} for $|n|, |m| < 100$ and then its lowest eigenvalue $E_0(U, T)$; (ii) Find a point p_0 below the instability temperature T_i and a majoration T_M of $\max(T_i)$ and U_M of U_{c1} ; define a path in the (U, T) from $(0, 0)$ to $(0, T_M)$ to (U_M, T_M) to $(U_M, 0)$; (iii) For about 50 points p on this path, solve for $E_0(U, T) = 0$ on the line defined by p and p_0 using a dichotomy. To speed up the computation, the sums over permutations and Q in A and B are expanded automatically into $C++$ code, which is inlined in the main program. Diagonalizations are performed using the Fortran LAPACK library. Codes will be available at www.sph.tcea.fr/parcolle/.

¹For a review, see, e.g., M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, Rev. Mod. Phys. **70**, 1039 (1998).

²For a review, see, e.g., O. Gunnarsson, Rev. Mod. Phys. **69**, 575 (1996).

³S. Lefebvre, P. Wzietek, S. Brown, C. Bourbonnais, D. Jérôme, C. Mézière, M. Fourmigué, and P. Batail, Phys. Rev. Lett. **85**, 5420 (2000).

⁴For a review, see, e.g., *Strong Coulomb Correlations in Electronic Structure Calculations*, edited by V. Anisimov (Gordon and Breach, New York 2001).

⁵W. Metzner and D. Vollhardt, Phys. Rev. Lett. **62**, 324 (1989).

⁶A. Georges and Kotliar, Phys. Rev. B **45**, 6479 (1992).

⁷For a review, see A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. **68**, 13 (1996).

⁸For a review, see, T. Pruschke, M. Jarrell, and J. K. Freericks, Adv. Phys. **42**, 187 (1995).

⁹M. Jarrell, Phys. Rev. Lett. **69**, 168 (1992); M. Rozenberg, X. Y.

Zhang, and G. Kotliar, *ibid.* **69**, 1236 (1992); A. Georges and W. Krauth, *ibid.* **69**, 1240 (1992).

¹⁰X. Y. Zhang, M. J. Rozenberg, and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **70**, 1666 (1993); A. Georges and W. Krauth, Phys. Rev. B **48**, 7167 (1993); M. Rozenberg, G. Kotliar, and X. Y. Zhang, *ibid.* **49**, 10181 (1994).

¹¹M. Rozenberg, G. Kotliar, H. Kajuter, G. A. Thomas, D. H. Rapkine, J. M. Honig, and P. Metcalf, Phys. Rev. Lett. **75**, 105 (1995).

¹²G. Moeller, Q. Si, G. Kotliar, M. Rozenberg, and D. S. Fisher, Phys. Rev. Lett. **74**, 2082 (1995).

¹³G. Moeller, Ph.D. Rutgers (unpublished); <http://www.physics.rutgers.edu/~kotliar/thesis/moeller.ps.gz>.

¹⁴G. Kotliar, Eur. Phys. J. B **11**, 27 (1999); G. Kotliar, E. Lange, and M. J. Rozenberg, Phys. Rev. Lett. **84**, 5180 (2000).

¹⁵J. Joo and V. Oudovenko, Phys. Rev. B **64**, 193102 (2001).

¹⁶R. Bulla, Adv. Solid State Phys. **40**, 169 (2000); R. Bulla,

- T. Costi, and D. Vollhardt, Phys. Rev. B **64**, 045103 (2001).
- ¹⁷ M. J. Rozenberg, Phys. Rev. B **55**, R4855 (1997).
- ¹⁸ B. Amadon and S. Biermann (unpublished).
- ¹⁹ This applies provided the bare density of states has a sufficiently smooth variation with energy, which is the case of the model d.o.s. considered in this paper.
- ²⁰ O. Gunnarsson, E. Koch, and R. Martin, Phys. Rev. B **54**, R11026 (1996).
- ²¹ J. E. Han, M. Jarrell, and D. L. Cox, Phys. Rev. B **58**, R4199 (1998).
- ²² M. Caffarel and W. Krauth, Phys. Rev. Lett. **72**, 1545 (1994); Q. Si, M. Rozenberg, G. Kotliar, and A. Ruckenstein, *ibid.* **72**, 2761 (1994).
- ²³ G. Kotliar and H. Kajueter, Phys. Rev. B **54**, R14221 (1996); H. Kajueter and G. Kotliar, Int. J. Mod. Phys. **11**, 729 (1997).
- ²⁴ N. Read and D. M. Newns, Adv. Phys. **36**, 799 (1987).
- ²⁵ P. Lu, Phys. Rev. B **49**, 5687 (1994).
- ²⁶ G. Kotliar and A. Ruckenstein, Phys. Rev. Lett. **52**, 1362 (1986).
- ²⁷ R. Fresard and G. Kotliar, Phys. Rev. B **56**, 12909 (1997); H. Hasegawa, J. Chem. Phys. **66**, 3522 (1997).
- ²⁸ R. Raimondi and C. Castellani, Phys. Rev. B **48**, 11453 (1993).
- ²⁹ One should note however that the large- N solution of Sec. III suggests that the temperature above which the metallic solution disappears (spinodal) has a different temperature dependence, $T \propto (\tilde{U} - \tilde{U}_{c2})^{3/2}$.
- ³⁰ A. Georges and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **84**, 3500 (2000).

5. Effets des fluctuations spatiales et de l'écrantage sur la transition de Mott

Le but de ce chapitre est de tenter de lever quelques limitations inhérentes à la théorie de champ moyen dynamique. La technique de rotateur esclave développée précédemment sera très utile dans ce but, et va nous permettre dans un premier temps d'étudier de nouveaux effets dus à la dimension finie dans la phase paramagnétique du modèle de Hubbard (section 5.1), ce qui conduira à une modification plausible du scénario DMFT de la transition de Mott ¹. Nous allons ensuite examiner une extension locale du champ moyen dynamique qui permet l'inclusion d'interactions à plus longue portée (section 5.2), motivée par la question de la dégradation de l'écrantage au voisinage de la transition métal-isolant ².

5.1 Scénario pour la transition de Mott en dimension finie

5.1.1 Motivation

Les résultats connus sur la transition de Mott et illustrés dans les chapitres précédents (caractère premier ordre de la transition, état métallique fortement renormalisé, crossovers entre les différents régimes de conduction) constituent en quelque sorte la trinité de la théorie de champ moyen dynamique. Nous avons conduit au chapitre 2 une comparaison assez détaillée entre cette théorie et les résultats expérimentaux obtenus sur des systèmes de fermions corrélés, qui semble en effet confirmer ces prédictions.

Nous allons essayer ici de pointer du doigt quelques insuffisances de cette description théorique. En effet, bien qu'il reste de nombreuses questions autour des systèmes de fermions corrélés à deux dimensions (nature de l'isolant de Mott, instabilité du liquide de Fermi...), on peut cependant anticiper quelques effets simples qui sont absents de la solution DMFT, et que l'on s'attend à observer expérimentalement. On va questionner ici le caractère local de la self-énergie en DMFT, qui conduit à une divergence de la masse effective à la transition de Mott. Cet effet a le mauvais goût de conduire à l'annulation du facteur de Wilson au point critique, en contradiction évidente avec les expériences, comme l'indique la figure 1.5. On peut penser qu'en réalité les fluctuations magnétiques permettent de couper cette divergence. Dit autrement, l'excès d'entropie de la phase isolante doit être évacuée par le couplage entre les moments magnétiques (grâce à l'interaction d'échange).

¹Ce travail a été réalisé en collaboration avec A. Georges (article en préparation).

²Ce travail a été réalisé en collaboration avec A. Georges et L. de' Medici (article en préparation).

La remarque précédente nous mène à reconsidérer le scénario proprement dit de la transition de température nulle. Rappelons d'abord que l'on peut classer les approches théoriques du phénomène en deux catégories différentes, mais complémentaires. Une première idée est d'aborder la transition par le côté itinérant, en partant d'un état métallique qui est progressivement renormalisé par les interactions, et qui finit par disparaître lorsque la répulsion coulombienne est trop importante : c'est le scénario de Brinkman-Rice [1], que l'on a illustré aux sections 4.1 et 4.3, et qui correspond à la situation près de U_{c2} en champ moyen dynamique. L'autre approche consiste à se focaliser sur l'isolant de Mott (typiquement grâce à un développement de couplage fort, ou par troncation des équations du mouvement du modèle de Hubbard), et à réaliser la transition par fermeture du gap de Mott : c'est le scénario de Mott-Hubbard [2] qui est illustré par la transition à U_{c1} en champ moyen dynamique ³. En fin de compte, DMFT aboutit à une transition du premier ordre à température finie dans la mesure où elle réalise une séparation entre ces deux phénomènes, c'est à dire $U_{c1} < U_{c2}$ strictement [3]. Alors que le caractère premier ordre ne fait pas de doute au vu des expériences sur V_2O_3 et sur les organiques bidimensionnels, on peut se demander si la séparation d'échelle stricte que l'on trouve en DMFT peut être due à une certaine singularité de la limite de dimension infinie ⁴.

Il est difficile d'apporter une réponse aux interrogations précédentes. Il faut en effet remarquer qu'il n'existe pas de technique fiable qui permette de décrire d'une manière équitable l'état métallique renormalisé et la physique de Mott, pour des modèles de dimension finie. Nous allons voir ici que les rotateurs esclaves apportent une première réponse à cette question.

5.1.2 Modèle de Hubbard à trois dimensions : rotateurs esclaves

L'idée est d'utiliser la représentation $d_\sigma^\dagger = f_\sigma^\dagger e^{i\theta}$ pour étudier directement le modèle de Hubbard en dimension finie. Pour cela, on démarre avec l'écriture de ce modèle en terme de phases, équation (4.1), et on s'apprête à réaliser une approximation analogue à celle menée sur l'hamiltonien d'Anderson à la section 3.4. On part de l'expression de l'action en temps imaginaire :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_{i\sigma} f_{i\sigma}^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0 - h_i) f_{i\sigma} + \sum_i \frac{(\partial_\tau \theta_i + i h_i)^2}{2U} - \sum_{ij\sigma} t_{ij} f_{i\sigma}^\dagger f_{j\sigma} e^{i\theta_i - i\theta_j} \quad (5.1)$$

qu'on découple avec des variables bosoniques vivant sur les liens du réseau :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_{i\sigma} f_{i\sigma}^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0 - h_i) f_{i\sigma} + \sum_i \frac{(\partial_\tau \theta_i + i h_i)^2}{2U} + \sum_{ij} \left[t_{ij} Q_{ij} \bar{Q}_{ij} - \bar{Q}_{ij} t_{ij} e^{i\theta_i - i\theta_j} - \sum_\sigma Q_{ij} t_{ij} f_{i\sigma}^\dagger f_{j\sigma} \right] \quad (5.2)$$

On écrit ensuite une représentation généralisée pour le rotateur, avec des variables angulaires $O(M)$, $e^{i\theta_i} \rightarrow X_{i\alpha}$, imposant la contrainte $\sum_\alpha |X_{i\alpha}|^2 = M$, où $\alpha = 1 \dots M$. On a donc

³En fait, l'annulation du gap de Mott à U_{c1} est prouvée pour la solution IPT, mais il se pourrait que le gap ne se ferme pas complètement dans la solution exacte des équations DMFT.

⁴La séparation $U_{c1} < U_{c2}$ a longtemps été débattue en champ moyen dynamique même, mais est à l'heure actuelle complètement établie à partir des équations DMFT [4, 5].

l'expression suivante :

$$\begin{aligned}
 S = & \int_0^\beta d\tau \sum_{i\sigma} f_{i\sigma}^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_0 - h_i) f_{i\sigma} + \sum_{i\alpha} \left[\frac{|\partial_\tau X_{i\alpha}|^2}{2U} - \frac{h_i}{U} X_{i\alpha} \partial_\tau X_{i\alpha}^* + \lambda_i (|X_{i\alpha}|^2 - M) \right] \\
 & + \int_0^\beta d\tau M \sum_{ij} t_{ij} Q_{ij} \bar{Q}_{ij} - \sum_{ij\sigma} t_{ij} Q_{ij} f_{i\sigma}^\dagger f_{j\sigma} - \sum_{ij\alpha} t_{ij} \bar{Q}_{ij} X_{i\alpha} X_{j\alpha}^* + M \sum_i \left(h_i - \frac{h_i^2}{2U} \right) \quad (5.3)
 \end{aligned}$$

que l'on résoud dans la limite N et M grand ⁵. En supposant l'invariance par translation dans l'espace, on aboutit à des équations de col simples ⁶, que l'on écrit dans le cas particule-trou symétrique ($\epsilon_0 = h = 0$) :

$$1 = \int d\epsilon D(\epsilon) \frac{1}{\beta} \sum_{\nu_n} \frac{1}{\nu_n^2/U + \lambda + \bar{Q}\epsilon} \quad (5.4)$$

$$DQ = - \int d\epsilon D(\epsilon) \epsilon \frac{1}{\beta} \sum_{\nu_n} \frac{1}{\nu_n^2/U + \lambda + \bar{Q}\epsilon} \quad (5.5)$$

$$D\bar{Q} = -2 \int d\epsilon D(\epsilon) \epsilon n_F(Q\epsilon) \quad (5.6)$$

On a noté $D(\epsilon)$ la densité d'état libre, de demi-largeur D ($D = 2td$ pour le réseau hypercubique en d dimensions), et posé $N/M = 2$ par analogie avec le cas physique.

□ Nouveau scénario pour la transition de Mott

La première des équations de col est l'équation de gap du modèle sigma (dans la limite de grande dégénérescence [7]), ce qui laisse entrevoir la possibilité d'une transition de phase pour les variables bosoniques, qui n'est d'autre que la transition de Mott dans la formulation de rotateurs esclaves. En effet, à température nulle, on obtient d'abord :

$$D\bar{Q} = -2 \int_{-D}^0 d\epsilon D(\epsilon) \epsilon \quad (5.7)$$

ce qui permet de déterminer le gap $\Delta \equiv \lambda - \bar{Q}D$ dans le secteur de charge grâce à la condition (5.4) :

$$1 = \int d\epsilon D(\epsilon) \frac{1}{2} \sqrt{\frac{U}{\Delta + \bar{Q}(D + \epsilon)}} \quad (5.8)$$

Lorsque $d > 1$, cette intégrale converge à la borne $\epsilon = -D$ pour toute valeur du gap, et l'équation ne présente pas de solution lorsque U est en-dessous d'une valeur minimale U_c à laquelle le gap s'annule :

$$U_c = -8 \int_{-D}^0 d\epsilon D(\epsilon) \epsilon \left[\int d\epsilon \frac{D(\epsilon)}{\sqrt{1 + \epsilon/D}} \right]^{-2} \quad (5.9)$$

⁵Pour être tout à fait honnête, il faut dire que cette solution correspond à un champ moyen sur les paramètres de liens $\langle f_{i\sigma}^\dagger f_{j\sigma} \rangle$ et $\langle X_i X_j^* \rangle$ [6]. La formulation $O(M)$ est plus intéressante dans le cas du modèle d'impureté car elle fait ressortir le caractère multicanal de l'approximation.

⁶On a redéfini $U \rightarrow U/2$ pour avoir la limite atomique correcte.

Ainsi, pour satisfaire (5.8) lorsque $U < U_c$, il convient de conserver une somme discrète sur l'impulsion, au lieu d'une intégrale continue, ce qui montre l'apparence d'un condensat de Bose dans le mode $\vec{k} = \vec{0}$. L'amplitude de condensation n_0 dans ce cas est déterminée par la condition :

$$1 = n_0 + \int d\epsilon D(\epsilon) \frac{1}{2} \sqrt{\frac{U}{Q(D + \epsilon)}} \quad (5.10)$$

et donne de même une contribution à la fonction de Green des rotateurs :

$$G_X(i\nu, \vec{k}) = n_0 \delta(\nu) \delta(\vec{k}) + \frac{1}{\nu^2/U + Q(D - \epsilon_{\vec{k}})} \quad (5.11)$$

D'après la forme du propagateur fermionique

$$G_f(i\omega, \vec{k}) = \frac{1}{i\omega - Q\epsilon_{\vec{k}}} \quad (5.12)$$

on déduit que la phase de symétrie brisée est associée à l'état métallique, comme le démontre le propagateur des fermions physiques :

$$G_d(\tau, \vec{x}) = G_f(\tau, \vec{x}) G_X(\tau, \vec{x}) \quad (5.13)$$

$$G_d(i\omega, \vec{k}) = \frac{n_0}{i\omega - Q\epsilon_{\vec{k}}} + G_d^{\text{inc.}}(i\omega, \vec{k}) \quad (5.14)$$

qui possède une partie cohérente (provenant du condensat) ainsi qu'un terme de haute énergie (incohérent). Dans la phase où les rotateurs sont désordonnés ($n_0 = 0$), la charge est bloquée et le pic de quasiparticule a complètement disparu pour laisser place à l'isolant de Mott (cette image est analogue à celle obtenue à la section 4.1). On observe cependant une différence importante par rapport au résultat des bosons esclaves (et de la théorie de champ moyen dynamique). En effet, en se concentrant sur la partie cohérente de la fonction de Green, on trouve :

$$Z \equiv \frac{1}{1 - \frac{\partial \Sigma}{\partial \omega}(\omega = 0, \vec{k} = \vec{k}_F)} = n_0 \quad (5.15)$$

$$\frac{m}{m^*} \equiv \frac{1 + \frac{\partial \Sigma}{\partial \epsilon_k}(\omega = 0, \vec{k} = \vec{k}_F)}{1 - \frac{\partial \Sigma}{\partial \omega}(\omega = 0, \vec{k} = \vec{k}_F)} = Q \quad (5.16)$$

On constate ainsi que le poids de quasiparticule Z et l'inverse de la masse effective m/m^* sont désormais deux quantités différentes *a priori*, à cause de la dépendance en $\vec{k}$ de la self-énergie⁷. Ce résultat affecte profondément les propriétés critiques de la transition de Mott, car l'annulation de Z (i.e. la décondensation du boson n_0) ne s'accompagne pas d'une divergence de m^* . En effet l'équation (5.5) donne :

$$Q = n_0 - \int d\epsilon D(\epsilon) \frac{\epsilon}{2D} \sqrt{\frac{U}{Q(D + \epsilon)}} \quad (5.17)$$

⁷Ce n'est pas le cas dans la théorie de Brinkman-Rice ou en DMFT, où l'on a $Q = n_0$.

5.1. SCÉNARIO POUR LA TRANSITION DE MOTT EN DIMENSION FINIE

Lorsque n_0 s'annule (transition de Mott), Q reste effectivement fini. On peut penser que les corrélations magnétiques à courte portée sont responsables de cette coupure dans la masse effective, comme le suggère un calcul réalisé en dopant l'isolant de Mott, qui fait apparaître explicitement l'énergie d'échange ($J = 2t^2/U$) :

$$\frac{m^*}{m} \sim \frac{1}{t/U + |\delta|} \quad (5.18)$$

où δ est le dopage en trou. Pour faire ce calcul, il faut introduire un multiplicateur de Lagrange supplémentaire afin de tenir compte de la contrainte $\langle \hat{L}_i \rangle = \langle \sum_{\sigma} f_{i\sigma}^{\dagger} f_{i\sigma} \rangle$ ⁸.

La conclusion de cette analyse est que les deux scénarios standards de la transition de Mott (Brinkman-Rice et Mott-Hubbard) peuvent être réconciliés au point critique de température nulle, mais d'une manière assez différente que celle proposée par DMFT. Dans notre approche, l'annulation du poids de quasi-particule n_0 et l'ouverture du gap de Mott Δ est concomitante à U_c . Cela impose cependant une modification importante de ces deux paradigmes : du côté métallique, la masse effective ne diverge pas à la transition, tandis que du côté isolant, on a des excitations de basse énergie à une échelle inférieure à l'énergie de Coulomb U . L'illustration graphique de ce scénario est présentée à la figure 5.1. On peut aussi visualiser plus clairement

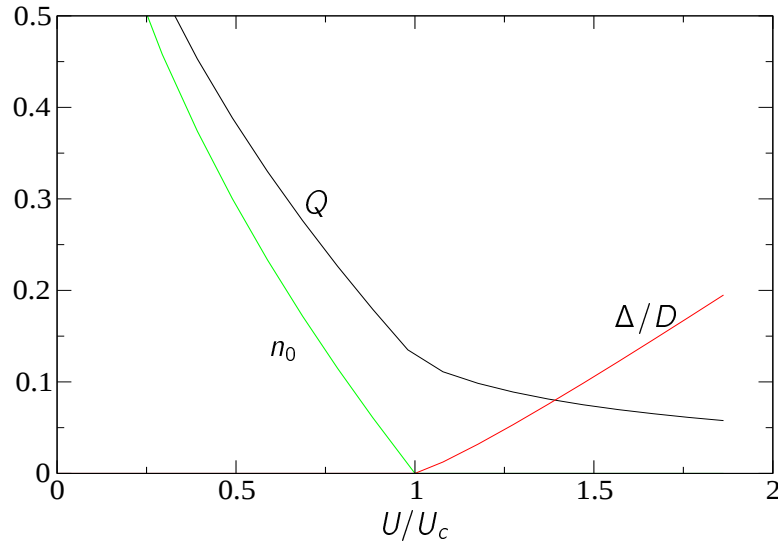


Fig. 5.1 – Scénario à trois dimensions pour la transition de Mott induite par les corrélations.

ce résultat en calculant la densité d'états locale :

$$\begin{aligned} \rho_d(\omega) &= -\frac{1}{\pi} \text{Im} \sum_{\vec{k}} G_d(\omega + i0^+, \vec{k}) \\ &= \frac{n_0}{Q} D\left(\frac{\omega}{Q}\right) - \int \frac{du}{Q\bar{Q}} \text{Sign}(u) D\left(\frac{u^2 - U\lambda}{U\bar{Q}}\right) D\left(\frac{\omega - u}{Q}\right) [n_F(\omega - u) + n_B(-u)] \end{aligned} \quad (5.19)$$

⁸L'extension des équations de col hors du demi-remplissage ne pose pas de problème de principe, mais dans ce cas la limite atomique n'est pas bien décrite à cause de la limite de M grand.

que l'on évalue numériquement pour différentes valeurs de U (voir la figure 5.2). On constate ainsi la disparition graduelle de la résonance de basse énergie, qui, au point critique, s'effondre verticalement au lieu de s'amincir comme dans l'image de DMFT. Le second terme dans (5.11)

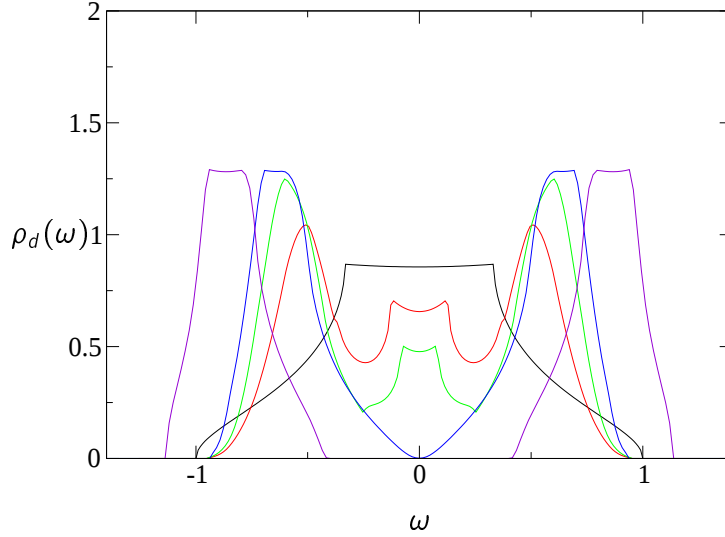


Fig. 5.2 – Densité d'états locale de température nulle, à travers la transition de Mott, avec $U = 0, U_c/2, U_c, 3U_c/2$ (pour un réseau cubique et $D = 1$).

est à l'origine de la contribution de haute énergie apparaissant dans la densité d'états (5.19), et décrit les deux bandes de Hubbard visibles à la figure 5.2. Il contient par ailleurs une composante non massive pour $U < U_c$ qui est responsable de l'ouverture continue du gap de Mott à U_c , pour toute dimension finie, qui se manifeste par des queues de basse fréquence que l'on observe clairement à la figure précédente [8].

□ Limite $d = \infty$ et comparaison avec DMFT

On peut bien sûr résoudre les équations de col (5.4-5.6) dans la limite $d = \infty$ (sans passer par la formulation de champ moyen dynamique), et observer des changements dramatiques par rapport au cas $d = 3$. Pour cela on prend un terme de saut proportionnel à $1/\sqrt{d}$, et l'on trouve aisément à partir des équations de champ-moyen :

$$Q = n_0 \text{ à } d = \infty \quad (5.20)$$

C'est donc le scénario DMFT (ou Brinkman-Rice) de la transition de Mott que l'on retrouve ainsi (comme illustré à la figure 5.3). De plus, on peut se convaincre qu'au point critique les queues des bandes de Hubbard s'étendent à basse fréquence comme ω^{d-1} , et ne survivent pas à la limite $d = \infty$, comme le montre la figure 5.4. On retrouve donc un gap préformé à la transition de Mott dans la limite de grande dimension, mettant les résultats de la théorie de champ moyen dynamique dans une nouvelle perspective. En effet, en DMFT il y a une séparation d'échelle stricte au point critique de température nulle (la densité d'états est nulle

5.1. SCÉNARIO POUR LA TRANSITION DE MOTT EN DIMENSION FINIE

pour $|\omega| < \Delta$), mais on constate que cette séparation persiste de façon *approchée* jusqu'en dimension trois, comme l'illustre l'intégrale de la densité d'états locale $\int_0^\omega \rho_d$ (panneau de droite de la figure 5.4). On remarque cependant que la dispersion des bandes de Hubbard dans

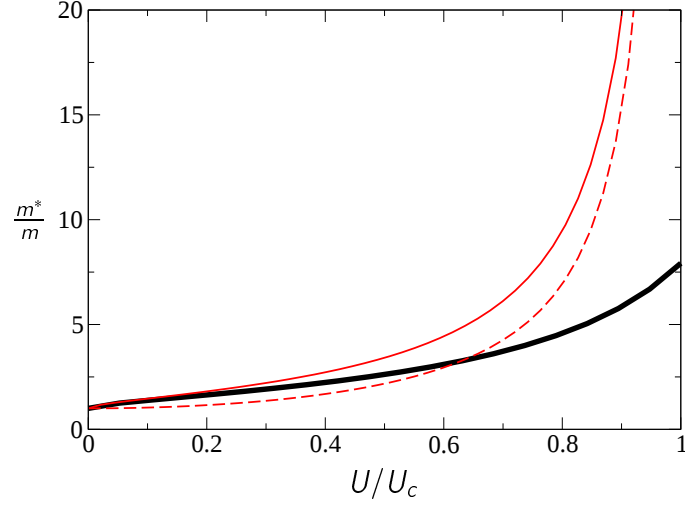


Fig. 5.3 – Masse effective par la méthode de rotateur à trois dimensions (gras) ; on montre aussi le résultat à $d = \infty$ des équations de col (5.4-5.6) (trait fin) et celui obtenu par un calcul DMFT (pointillé).

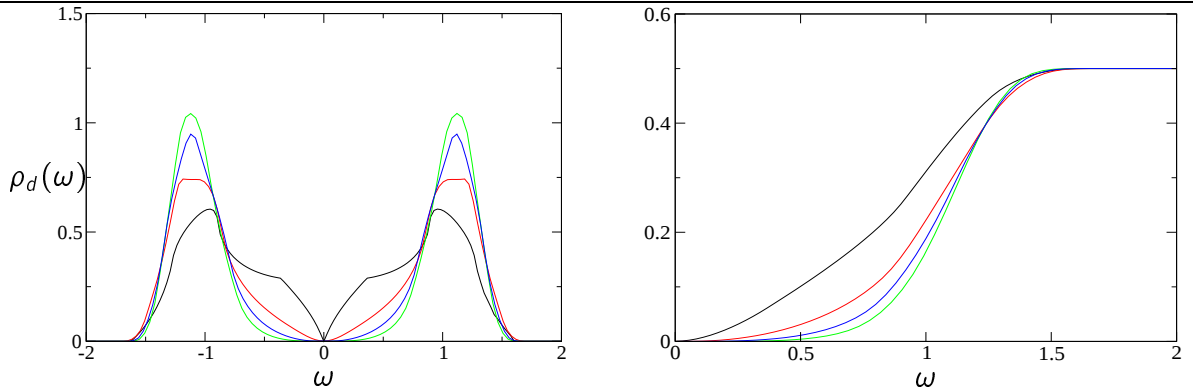


Fig. 5.4 – À gauche : densité d'états locale au point critique de température nulle pour les dimensions $d = 2, 3, 4, 5$, avec $D = \sqrt{d}$ (la diminution de la largeur des bandes de Hubbard avec d est un artefact de notre approche). À droite : intégrale de la fonction spectrale $\int_0^\omega \rho_d$, illustrant la séparation d'échelle approchée pour $d \geq 3$.

l'isolant de Mott n'est pas correcte, puisqu'on leur trouve une largeur t^2/U (au lieu de t), ce qui conduit à une description un peu naïve de l'état isolant dans la limite $d = \infty$, puisque les bandes de Hubbard s'écrasent alors complètement.

□ Température finie

On conclut cette section par l'étude du diagramme de phase en température (montré à la figure 5.5). La séparation entre une phase métallique (où $n_0 \neq 0$) et isolante (où $n_0 = 0$) s'étend à $T > 0$ en une ligne de transition du second ordre. Cette ligne se termine en intersectant la ligne de décondensation $Q = \overline{Q} = 0$, qui correspond à un régime de haute température, extrêmement mal décrit ici (on trouve un isolant atomique). Il en résulte l'existence d'un point critique de température finie, qui reste une cependant caricature du point critique de Mott terminal.

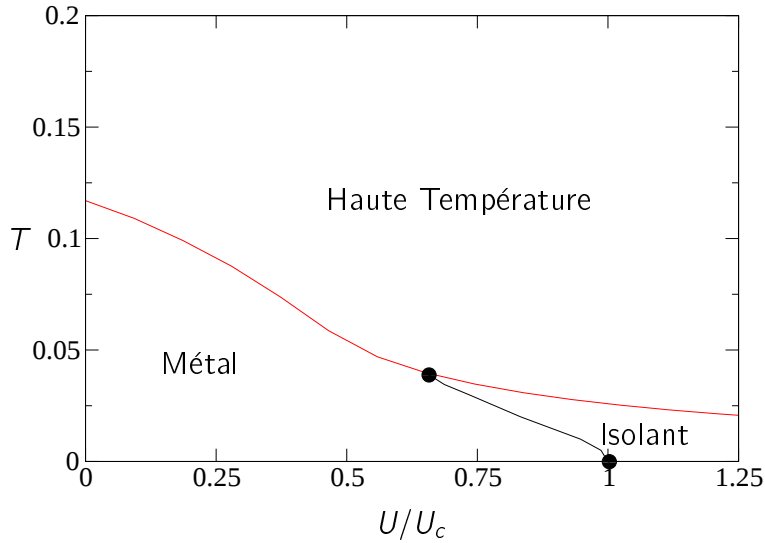


Fig. 5.5 – Diagramme de phase au demi-remplissage à trois dimensions.

5.1.3 Discussion

Nous avons mené une première étude de la transition de Mott dans le modèle de Hubbard en dimension finie grâce à la méthode de rotateur, qui nous a permis de nous affranchir du cadre de la théorie de champ moyen dynamique. Ceci nous a conduit à modifier les scénarios existants (Brinkman-Rice et Mott-Hubbard) pour le comportement critique de température nulle, et de revenir sur la notion de séparation d'échelle. Puisque l'essentiel de ces résultats sont compatibles avec la solution DMFT lorsque la limite $d = \infty$ est prise dans nos équations de col, nous pouvons conclure que la limite de grand d est assez singulière en ce qui concerne plusieurs quantités physiques (masse effective et gap de Mott). Il faut toutefois reconnaître que ce champ moyen tout simple laisse de nombreuses questions en suspens, et souffre par ailleurs de plusieurs limitations. Ainsi la description du comportement à température finie est assez grossier : on ne capture pas le caractère premier ordre de la transition de Mott, et certaines échelles d'énergies ne sont pas correctes. Il y a de plus dans ce formalisme une absence totale d'effets magnétiques (ce qui est le problème habituel avec les approches de type boson esclave), malgré la coupure satisfaisante de la masse effective par l'énergie d'échange. Cette approche

ne constitue donc pas une alternative très sérieuse à la théorie de champ moyen dynamique, et doit être considérée comme un guide pour les développements futurs.

Nous notons finalement que l'observation de cette physique de Mott n'est en réalité possible que si les phases ordonnées sont repoussées à très basse température, par une frustration géométrique ou orbitale importante qui viendrait défavoriser l'ordre antiferromagnétique. Dans ce cas, on se heurte à des interrogations supplémentaires relatives à la description de l'état isolant de Mott (paramagnétique), qui n'est pas correctement décrit par notre approche. Le lien entre cette phase isolante ⁹ et le fondamental sans ordre magnétique des systèmes de spins frustrés n'est à l'heure actuelle pas bien compris (voir section 8.2).

⁹Par ailleurs un état isolant paramagnétique de température nulle a été mis en évidence numériquement [9] sur le modèle de Hubbard à deux dimensions (avec sauts second plus proches voisins).

5.2 Effet de l'écrantage sur la transition métal-isolant

5.2.1 Introduction

Cette section a deux motivations. La première est d'étudier le rôle de la partie à grande portée de l'interaction de Coulomb, au-delà du modèle de Hubbard. La seconde est d'introduire un formalisme d'extension au champ moyen dynamique pour traiter ce problème, qui sera aussi exploité au chapitre 8 (consacré au magnétisme quantique).

Il est tout à fait légitime de s'interroger sur l'absence de couplages non locaux dans le modèle de Hubbard, lorsqu'on s'intéresse à la transition métal-isolant. En effet, la présence d'un écrantage fort de l'interaction coulombienne (grâce au caractère métallique du système) est cruciale dans la dérivation de ce modèle à courte portée. Cependant, à l'approche de la transition de Mott, la perte des quasiparticules doit certainement impliquer une dégradation de l'écrantage, et invalider le modèle de Hubbard dans la description de ce phénomène. Ceci amène donc à questionner les résultats obtenus par la théorie de champ moyen dynamique. Ainsi, un argument qualitatif pour prendre en compte cet effet (dû à Mott [10–12]) laisse envisager que la transition de température nulle recouvre maintenant un caractère premier ordre. Cette question reste à l'heure actuelle ouverte, puisqu'il faudrait à la fois traiter correctement la partie sur site de l'interaction (comme sait le faire DMFT) ainsi que la partie non locale (on pourrait penser à un calcul RPA).

Une possibilité attirante pour réaliser cette étude nous est offerte par le formalisme que l'on appelle champ moyen dynamique étendu (Extended-DMFT ou EDMFT), qui possède l'avantage de traiter de manière fiable la répulsion coulombienne locale (donc la transition de Mott), en incorporant des effets de la partie non locale [13–16]. Cette méthode, que l'on va présenter en détail plus bas, propose de résoudre le problème grâce à une action effective, certes locale, mais plus complexe que celle intervenant dans la solution du modèle de Hubbard. En effet, les interactions entre différents sites génèrent une interaction locale retardée sur le site de la cavité, menant à considérer un modèle d'impureté avec bains fermionique et bosonique. La solution et les propriétés d'un tel modèle (qu'il faut de plus résoudre de manière autocohérente) sont à l'heure actuelle peu connues : un algorithme de Monte Carlo Quantique (avec des champs continus) a été développé très récemment par P. Sun et G. Kotliar [17], mais permet d'explorer seulement le régime de haute température. Les limitations de cette approche numérique (en particulier en terme de temps de calcul) nous ont poussé à tenter d'appliquer la méthode de rotateur esclave dans ce nouveau contexte.

Le plan de cette section est le suivant : nous détaillons d'abord l'approche DMFT étendue, en présentant plusieurs points de vue différents qui éclaireront le formalisme. Grâce à la méthode de rotateur esclave, on dérive ensuite des équations intégrales comme solution approchée du problème d'impureté, afin d'étudier si la perte d'écrantage près de la transition de Mott affecte les prédictions du champ moyen dynamique. On termine par une discussion et quelques perspectives autour de EDMFT.

5.2.2 EDMFT : présentation

Nous partons d'un modèle de Hubbard étendu, en séparant par souci de clarté l'interaction de Coulomb en une partie locale U et une partie non locale V_{ij} (on se place par ailleurs au demi-remplissage) :

$$H = - \sum_{ij\sigma} t_{ij} d_{i\sigma}^\dagger d_{j\sigma} + \sum_i \frac{U}{2} \left[\sum_\sigma d_{i\sigma}^\dagger d_{i\sigma} - 1 \right]^2 + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} V_{ij} \left[\sum_\sigma d_{i\sigma}^\dagger d_{i\sigma} - 1 \right] \left[\sum_\sigma d_{j\sigma}^\dagger d_{j\sigma} - 1 \right] \quad (5.21)$$

On introduit l'action effective EDMFT pour traiter ce modèle dans une approche locale :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger \partial_\tau d_\sigma + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{U_{\text{dyn}}(\tau - \tau')}{2} n(\tau) n(\tau') + \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau') \quad (5.22)$$

où la charge totale est $n(\tau) \equiv d_\uparrow^\dagger d_\uparrow + d_\downarrow^\dagger d_\downarrow - 1$ (décalée de la contribution d'Hartree). Cette expression peut se dériver grâce à la méthode de la cavité, si l'on choisit V_{ij} proportionnel à $d^{-||i-j||/2}$, et que l'on prend la limite grand d [16]. L'effet essentiel de la partie non locale de l'interaction V_{ij} est d'écranter dynamiquement l'interaction locale U , comme indiqué par la décomposition suivante du noyau d'interaction :

$$U_{\text{dyn}}(\tau) = U\delta(\tau) + \mathcal{V}(\tau) \quad (5.23)$$

Ce paramètre effectif est bien entendu déterminé de manière autocohérente par rapport à l'hamiltonien original (5.21) (de même que le bain $\Delta(\tau - \tau')$). Pour cela, on introduit la susceptibilité de charge (connexe) du modèle d'impureté $\chi(\tau) \equiv \langle n(\tau) n(0) \rangle$, qui permet de définir une "self-énergie" de charge $M(i\nu_n)$ par :

$$\chi(i\nu_n) \equiv \frac{1}{U_{\text{dyn}}(i\nu_n) + M(i\nu_n)} \quad (5.24)$$

Cette quantité est utilisée pour calculer la susceptibilité de charge sur le réseau, conduisant à l'équation d'auto-cohérence pour la susceptibilité locale :

$$\begin{aligned} \chi(i\nu_n) &= \sum_q \frac{1}{U + V_q + M(i\nu_n)} \\ &= \sum_q \frac{1}{V_q - \mathcal{V}(i\nu_n) + \chi^{-1}(i\nu_n)} \end{aligned} \quad (5.25)$$

Si l'on prend un réseau de Bethe avec une répulsion V seulement entre plus proches voisins, on trouve :

$$\mathcal{V}(\tau) = -V^2 \chi(\tau) \quad (5.26)$$

$\mathcal{V}$ est donc négatif, ce qui montre l'écrantage de l'interaction sur site (nue) par l'interaction non locale. On remarque de plus que $\chi(i\nu_n)$ s'annule à haute fréquence, conduisant à $U_{\text{dyn}}(i\nu_n) \simeq U$ dans ce régime (perte d'écrantage au-dessus de la fréquence plasma). On utilisera de même l'autocohérence sur le réseau de Bethe pour le terme de saut :

$$\Delta(\tau) = t^2 G_d(\tau) \quad (5.27)$$

avec la demi-largeur $D = 2t = 1$.

□ Formulations fonctionnelles

La présentation du formalisme d'EDMFT donnée précédemment est un peu désagréable à deux titres. Tout d'abord l'équation d'autocohérence pour la susceptibilité du charge (5.25) n'est pas très physique (on peut se demander à quoi correspond une "self-énergie" de charge locale). Ensuite, la raison pour laquelle on se retrouve avec un modèle d'impureté tel que (5.22) n'est pas évidente non plus. Une manière alternative de retrouver ces deux résultats est de construire la théorie à partir de fonctionnelles bien choisies (l'idée est d'obtenir le formalisme EDMFT par une condition de stationnarité). Pour cela deux approches sont envisageables. La première [18] s'inspire de la fonctionnelle de Baym-Kadanoff [19], qui est bâtie à partir des propagateurs (complets) des fermions et du potentiel scalaire (champ conjugué à la charge totale). Cette manière de procéder permet de comprendre l'équation d'autocohérence en terme de polarisation locale (Appendice E.1). Une autre dérivation est présentée [20] qui choisit plutôt d'examiner une fonctionnelle des propagateurs *locaux*. Dans cette nouvelle présentation (Appendice E.2), la forme de l'action effective (5.22) apparaît plus intuitive.

5.2.3 Limite atomique dynamique

Le problème d'impureté (5.22) est d'un genre nouveau par rapport au modèle d'Anderson que l'on a étudié au chapitre précédent. Il n'existe peu de résultats connus pour ce modèle, et les premières tentatives numériques sont à peine en train d'émerger [17]. Il serait très utile, afin de tester ces dernières, ainsi que d'éventuels schémas d'approximation, d'avoir à disposition quelques résultats exacts sur ce modèle. Nous allons ici résoudre la limite atomique $\Delta(\tau) = 0$, en présence d'un noyau retardé $U_{\text{dyn}}(\tau)$ quelconque.

On remarque en effet que l'action atomique (par soucis de simplicité, on se concentrera sur le cas demi-rempli, avec une seule orbitale) :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger \partial_\tau d_\sigma + \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' U_{\text{dyn}}(\tau - \tau') \sum_{\sigma\sigma'} [d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau) - 1][d_{\sigma'}^\dagger(\tau') d_{\sigma'}(\tau') - 1] \quad (5.28)$$

ne fait intervenir que la charge locale (quantité conservée). On a donc l'idée de la découpler avec un champ bosonique :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger [\partial_\tau + i\phi(\tau)] d_\sigma - i\phi(\tau) + \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' U_{\text{dyn}}^{-1}(\tau - \tau') \phi(\tau) \phi(\tau') \quad (5.29)$$

Pour calculer les fonctions de Green du problème, on a besoin d'évaluer le propagateur libre dans un champ $\phi(\tau)$ quelconque :

$$[\partial_\tau + i\phi(\tau)] G(\tau, \tau'; \phi) = -\delta_F(\tau - \tau') \quad (5.30)$$

où $\delta_F(\tau)$ est la fonction de Dirac antiperiodisée. On peut vérifier que la solution de cette équation est :

$$\begin{aligned} G(\tau, \tau'; \phi) &= G_0(\tau - \tau'; \phi_0) \exp \left[\frac{i}{\beta} \sum_{n \neq 0} \phi_n J_n(\tau, \tau') \right] \\ G_0(\tau; \phi_0) &\equiv -\frac{e^{-i\phi_0\tau/\beta}}{1 + e^{-i\phi_0}} \quad \text{pour } \tau \in [0, \beta] \end{aligned} \quad (5.31)$$

avec les notations suivantes :

$$\phi_n = \int_0^\beta d\tau \phi(\tau) e^{i\nu_n \tau} \quad (5.32)$$

$$J_n(\tau, \tau') = \frac{e^{i\nu_n \tau'} - e^{i\nu_n \tau}}{i\nu_n} \quad (5.33)$$

L'action correspondant à ce problème intermédiaire est aussi facilement calculée :

$$\mathcal{Z}_\phi \equiv \text{Det} [\partial_\tau + i\phi(\tau)] = 1 + e^{-i\phi_0} \quad (5.34)$$

et l'on peut donc trouver la fonction de Green physique en moyennant sur le champ ϕ seulement, après intégration explicite des fermions :

$$G_d(\tau) = \frac{1}{\mathcal{Z}} \int \mathcal{D}\phi (\mathcal{Z}_\phi)^2 e^{i\phi_0} G(\tau, 0; \phi) e^{-S[\phi]} \quad (5.35)$$

$$\mathcal{Z} = \int \mathcal{D}\phi (\mathcal{Z}_\phi)^2 e^{i\phi_0} e^{-S[\phi]} \quad (5.36)$$

où $S[\phi]$ est donné par (5.29) :

$$S[\phi] = \frac{1}{2} \sum_n \frac{|\phi_n|^2}{U_{\text{dyn}}(i\nu_n)} \quad (5.37)$$

On a donc réduit le problème à un calcul d'intégrales gaussiennes dans (5.35). On trouve en fin de compte :

$$G_d(\tau) = -\frac{1}{2} \frac{e^{-\frac{U_0}{2}\tau} + e^{-\frac{U_0}{2}(\beta-\tau)}}{1 + e^{-\frac{U_0}{2}\beta}} e^{F(\tau)} \quad (5.38)$$

$$F(\tau) \equiv \frac{1}{\beta} \sum_{n \neq 0} \frac{U_{\text{dyn}}(i\nu_n) - U_0}{\nu_n^2} [e^{i\nu_n \tau} - 1]$$

où $U_0 \equiv U_{\text{dyn}}(i\nu_0)$. Cette expression a été utilisée pour vérifier la qualité du code Monte Carlo Quantique dans le cas à une et deux orbitales.

5.2.4 Traitement en rotateur esclave

La difficulté essentielle est bien sûr de résoudre le problème (5.22) en présence à la fois du bain fermionique et du bain bosonique. La technique de rotateur esclave semble cependant tout à fait adaptée, puisque l'interaction ne fait intervenir que la charge explicitement, et peut donc être représentée par un moment angulaire $O(2)$. On commence par exprimer l'action initiale avec les variables de phase (on se place au demi-remplissage et l'on traite la contrainte en champ moyen) :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma f_\sigma^\dagger \partial_\tau f_\sigma + \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' U_{\text{dyn}}^{-1}(\tau - \tau') \partial_\tau \theta \partial_{\tau'} \theta \quad (5.39)$$

$$+ \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma f_\sigma^\dagger(\tau) f_\sigma(\tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')}$$

On simplifie le problème en traitant les variables angulaires dans une limite de grande dégénérescence. On pose donc $X \equiv e^{i\theta}$, en imposant la contrainte $|X(\tau)|^2 = 1$ en moyenne :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma f_\sigma^\dagger \partial_\tau f_\sigma + \lambda(|X|^2 - 1) + \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' U_{\text{dyn}}^{-1}(\tau - \tau') X^*(\tau) X(\tau') \partial_\tau X \partial_{\tau'} X^* + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma f_\sigma^\dagger(\tau) f_\sigma(\tau') X(\tau) X^*(\tau') \quad (5.40)$$

On fait l'hypothèse que le noyau $U_{\text{dyn}}^{-1}(\tau)$ est assez local, pour pouvoir négliger les phases qui apparaissent dans le terme cinétique des rotateurs (c'est un des inconvénient de passer des θ aux X) :

$$X^*(\tau) X(\tau') = \exp[i\theta(\tau') - i\theta(\tau)] \simeq 1 \quad (5.41)$$

Cette approximation sera valide tant que l'écrantage n'est pas trop fort, ce qui est le cas près de la transition de Mott.

□ Équations intégrales

On obtient comme à la section 3.4 une solution approchée en factorisant le terme de couplage fermion-boson. Introduisons les propagateurs de ces champs :

$$G_f(\tau) \equiv -\langle f_\sigma(\tau) f_\sigma^\dagger(0) \rangle \quad (5.42)$$

$$G_X(\tau) \equiv +\langle X(\tau) X^*(0) \rangle \quad (5.43)$$

$$G_f^{-1}(i\omega_n) = i\omega_n - \Sigma_f(i\omega_n) \quad (5.44)$$

$$G_X^{-1}(i\nu_n) = \frac{\nu_n^2}{U_{\text{dyn}}(i\nu_n)} + \lambda - \Sigma_X(i\nu_n) \quad (5.45)$$

et l'on trouve les équations de col :

$$\Sigma_X(\tau) = -\mathcal{N}\Delta(-\tau)G_f(\tau) \quad (5.46)$$

$$\Sigma_f(\tau) = \Delta(\tau)G_X(\tau) \quad (5.47)$$

$$G_X(\tau=0) = 1 \quad (5.48)$$

On a introduit un paramètre multicanal ($\mathcal{N} = 3$ dans les calculs numériques) ainsi qu'une renormalisation de l'interaction ($U_{\text{dyn}} \rightarrow U_{\text{dyn}}/2$) comme expliqué à la section 3.4. On calcule de même la fonction de Green physique à partir de la représentation des champ $d_\sigma^\dagger = f_\sigma^\dagger X$:

$$G_d(\tau) = G_f(\tau)G_X(-\tau) \quad (5.49)$$

Pour la susceptibilité de charge, on généralise la formule (D.2) obtenue précédemment :

$$\chi(i\nu_n) = 2 \frac{H(i\nu_n)}{[U_{\text{dyn}}(i\nu_n)]^2} \quad (5.50)$$

$$H(\tau) \equiv G_X(\tau) \partial_\tau \partial_\tau G_X(\tau) - [\partial_\tau G_X(\tau)]^2 + U\delta(\tau)$$

On a donc tous les outils pour étudier la solution des équations EDMFT, de façon approchée.

5.2.5 Écrantage et transition de Mott

□ Phase métallique

Commençons par regarder l'effet de la partie non-locale de l'interaction dans la phase métallique ¹⁰. L'écrantage se manifeste évidemment sur l'interaction locale dynamique $U_{\text{dyn}}(i\nu_n)$, comme le montre la figure 5.6. On constate que l'écrantage est le plus efficace à basse

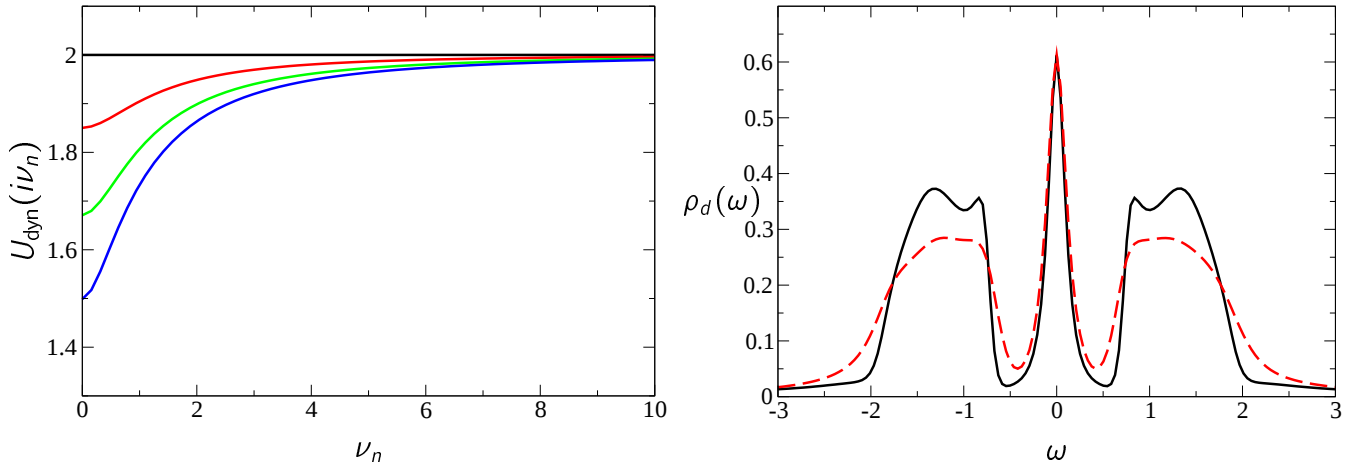


Fig. 5.6 – À gauche : interaction dynamique $U_{\text{dyn}}(i\nu_n)$ pour $U = 2.0$, $\beta = 40$ et pour différentes valeurs de $V = 0, 0.8, 1.0, 1.1$ (de haut en bas). À droite : fonction spectrale $\rho_d(\omega)$ pour les mêmes paramètres ; on montre $V = 0$ (continu) et $V = 1.1$ (pointillés) seulement.

fréquence ($U_{\text{eff}} \equiv U_{\text{dyn}}(i0) < U$), alors qu'à haute fréquence, on retrouve effectivement l'interaction nue, non écrantée ($U_{\text{dyn}} \rightarrow U$). Cette réduction de l'interaction locale se manifeste par ailleurs sur la densité d'état, à la même figure, qui montre un léger accroissement de poids spectral à basse énergie (ainsi qu'une redistribution sur des échelles d'ordre U signalant la présence d'interactions fortes). On remarque que même avec une interaction de portée assez faible, on peut modifier de manière notable l'interaction sur site (à condition de prendre V assez grand).

□ Instabilité CDW et comparaison au QMC

Lorsque V est trop grand, le système cherche un autre fondamental pour minimiser la répulsion entre sites voisins. Cela conduit à une phase de symétrie brisée (onde de densité de charge), dont l'apparition se manifeste par l'existence d'un pôle dans la susceptibilité de charge. Nous avons tracé à la figure 5.7 une mesure de la proximité à cette instabilité, ce qui permet par ailleurs de comparer nos résultats à ceux obtenus par la méthode de Monte Carlo Quantique [17] (à haute température).

¹⁰Sauf mention contraire, ces calculs sont faits sur le réseau de Bethe, avec une répulsion V plus proche voisins uniquement.

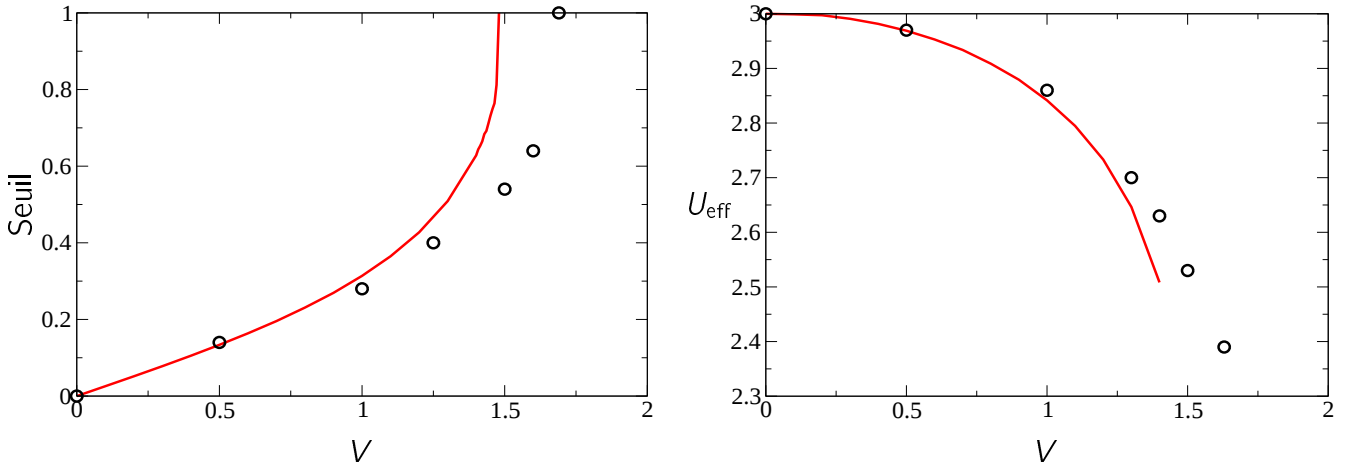


Fig. 5.7 – À gauche : critère d'instabilité $2V/[-\mathcal{V}(i0) + \chi^{-1}(i0)]$ (en fonction de V) obtenu par la méthode de rotateur (ligne) et par le QMC de Sun et Kotliar [17] (points); ce calcul a été effectué sur un réseau de Bethe de demi-largeur de bande $D = \sqrt{2}$, avec une interaction V prise sur le réseau cubique, et pour les paramètres $U = 3$ et $\beta = 5$. À droite : U_{eff} en fonction de V dans les mêmes conventions.

La comparaison de l'interaction écrantée U_{eff} entre les deux approches montre aussi un accord qualitatif raisonnable. Bien entendu, l'intérêt essentiel de la méthode de rotateur par rapport à ces simulations numériques est le gain en temps de calcul : la résolution des équations intégrales (avec boucle EDMFT) s'effectue en moins d'une minute sur un PC de base. Il faut plusieurs jours pour effectuer la même tâche en QMC sur une grappe de PC ! De plus, ce QMC est trop coûteux pour accéder au régime corrélé ($U \sim 2D$ et basse température), ce qui limite singulièrement son intérêt pratique.

□ Transition de Mott

On s'intéresse finalement à la transition métal-isolant contrôlée par U en présence d'une interaction plus proche voisins V . La ligne de transition U_{c2} se déplace de manière croissante avec V (voir la figure 5.8), signalant une stabilisation de la phase métallique grâce à l'écrantage de l'interaction locale. On remarque cependant, et contre toute attente, un effet similaire pour l'isolant de Mott : la ligne U_{c1} est sensible à V et il reste un écrantage faible dans l'isolant ! Cette anomalie doit être retracée jusqu'aux équations EDMFT, et non à la manière approximative avec laquelle on a résolu le modèle d'impureté. En effet, d'après la formule (5.26), le degré d'écrantage est contrôlé directement par la susceptibilité de charge locale. Or celle-ci est non nulle dans la phase isolante (c'est une conséquence du fait que la double occupation ne s'annule pas), provoquant ainsi cet écrantage artificiel dans l'isolant, qui reste faible néanmoins.

Nous avons par ailleurs tenté de mettre en évidence un possible changement du caractère de la transition à température nulle. En effet, selon un argument énergétique dû à Mott [10],

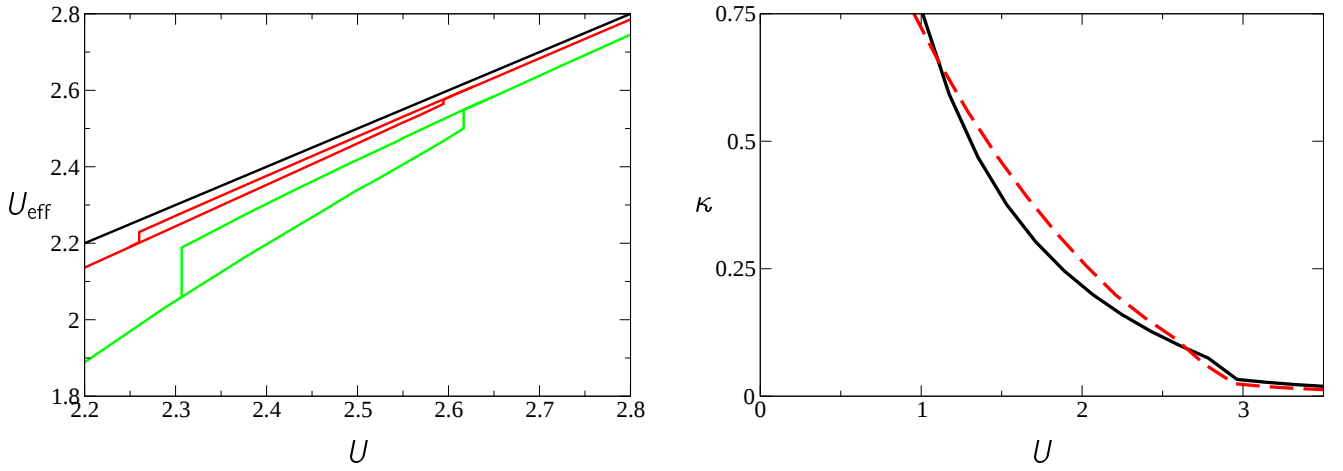


Fig. 5.8 – À gauche : U_{eff} en fonction de U à $\beta = 80$ pour $V = 0, 0.6, 1.1$ (de haut en bas) ; les discontinuités sont la manifestation du caractère premier ordre de la transition à température finie. À droite : compressibilité locale $\kappa = \chi(i0)$ à $V = 0$ (DMFT pure) par la méthode de rotateur (trait continu), comparé au résultat de diagonalisation exacte (pointillés).

et une analyse approchée par Chitra et Kotliar [21] des équations EDMFT¹¹, la transition de Mott devrait être du premier ordre à $T = 0$. Il y a cependant plusieurs arguments (dans le cadre de l'approche locale) qui vont à l'encontre de cette idée : tout d'abord, une estimation rapide montre que les sauts produits dans les paramètres physiques sont au mieux très faibles ($Z_{\text{metal}} - Z_{\text{isolant}} < 0.01$). À cause du caractère premier ordre de la transition de température finie, cet effet est donc quasiment impossible à mettre en évidence. Ensuite, l'écrantage en EDMFT est contrôlé par la susceptibilité locale et non par la susceptibilité uniforme. Cette dernière quantité, qui s'annule dans la phase isolante, semble physiquement un meilleur choix pour traduire la divergence de la longueur d'écran que l'on attendrait à la transition métal-isolant (c'est l'hypothèse de base faite dans [21]). Malheureusement, le formalisme utilisé ici ne réalise pas cette idée, et en reconduisant les calculs de Chitra et Kotliar avec la prescription "correcte", on trouve que la transition de Mott de température nulle reste vraisemblablement du second ordre en EDMFT.

5.2.6 Perspectives

Nous avons examiné dans cette section l'effet de l'interaction Coulombienne au voisinage de la transition de Mott dans le cadre de la théorie de champ moyen dynamique (étendue). Les changements quantitatifs observés sont importants, et l'on peut rendre compte dans ce formalisme à la fois de la physique de l'écrantage et des corrélations locales responsables de la transition métal-isolant. Il semble que, dans le formalisme d'Extended-DMFT, cette transition reste du second ordre à température nulle, ce qui ne remet pas en cause les résultats obtenus

¹¹Il faut dans ce cas utiliser une interaction Coulombienne en $1/r$, que nous avons aussi implémentée numériquement.

sur le modèle de Hubbard en DMFT. Cependant, observer une telle transition du premier ordre doit être possible pour des modèles coulombiens à une dimension ou deux dimensions (frustrés) dans lesquels les phases magnétiques sont éliminées pour dévoiler ce type d'effet. Il va sans dire que l'approche EDMFT est inadaptée d'office pour ce genre de modèles.

On peut heureusement trouver des aspects très positifs à cette extension du champ moyen dynamique, qui peut être combinée à des méthodes de calculs de structure électronique, en vue d'obtenir une approche complètement *ab-initio* des systèmes de fermions corrélés. En effet, des travaux récents ont montré que grâce à une méthode hybride GW+EDMFT [22], on peut fixer de manière non ambiguë l'interaction de Hubbard U à utiliser dans les calculs réalistes, sans problème de double comptage (il s'agit d'un problème majeur des approches du type LDA+ U ou LDA+DMFT). Il y a donc une dimension pratique à l'étude que nous avons menée ici, qui pourrait trouver une application dans un tel contexte.

Bibliographie du chapitre 5

- [1] **W. F. Brinkmann et T. M. Rice**, *Phys. Rev. B* **2**, 4302 (1970).
- [2] **J. Hubbard**, *Proc. Roy. Soc. A* **281**, 401 (1964).
- [3] **A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth et M. J. Rozenberg**, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 13 (1996).
- [4] **W. Krauth**, *Phys. Rev. B* **62**, 6860 (2000).
- [5] **G. Kotliar**, *Euro. Phys. J. B* **11**, 29 (1999).
- [6] **G. Kotliar et J. Liu**, *Phys. Rev. B* **38**, 5142 (1988).
- [7] **S. Sachdev**, *Quantum Phase Transitions*. Cambridge, (2000).
- [8] **S. A. Carter, T. F. Rosenbaum, P. Metcalf, J. M. Honig et J. Spalek**, *Phys. Rev. B* **48**, 16841 (1993).
- [9] **H. Morita, S. Watanabe et M. Imada**, *J. Phys. Soc. Jap.* **71**, 2109 (2002).
- [10] **N. F. Mott**, *Phil. Mag.* **6**, 207 (1961).
- [11] **N. F. Mott**, *Proc. Phys. Soc. Lond.* **62**, 416 (1949).
- [12] **C. M. Varma et T. Giamarchi**, *Model for oxide metals and superconductors*. Elsevier, (1991). Cours de l'école des Houches.
- [13] **A. Sengupta et A. Georges**, *Phys. Rev. B* **52**, 10295 (1995).
- [14] **H. Kajueter et G. Kotliar**, *Non publié* (1995).
- [15] **Q. Si et J. L. Smith**, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3391 (1996).
- [16] **J. L. Smith et Q. Si**, *Phys. Rev. B* **61**, 5184 (2000).
- [17] **P. Sun et G. Kotliar**, *Phys. Rev. B* **66**, 85120 (2002).
- [18] **R. Chitra et G. Kotliar**, *Phys. Rev. B* **63**, 115110 (2001).
- [19] **G. Baym et L. P. Kadanoff**, *Phys. Rev.* **124**, 287 (1961).
- [20] **A. Georges**, *Proceedings of the NATO ASI "Field Theory of Strongly Correlated Fermions and Bosons in Low Dimensional Disordered Systems"*. (2001).
- [21] **R. Chitra et G. Kotliar**, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3678 (2000).
- [22] **S. Biermann, F. Aryasetiawan et A. Georges**, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 86402 (2003).

Partie III

Corrélations électroniques dans les structures mésoscopiques

6. Circuits à un électron : réalisations et théorie

Dans ce chapitre de présentation générale à la seconde partie, nous allons discuter de développement récents mais spectaculaires dans le domaine de l'électronique à un électron (systèmes conducteurs dans lesquels on peut contrôler le courant au quantum de charge près). Deux voies sont possibles pour la maîtrise de ce phénomène : systèmes formés à partir de gaz d'électrons bidimensionnels confinés (point quantique) ou jonctions tunnel de petite taille (boîte à électron). Dans le régime de basse température, on observe de nombreux effets physiques intéressants, dont l'origine est l'interaction coulombienne. sont observés : blocage de Coulomb, restauration de la conductance unitaire par effet Kondo, transistor à un électron... Nous présenterons la mise en évidence expérimentale de ces phénomènes avant d'envisager les traitements théoriques proposés dans la littérature. Ceci permettra d'introduire le travail de recherche du chapitre 7, dans lequel on s'est intéressé à la restauration de la cohérence dans les systèmes à blocage de Coulomb.

6.1 Les points quantiques

6.1.1 Réalisation expérimentale

Un point quantique est une structure semiconductrice artificielle dans laquelle est emprisonnée une gouttelette de charge, dont le faible nombre d'électrons (de l'ordre de l'unité à quelques milliers) peut être contrôlé précisément. Pour cette raison, on surnomme aussi ces systèmes "atomes artificiels" lorsque la structure du point est suffisamment symétrique pour obtenir des niveaux d'énergie réguliers. Pour autant, par leur procédés de nanofabrication et la manière où l'on sonde ces systèmes, les points quantiques sont loins à la fois du domaine de la physique atomique traditionnelle et de la physique du solide. Les différences tiennent en effet à la possibilité d'agencer ces microstructures dans des circuits désignés à l'avance, permettant un contrôle très précis de leurs paramètres physiques. L'idée de base est de réaliser une structure suffisamment petite pour que le caractère discret de charge électronique puisse être mis en évidence. Pour cela, il faut tout d'abord que la température soit inférieure à l'énergie de Coulomb typique d'une structure capacitive microscopique, afin de séparer les états de charge différente :

$$E_c \equiv \frac{e^2}{2C} \sim 10K \quad (6.1)$$

pour une structure de dimension approximative $L \sim 1\mu m$, avec une capacité de l'ordre de $C \sim 4\pi\epsilon_0 L^2/L \sim 10^{-16}F$. Ces ordres de grandeur sont facilement atteints par les techniques de lithographie modernes, qui permettent par ailleurs de contrôler à volonté la forme et la taille du gaz confiné d'électrons (figures 6.1 et 6.2). Une autre condition cruciale pour observer la quantification de la charge dans ces systèmes est que la conductance de la structure soit très inférieure au quantum de conductance e^2/h , sous peine de voir les électrons se délocaliser dans le circuit (voir en effet la section 6.2.2).

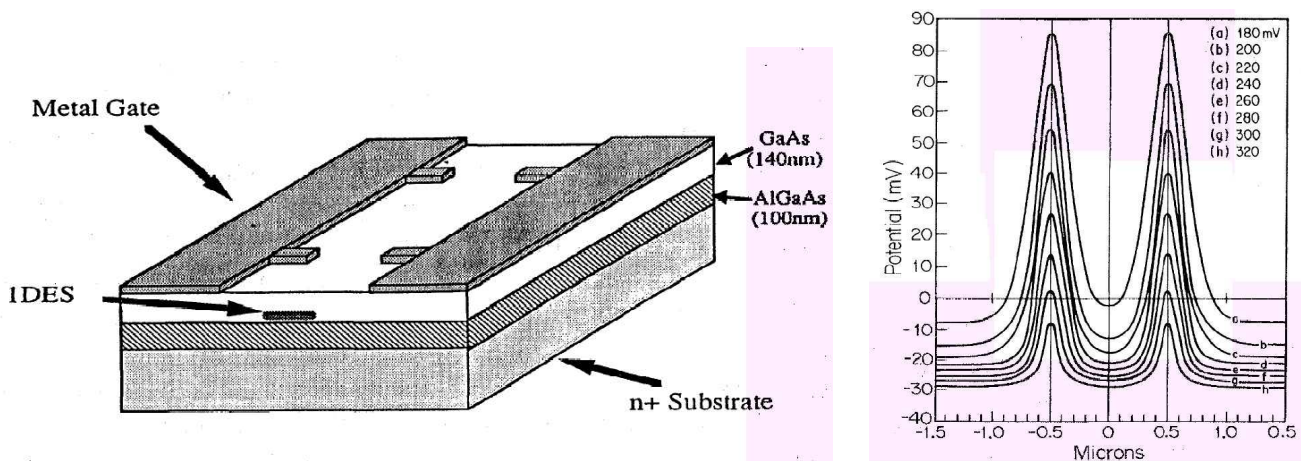


Fig. 6.1 – À gauche : point quantique dans sa réalisation la plus simple. À droite : potentiel théorique ressenti par les électrons le long de la double barrière pour différentes tensions de grille (la taille de la structure est $1\mu m$). D'après [1].

Le paramètre de contrôle le plus important est la tension de grille V_g appliquée entre les électrodes métalliques supérieures et la couche semiconductrice dans laquelle les électrons se déplacent (voir l'évolution de la barrière de potentiel de la figure 6.1). Dans des réalisations plus complexes (figure 6.2), on peut de plus modifier le nombre de canaux de transmission à travers le point grâce à des électrodes de part et d'autre des deux points de passage ("quantum point contact"). Des électrodes supplémentaires sont utiles pour modifier la forme de la goutte métallique prisonnière dans le point, permettant de générer différents "échantillons" en changeant la tension appliquée ¹. Remarquons qu'il est possible aussi de réaliser des points quantiques dans une structure cylindrique verticale, dont la régularité et symétrie maximale donne lieu à de véritables atomes artificiels (atomes 2d).

□ Blocage de Coulomb

Lors des premières mesures effectuées sur ce type de structure (voir [1]), un comportement oscillatoire de la conductance linéaire $G(V_g) \equiv \partial I / \partial V_{V=0}$ à travers le point a été mis en

¹Cela a été utilisé pour mettre en évidence les fluctuations universelles de conductance dans les points quantiques [2,3]).

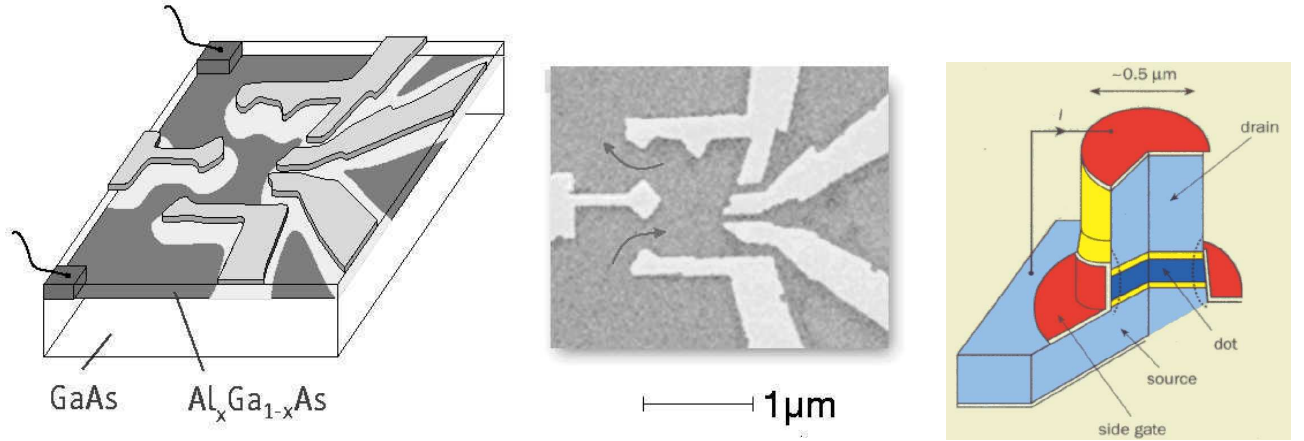


Fig. 6.2 – Réalisations plus modernes d'un point quantique d'après [4]. À gauche : déposition d'électrodes sur une structure MOSFET, conduisant à une déplétion du gaz d'électron sous-jacent (vue schématique et par micrographie électronique). À droite : structure cylindrique d'un point quantique vertical (atome artificiel).

évidence (I est le courant à travers le point et V est le courant appliqué à ses bornes). Comme discuté précédemment, les paramètres essentiels ayant permis cette observation sont : la faible conductance du point, le fait d'accéder au régime $T < E_c$ (grâce à la réalisation d'îles de petite taille), et la bonne pureté des structures de type GaAs/AlGaAs. Cet effet d'oscillation est purement classique et se comprend aisément de manière énergétique. Un modèle capacitif donne l'énergie potentielle du point :

$$E = E_c n^2 - eV_g n = \frac{e^2}{2C} \left(n - \frac{CV_g}{e} \right)^2 + \text{cst.} \quad (6.2)$$

où n est le nombre d'électrons contenus sur l'île. Ce modèle simplifié permet de comprendre en première approximation ce phénomène. Aux températures inférieures à E_c , le point est non-passant pour la charge, puisque l'ajout d'une charge supplémentaire est défavorisé statistiquement. Cependant, deux niveaux consécutifs $E(n)$ et $E(n+1)$ se trouvent être dégénérés lorsque $CV_g/e = n+1/2$, permettant à la charge de fluctuer sur le point, et de trouver une conductance non nulle. La suppression générique de la conductance et sa réapparition périodique (à l'ajout d'un seul électron supplémentaire sur le point) porte un nom : le blocage de Coulomb. Cet effet est illustré à la figure 6.3 (voir aussi l'Appendice B pour une description de l'escalier de Coulomb), et l'étude des données montre que la période mesurée expérimentalement est bien compatible avec CV_g/e entier : le transfert de charge à travers le point se fait bien électron par électron.

Le modèle (6.2) est une simplification grossière à plusieurs titres. Tout d'abord il faut tenir compte du spectre des états emprisonnés dans le point ϵ_p , et l'on doit plutôt écrire :

$$E = E_c \left(\sum_{p\sigma} n_{p\sigma} \right)^2 - eV_g \sum_{p\sigma} n_{p\sigma} + \sum_{p\sigma} \epsilon_p n_{p\sigma} \quad (6.3)$$

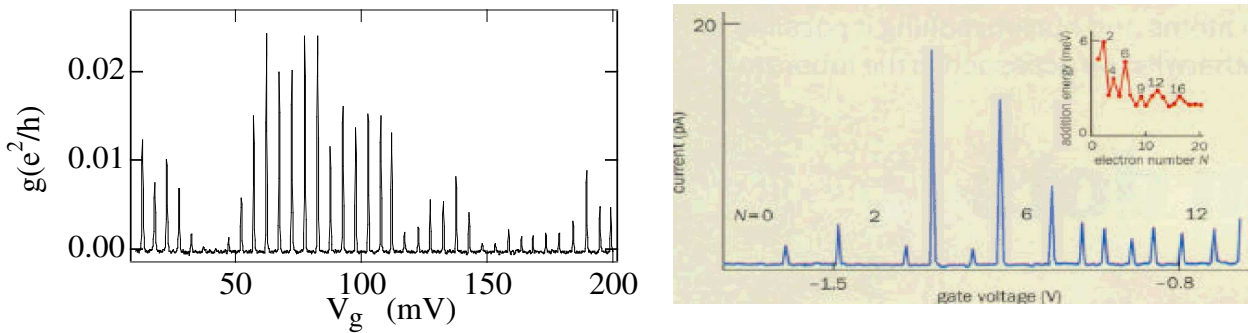


Fig. 6.3 – Conductances de points quantiques dans le régime de blocage de Coulomb, associées aux deux types de points de la figure 6.2. Pour le point vertical de droite, on remarque un effet net de séparation des niveaux entre deux couches successives (à 2,6,12 électrons) : atome artificiel.

où l et σ comptabilisent les dégénérescences des niveaux (orbital et spin). Ce modèle est à utiliser lorsque l'espacement entre niveaux est non négligeable, et montre que les pics de conductance restent équidistants dans un même multiplet (on paye l'énergie de Coulomb E_c seulement), et séparés de $E_c + \epsilon_{p+1} - \epsilon_p$ lorsqu'on passe du niveau p à $p+1$. Ce type de comportement est observé très clairement dans les points quantiques du type vertical (figures 6.2 et 6.3 à droite).

On remarque aussi sur la figure précédente les variations brutales des hauteurs des pics de conductance [5], dues à des changements du couplage de la fonction d'onde électronique aux contacts externes (ces changements sont accentués par la géométrie irrégulière du point et par la présence de niveaux d'énergie discrets). On peut réaliser une analyse statistique [2] de la distribution des conductances maximales et des espacements entre pics à partir de points quantiques sans symétrie du type de la figure 6.2 (gauche). Celle-ci donne lieu à des distributions universelles, en accord avec les théories sur les points quantiques dans le régime chaotique [3].

Le calcul de la conductance nécessite bien sûr de coupler le point à des réservoirs extérieurs, ce qui promet des corrections quantiques à la description naïve que l'on a donnée ici. Celles-ci peuvent être aussi importantes qu'inattendues, comme on va le voir maintenant.

6.1.2 Description théorique

Nous pouvons commencer par écrire un hamiltonien décrivant le transport à travers l'île métallique, en supposant encore que l'interaction entre électrons dans le point peut être décrite de manière capacitive ² (les électrodes seront prises comme un gaz de fermions libres) :

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k [a_{Lk\sigma}^\dagger a_{Lk\sigma} + a_{Rk\sigma}^\dagger a_{Rk\sigma}] + E_c \left(\sum_{p\sigma} n_{p\sigma} \right)^2 - eV_g \sum_{p\sigma} n_{p\sigma} + \sum_{p\sigma} \epsilon_p n_{p\sigma} + \sum_{k\sigma p} (t_L^{kp} a_{Lk\sigma}^\dagger d_{p\sigma} + t_R^{kp} a_{Rk\sigma}^\dagger d_{p\sigma}) + \text{h.c.} \quad (6.4)$$

On a supposé par ailleurs qu'un seul mode de conduction (un canal) se couple à l'île (dans le cas d'un point de contact étroit), et négligé les fluctuations mésoscopiques de la conductance (pas de désordre dans le point). Des fermions ont été introduits pour modéliser les électrodes droite et gauche ($a_{Rk\sigma}^\dagger$ et $a_{Lk\sigma}^\dagger$), et l'on s'intéresse au calcul du transport à travers la structure en fonction de l'élément de transfert entre les électrodes et l'île.

Le problème est techniquement difficile, puisque la largeur des pics de conductance est déterminée à la fois par les excitations thermiques et par la force du couplage tunnel aux électrodes, mais on peut se faire une image simplifiée des régimes de conduction en envisageant les divers processus de conduction. Lorsque la température est sensiblement inférieure à E_c , on s'attend à avoir une conductance activée à cause du blocage de Coulomb :

$$G(T) \sim G_t e^{-\beta[E(n+1)-E(n)]} \sim G_t e^{-E_c[2(n-n_g)+1]/T} \quad (6.5)$$

où $n_g = CV_g/e$, $n = [n_g]$, et G_t est la conductance de haute température. Cependant ce résultat semi-classique est modifié par des corrections quantiques d'ordre supérieur : les processus de cotunneling inélastique [6] (si la traversée du point par un électron laisse place à une excitation particule-trou) donnent ainsi une dépendance quadratique de la conductance :

$$G_{\text{in.}} \sim \frac{G_t^2}{e^2/h} \left(\frac{T}{E_c} \right)^2 \quad (6.6)$$

pour des températures $T < T_{\text{in.}} = E_c / \log[e^2/(hG_t)]$. À des températures bien plus basses, des processus élastiques prennent le relais [7], produisant une *conductance résiduelle* pour $T < T_{\text{el}} \sim \sqrt{E_c \delta E}$ (δE est l'espacement entre niveaux dans le point) :

$$G_{\text{el.}} \sim \frac{\delta E}{E_c} \frac{G_t^2}{e^2/h} \quad (6.7)$$

La forme de l'hamiltonien (6.4) laisse entrevoir un troisième type de processus, où le spin net porté par l'île peut être renversé lorsqu'un électron traverse le système [8, 9]. Pour générer une telle interaction Kondo entre le point et les électrons, il faut qu'un nombre impair d'électrons se trouve sur l'île, et que la température soit inférieure à l'espacement entre niveaux, ce qui permet d'avoir un spin 1/2 effectif. On peut alors écrire un modèle d'Anderson en se restreignant

²Pour une justification de ce modèle, dit "à interaction uniforme", voir la revue d'Aleiner, Brouwer et Glazman [3].

aux énergies proches du niveau de Fermi, et un calcul de la conductance à travers ce niveau d'impureté donne ³ :

$$G = \frac{2e^2}{h} \int d\omega \left(-\frac{\partial n_F}{\partial \omega} \right) \frac{4\Gamma_L(\omega)\Gamma_R(\omega)}{\Gamma_L(\omega) + \Gamma_R(\omega)} \pi \rho_d(\omega) \quad (6.8)$$

$$\Gamma_{L,R}(\omega) = \pi \sum_k |t_{L,R}^k|^2 \delta(\omega - \varepsilon_k) = \pi D_{L,R}(\omega) |t_{L,R}(\omega)|^2 \quad (6.9)$$

où $\rho_d(\omega)$ est la densité d'états sur le point (en interaction !). À basse température, la dérivée du facteur de Fermi est un pic- δ , et si l'on considère que les deux électrodes sont symétriques ($\Gamma_L = \Gamma_R \equiv \Gamma$), on a :

$$G(T = 0) = \frac{2e^2}{h} 2\Gamma(0) \pi \rho_d(0) \quad (6.10)$$

Or, à basse température, l'effet Kondo implique l'apparition d'une résonance au niveau de Fermi, dont la hauteur n'est pas renormalisée par les interactions : $\pi \rho_d(\omega = 0) = 1/(\Gamma_L + \Gamma_R) = 1/(2\Gamma)$. On trouve finalement dans le régime Kondo :

$$G(T = 0) = \frac{2e^2}{h} \quad (6.11)$$

c'est à dire une restauration de la conductance unitaire à basse température, malgré la présence d'interactions fortes sur le point quantique (voir la figure 6.4, à gauche).

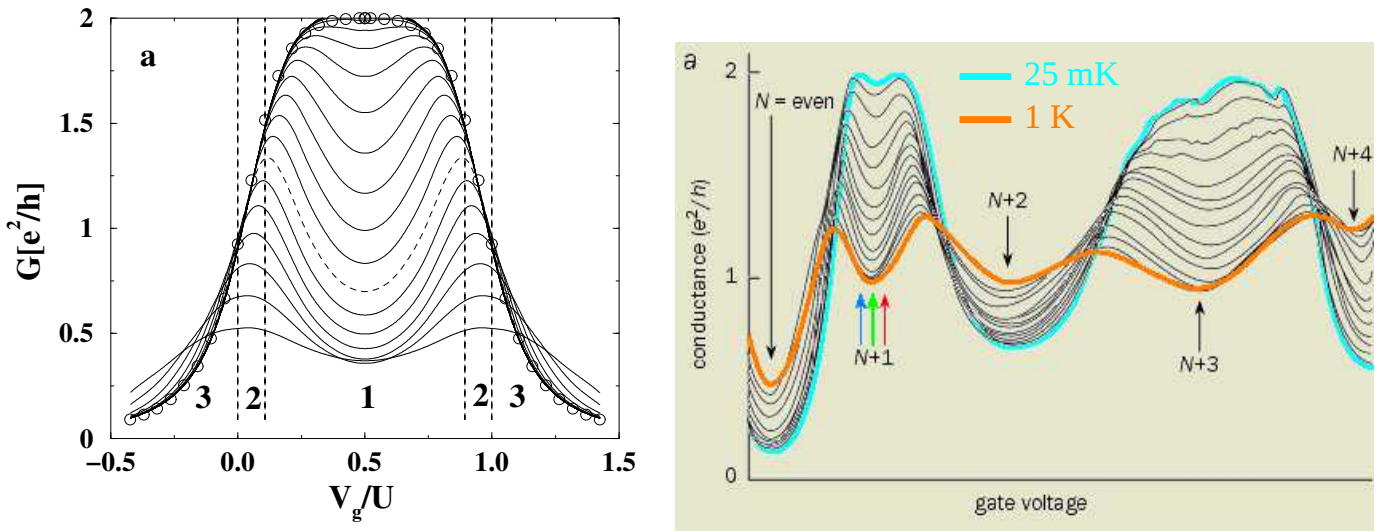


Fig. 6.4 – À gauche : conductance théorique obtenue par groupe de renormalisation numérique (températures décroissantes de bas en haut), d'après [10]. À droite : mise en évidence expérimentale de cet effet sur un point quantique de petite taille, tiré de [11]

³Il s'agit d'une formule de Landauer généralisée au cas en interaction, voir [5]

Cet argument qui permet de montrer comment on obtient une conductance maximale n'est cependant pas le plus intuitif. On peut en effet comprendre de manière plus simple au moins pourquoi la conductance est augmentée dans le régime Kondo. En effet, un simple calcul perturbatif de l'état fondamental du système point+électrodes à l'ordre t^2 (autour de la limite atomique) montre que la fonction d'onde se compose d'un mélange d'états de charge différente (impaire et paire), permettant la traversée des électrons à travers le point (comme aux paliers de l'escalier de Coulomb). Le blocage de Coulomb est donc supprimé lorsqu'il y a un spin net sur l'île, et dans le cas contraire (effet pair-impair). Cet effet a été observé dans les expériences récentes de Goldhaber-Gordon [12], ainsi que par d'autres groupes [11] (voir la figure 6.4). Il est amusant de noter que l'effet Kondo dans les solides est accompagné d'une remontée de *résistance* due à la diffusion des électrons sur les impuretés magnétiques. Ici, la géométrie très particulière du circuit étudié inverse complètement l'effet.

□ Conclusion

Nous concluons cette section en donnant un diagramme schématique et simplifié du comportement de la conductance dans les points quantiques (figure 6.5). Il faut cependant insister sur le fait que de nombreuses études expérimentales et théoriques ont été conduites sur ces systèmes, en modifiant les nombreux paramètres de contrôle du point quantique : influence du champ magnétique [10] et [13], couplage de plusieurs points entre eux [14] et [15], effets hors équilibre à forte tension [16], perte du blocage de Coulomb dans le régime de /forte conductance (analyse théorique par bosonisation [17], NRG [18] et expériences [19]), rôle des fluctuations mesoscopiques [3,20], etc... Nous allons maintenant regarder un peu plus en détail la nature du transport quantique dans des nanostructures d'un type différent.

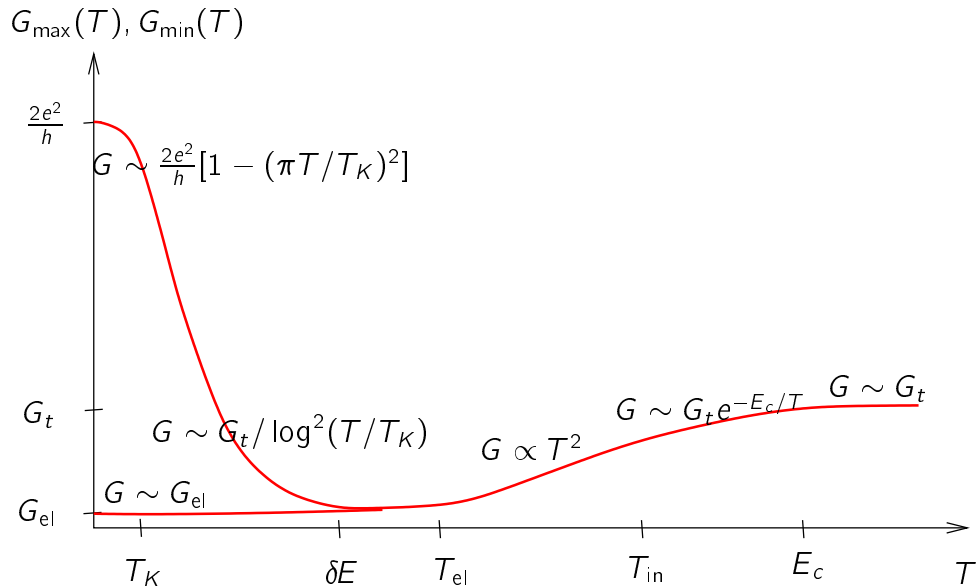


Fig. 6.5 – Conductance schématique d'un point quantique (au maximum et au minimum), d'après [21].

6.2 Les îles métalliques

6.2.1 Réalisation

Bien que la méthode utilisée pour construire une boîte à électrons à partir de jonctions tunnels soit différente de celle employée à la réalisation des points quantiques, l'idée de base reste la même : il s'agit de réaliser une structure de taille nanoscopique, faiblement couplée à des réservoirs d'électrons. Ces jonctions ont ceci de particulier qu'une très mince couche d'oxyde (taille typique $100 \times 100 \times 1 \text{ nm}$) sépare les différentes particules métalliques, conduisant là encore à de très faibles capacitances ($C \sim 10^{-15} \text{ F}$), et à l'observation d'effets de charge à basse température [22, 23]. Le blocage de Coulomb est donc le facteur principal qui gouverne le transport dans ces structures.

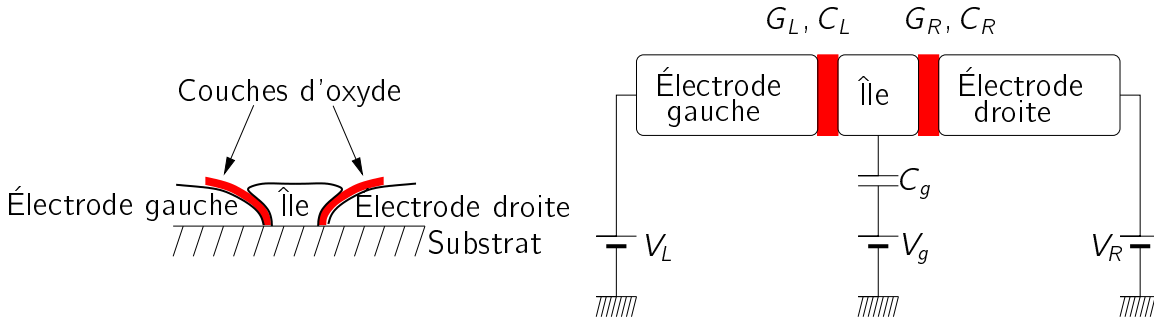


Fig. 6.6 – Transistor à un électron : coupe schématisée à gauche et circuit électrique à droite. Les parties métalliques sont en général des films minces d'aluminium déposés sur un substrat par un procédé de lithographie.

On peut cependant noter quelques différences importantes par rapport aux points quantiques :

- Grand nombre d'électrons dans l'île, qu'on considère métallique
- Faible conductance par canal (très inférieure à e^2/h)
- Grand nombre de canaux ($\mathcal{N} \sim 10^4 - 10^6$)

La conductance "classique" ⁴ de la jonction tunnel (c'est à dire la conductance mesurée à haute température ou calculée naïvement à partir de la formule de Landauer en négligeant les interactions) peut cependant être comparable à e^2/h (dans le régime de courant tunnel fort) à cause des multiples canaux de conduction qui contribuent au transport :

$$G_t = \frac{G_L G_R}{G_L + G_R} \quad (6.12)$$

$$G_{L,R} = 4\pi^2 \frac{e^2}{h} \mathcal{N} |t_{L,R}|^2 D(0) \rho_d(0) \quad (6.13)$$

$$D(\omega) = \sum_k \delta(\omega - \epsilon_k) \quad (6.14)$$

⁴On définit aussi la conductance sans dimension $\alpha_t \equiv G_t h / (4\pi^2 e^2)$.

où l'on a introduit l'hamiltonien de la structure tunnel :

$$\begin{aligned}
 H = & \sum_{k\sigma} \epsilon_k [a_{Lk\sigma}^\dagger a_{Lk\sigma} + a_{Rk\sigma}^\dagger a_{Rk\sigma} + d_{k\sigma}^\dagger d_{k\sigma}] + E_c \left(\sum_{p\sigma} n_{p\sigma} - n_g \right)^2 \\
 & + \sum_{k\sigma p} t_L a_{Lk\sigma}^\dagger d_{p\sigma} + t_R a_{Rk\sigma}^\dagger d_{p\sigma} + \text{h.c.}
 \end{aligned} \quad (6.15)$$

L'énergie de Coulomb $E_c = e^2/(2C)$ est maintenant déterminée par la capacitance totale de la jonction $C \equiv C_L + C_R + C_g$. Cet hamiltonien présente quelques différences ⁵ par rapport à l'hamiltonien de point quantique (6.4) : l'île métallique et les électrodes ont maintenant le même spectre, et $\sigma = 1 \dots \mathcal{N}$ désigne un grand nombre de degrés de liberté transverses (spin et canal). En pratique $\mathcal{N} \sim S/\lambda_F^2 \sim 10^4 - 10^6$, où S est la section de la jonction. Les implications des remarques précédentes sont intéressantes à la fois du côté expérimental et théorique, puisque le problème se trouve ainsi grandement simplifié : la structure électronique de l'île joue peu de rôle, et on peut réduire l'hamiltonien (6.15) à une théorie purement bosonique pour les variables de charge. En effet les processus qui mélangent les degrés de liberté électronique dans un même canal de conduction (comme l'interaction Kondo) se trouvent défavorisés d'un facteur $1/\mathcal{N}$: la charge est alors une bonne variable pour décrire le transport à travers la jonction. On peut donc intégrer les électrons explicitement à l'ordre dominant en $\mathcal{N}$, et obtenir une action effective pour la phase ϕ conjuguée à la charge totale sur l'île [24] :

$$S = \int_0^\beta d\tau \frac{1}{4E_c} (\partial_\tau \phi)^2 + i n_g \partial_\tau \phi - \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \alpha(\tau - \tau') \cos [\phi(\tau) - \phi(\tau')] \quad (6.16)$$

où $\phi(0) = \phi(\beta) [2\pi]$, et $\alpha(\tau) = \alpha_t (\pi/\beta)^2 / [\sin(\pi\tau/\beta)]^2$ est une interaction retardée générée par l'intégration des fermions (électrodes et île) ⁶. Le fait remarquable que l'on constate est qu'il ne subsiste qu'un petit nombre de paramètres contrôlant le transport dans la jonction tunnel : énergie de Coulomb E_c , tension de grille adimensionnée n_g et conductance classique (sans dimension) α_t . La comparaison entre expérience et théorie est donc aisée à condition que l'on sache déterminer ces coefficients inconnus.

6.2.2 Étude théorique

□ Théorie orthodoxe : courant tunnel faible

Lorsque α_t est petit ⁷, on peut calculer les observables en théorie de perturbation à l'ordre α_t . À cause de la symétrie $n_g \rightarrow n_g + 1$ de l'action (6.16), on obtient pour $-1/2 < n_g < 1/2$:

$$\langle n \rangle \equiv n_g + \frac{1}{2E_c} \frac{1}{\beta} \frac{\partial \log \mathcal{Z}}{\partial n_g} = \alpha_t \log \left(\frac{1 + 2n_g}{1 - 2n_g} \right) \quad (6.17)$$

$$E_c^* \equiv -\frac{1}{2\beta} \frac{\partial^2 \log \mathcal{Z}}{\partial n_g^2} \Big|_{n_g=0, T=0} = E_c [1 - 4\alpha_t] \quad (6.18)$$

⁵On a aussi pris les éléments de matrice $t_{L,R}$ constants pour simplifier, ce qui suppose un contact ponctuel entre les électrodes et l'île (de petite taille).

⁶Cette expression, obtenue dans la limite où la largeur de bande des électrodes et de l'île est grande, a besoin d'une régularisation à haute fréquence.

⁷En pratique, le régime perturbatif à l'ordre le plus bas en α_t est valide pour $\alpha_t \ll 0.1$, et pour n_g loin des points de dégénérescence.

On peut interpréter E_c^* comme une énergie de Coulomb renormalisée par les interactions, et ce calcul perturbatif montre que celle-ci est réduite de sa valeur classique. Cette nouvelle échelle signale que les fluctuations quantiques de la charge sur l'île défavorisent le blocage de Coulomb, qu'on ne peut observer que pour des températures inférieures à E_c^* . On voit aussi que le régime de tunneling fort se produit pour $\alpha \gtrsim 0.1$, et que les points de dégénérescence, $n_g = \pm 1/2$, posent un problème pour la théorie de perturbation (fluctuations maximales de la charge). On peut par ailleurs calculer la conductance linéaire à cet ordre :

$$G(n_g, T) = G_t \left[\sum_{n \in \mathbb{Z}} \exp[-\beta E(n)] \right]^{-1} \sum_{n \in \mathbb{Z}} \frac{\beta \Delta(n)}{\exp[\beta \Delta(n)] - 1} \exp[-\beta E(n)] \quad (6.19)$$

où $E(n) = E_c(n - n_g)^2$ et $\Delta(n) = E(n+1) - E(n)$. On remarque quelques particularités de cette expression de courant faible (voir aussi la figure 6.7) :

- À haute température, on retrouve la conductance classique : $G(n_g, T \gg E_c) = G_t$
- À basse température, $G(n_g, T)$ s'annule exponentiellement, sauf à $n_g = \pm 1/2$
- Aux points de dégénérescence, on a $G(n_g = 1/2, T = 0) = G_t/2$
- Les pics de conductance autour de $n = 1/2$ ont une largeur thermique T/E_c
- La conductance normalisée $G(n_g, T)/G_t$ est indépendante de α_t

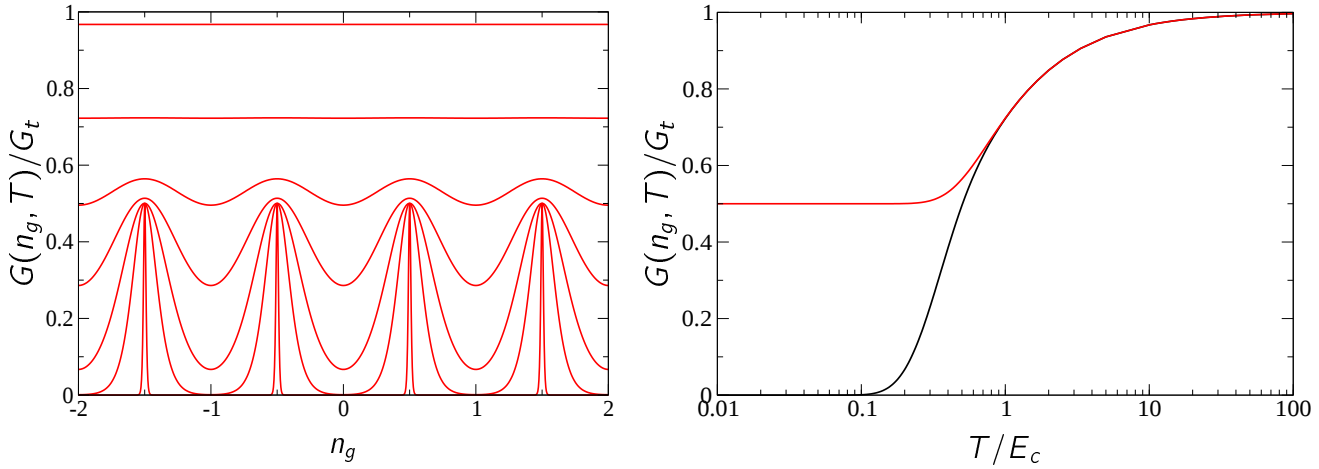


Fig. 6.7 – Conductance normalisée $G(n_g, T)/G_t$ dans la théorie orthodoxe, équation (6.19). À gauche : en fonction de n_g pour $\beta/E_c = 0.1, 1, 2, 3, 5, 10, 100$. À droite : en fonction de T/E_c pour $n_g = 0, 0.5$.

□ Au-delà de la théorie orthodoxe

Des expériences récentes [25–27] ont permis d'étudier très précisément les régimes de conductance intermédiaire et forte : les résultats expérimentaux associés aux valeurs $\alpha_t = 0.015$ et 0.063 sont présentés à la figure 6.8 et montrent des déviations (importantes pour le second échantillon) au comportement orthodoxe (équation (6.19) et figure 6.7).

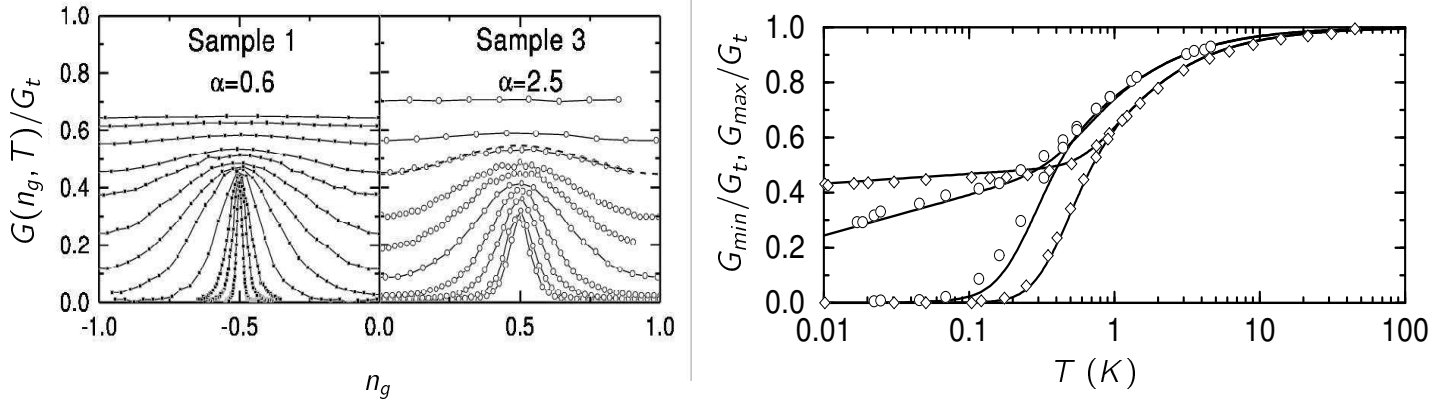


Fig. 6.8 – Conductance expérimentale dans le régime de conductance intermédiaire, d'après [25]. Il faut noter que α est défini ici comme $4\pi^2\alpha_t$, les échantillons représentés correspondent donc à $\alpha_t = 0.015$ et 0.063 . À gauche : dépendance en tension de grille pour des températures allant de 10mK à 1K . À droite : conductance au minimum et au maximum en fonction de la température pour chaque échantillon. Les calculs théoriques en trait continu [28] sont effectués perturbativement à l'ordre α_t^2 (tunneling séquentiel et cotunneling).

On constate très clairement sur le second échantillon que :

- Pour $n_g = 1/2$, la conductance décroît en-dessous de $G_t/2$ à basse température
- Les pics de conductance ont une largeur supérieure à la température
- Le blocage de Coulomb apparaît à des températures E_c^* inférieures à E_c
- E_c^* décroît rapidement lorsque α_t augmente ⁸

Pour comparer à la théorie, il est nécessaire d'extraire l'énergie de Coulomb nue et la conductance de la jonction, ce qui se fait en comparant les mesures de haute température à des calculs semi-classiques [29] (valides dans ce régime). On trouve ainsi $E_c \simeq 1\text{K}$ et les valeurs de α_t mentionnées ci-dessus. Les expériences dans le régime intermédiaire ($\alpha_t \simeq 0.06$) sont bien reproduites par des calculs théoriques allant au-delà de la théorie orthodoxe : théorie de perturbation à l'ordre α_t^2 [28, 30], ou approximation harmonique autocohérente [31]. Des expériences plus récentes [26] dans le régime de courant tunnel plus fort ($\alpha_t \simeq 0.2$) sont bien représentées par des calculs semi-classiques, avec un désaccord plus marqué à basse température (comme il se doit).

Au niveau purement théorique, l'action (6.16) est donc bien contrôlée dans le régime de courant tunnel faible et intermédiaires ⁹. Le voisinage des points de dégénérescence $\langle n \rangle = 1/2$ est particulier à cause des fluctuations maximales entre deux états de charge voisins, et montre des comportements singuliers ¹⁰, ce qui peut se comprendre par une analogie (due à Matveev)

⁸Ce comportement est encore plus marqué pour un autre échantillon dans le régime de courant tunnel fort (non représenté), avec $\alpha_t = 0.2$.

⁹Pour un condensé des approches analytiques et numériques, voir respectivement [30] et [32].

¹⁰Pour $n_g = 1/2$, la pente de $\langle n \rangle$ au palier diverge en $\log(E_c/T)$ et la conductance $G(n_g = 1/2, T)$ s'annule à basse température en $1/\log(E_c/T)$.

du problème avec le modèle Kondo à $\mathcal{N}$ -canaux [26, 33, 34]. Un tel comportement semble observé dans les expériences [25–27], et en particulier dans [35]. Dans le régime de courant fort ($\alpha_t > 0.2$), le problème est traitable par des développements semi-classiques [26, 29] (limités à haute température), des calculs d'instantons [36], des équations de flot [37, 38], ou des approches purement numériques [32]. Tous ces travaux concordent à trouver une réduction exponentielle de l'énergie de Coulomb renormalisée dans ce régime, $E_c^* \propto E_c \exp(-2\pi^2\alpha_t)$.

Tant par les résultats des expériences que par la théorie, la conclusion marquante de cette discussion est que le blocage de Coulomb survit dans le régime de conductance forte, mais seulement à des températures très réduites par rapport à l'échelle nue E_c/k_B . Une dernière illustration de cette suppression partielle du blocage de Coulomb est donnée à la figure 6.9 (pour $\alpha_t = 0.4$ la disparition d'effets de charge semble complète à la température choisie $T/E_c = 0.03$, témoignant de la petitesse de E_c^*).

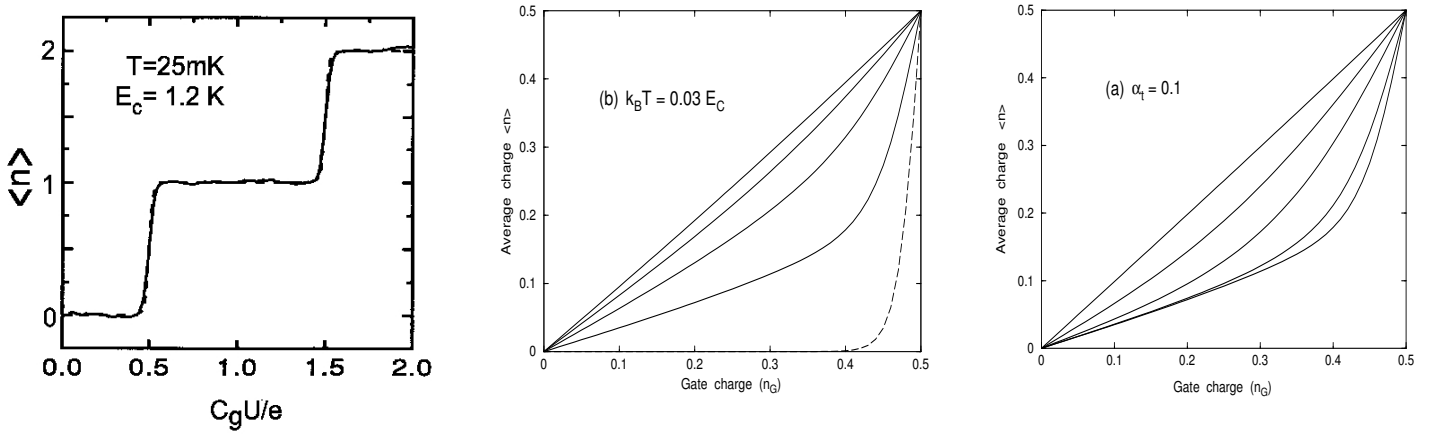


Fig. 6.9 – Charge sur l'île $\langle n \rangle$ en fonction de la tension de grille. À gauche, mesure expérimentale à basse température et faible conductance : blocage de Coulomb parfait, d'après [39]. Au milieu et à droite : calculs QMC [32] sur le modèle bosonique illustrant les différents régimes. Le premier graphe est à température fixée ($T/E_c = 0.03$) avec $\alpha_t = 0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4$. Le second est à $\alpha_t = 0.1$ pour $T/E_c = 0.03, 0.04, 0.1, 0.2, 0.6$.

□ Conclusion

Comme pour les structures réalisées à partir de gaz d'électrons confiné (points quantiques), le domaine des nano-jonctions métalliques est en croissance spectaculaire depuis dix ans. Parmi les développements récents, on peut citer : l'observation du blocage de Coulomb à température ambiante dans des structures de taille typique 10nm [40], la réalisation d'îles supraconductrices dans le régime blocage de Coulomb [39] (cela donne une direction possible pour réaliser des

6.2. LES ÎLES MÉTALLIQUES

bits quantiques par superposition d'états avec différents nombres de paires de Cooper [41]), etc...

Il existe aussi une motivation pratique importante, puisque la réduction croissante de la taille des transistors (MOSFET) utilisés dans les puces électroniques va mener bientôt à rencontrer des effets dus à la mécanique quantique, comme ceux discutés ici. Pour l'heure, les applications du transistor à un électron (figure 6.10) restent limitées au domaine de la métrologie [42].

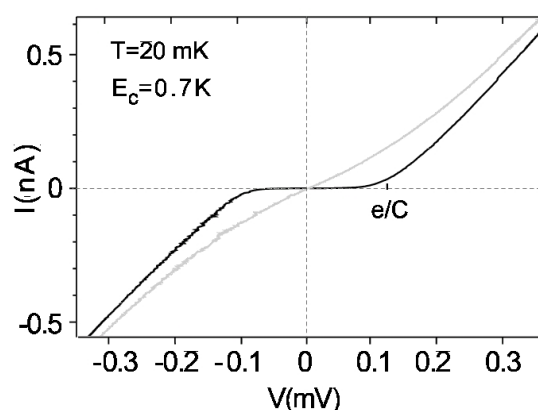


Fig. 6.10 – Illustration de l'effet transistor dans une île métallique par la caractéristique courant-tension $I(V)$, d'après [39]. Les deux courbes correspondent à une tension de grille V_g prise dans une vallée (transistor bloqué) et en bord de marche (transistor passant). La différence essentielle avec un transistor "classique" est que l'effet se produit de manière périodique, à chaque ajout d'un électron dans l'île.

Bibliographie du chapitre 6

- [1] **M. Kastner**, *Rev. Mod. Phys.* **64**, 849 (1992).
- [2] **J. A. Folk, R. Patel, S. F. Godijn, A. G. Huibers, S. M. Cronenwett, C. M. Marcus, K. Campman et A. C. Gossard**, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1699 (1996).
- [3] **I. L. Aleiner, P. W. Brouwer et L. I. Glazman**, *Phys. Rep.* **358**, 309 (2002).
- [4] **L. Kouwenhoven et C. Marcus**, *Physics World* (1996).
- [5] **Y. Meir, N. S. Wingreen et P. Lee**, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3048 (1991).
- [6] **D. V. Averin et Y. V. Nazarov**, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2446 (1990).
- [7] **L. I. Glazman et K. A. Matveev**, *Sov. Phys. JETP* **71**, 1031 (1990).
- [8] **L. I. Glazman et M. E. Raïkh**, *JETP Lett.* **47**, 452 (1988).
- [9] **T. K. Ng et P. Lee**, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1768 (1988).
- [10] **T. A. Costi**, cond-mat/0212651.
- [11] **L. Kouwenhoven et L. Glazman**, *Physics World* **14**, 33 (2001).
- [12] **D. Goldhaber-Gordon, H. Shtrikman, D. Mahalu, D. Abusch-Magder, U. Meirav et M. A. Kastner**, *Nature* **391**, 156 (1998).
- [13] **J. Nygard, D. H. Cobden et P. E. Lindelof**, *Nature* **408**, 342 (2000).
- [14] **A. Georges et Y. Meir**, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3508 (1999).
- [15] **W. G. van der Wiel, S. D. Franceschi, J. M. Elzerman, T. Fujisawa, S. Tarucha et L. P. Kouwenhoven**, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 1 (2003).
- [16] **N. S. Wingreen et Y. Meir**, *'prb* **49**, 11040 (1994).
- [17] **K. A. Matveev**, *Phys. Rev. B* **51**, 1743 (1995).
- [18] **E. Lebanon, A. Schiller et F. B. Anders**, cond-mat/0211656.
- [19] **C. Livermore, C. H. Crouch, R. M. Westervelt, K. L. Campman et A. C. Gossard**, *Science* **274**, 1332 (1996).
- [20] **I. L. Aleiner et L. I. Glazman**, *Phys. Rev. B* **57**, 9608 (1998).
- [21] **L. I. Glazman et M. Pustilnik**, cond-mat/0302159.
- [22] **T. A. Fulton et G. J. Dolan**, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 109 (1987).
- [23] **P. Delsing, K. K. Likharev, L. S. Kuzmin et T. Claeson**, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1180 (1989).

- [24] **G. Schön et A. D. Zaikin**, *Phys. Rep.* **198**, 237 (1990).
- [25] **P. Joyez, V. Bouchiat, D. Esteve, C. Urbina et M. H. Devoret**, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1349 (1997).
- [26] **D. Chouvaev, L. S. Kuzmin, D. S. Golubev et A. D. Zaikin**, *Phys. Rev. B* **59**, 10599 (1999).
- [27] **C. Wallisser, B. Limbach, P. vom Stein, R. Schäfer, C. Theis, G. Göppert et H. Grabert**, *Phys. Rev. B* **66**, 125314 (2002).
- [28] **J. König, H. Schoeller et G. Schön**, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4482 (1997).
- [29] **G. Göppert, X. Wang et H. Grabert**, *Phys. Rev. B* **55**, 10213 (1997).
- [30] **D. S. Golubev, J. König, H. Schoeller et G. Schön**, *Phys. Rev. B* **56**, 15782 (1997).
- [31] **P. Joyez, D. Esteve et M. H. Devoret**, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1956 (1998).
- [32] **C. P. Herrero, G. Schön et A. D. Zaikin**, *Phys. Rev. B* **59**, 5728 (1999).
- [33] **K. A. Matveev**, *Sov. Phys. JETP* **72**, 892 (1991).
- [34] **D. S. Golubev et A. D. Zaikin**, *Phys. Rev. B* **50**, 8736 (1994).
- [35] **D. Berman, N. B. Zhitenev, R. C. Ashoori et M. Shayegan**, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 161 (1999).
- [36] **S. V. Panyukov et A. D. Zaikin**, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3168 (1991).
- [37] **F. Guinea et G. Schön**, *Euro. Phys. Lett.* **1**, 585 (1986).
- [38] **J. König et H. Schoeller**, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3511 (1998).
- [39] **V. Bouchiat**, *Thèse de doctorat (CEA)* (1997).
- [40] **L. Zhuang, L. Guo et S. Y. Chou**, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1205 (1998).
- [41] **D. Vion, A. Aassime, A. Cottet, P. Joyez, H. Pothier, C. Urbina, D. Esteve et M. H. Devoret**, *Science* **296**, 886 (2002).
- [42] **M. H. Devoret et C. Glattli**, *Phys. World* (1998).

7. Compétition entre blocage de Coulomb et cohérence électronique

Le chapitre précédent a été l'occasion d'illustrer le succès des théories effectives de phase seule (variable conjuguée à la charge) pour calculer la conductance à travers des îles métalliques dans le régime de blocage de Coulomb. Cependant, cette approche n'est plus valide lorsque le transport redevient cohérent, comme c'est le cas dans les points quantiques pour des températures inférieures à l'espacement entre niveaux (manifestation de l'effet Kondo). L'essentiel de ce chapitre (sections 7.1 et 7.2) est la présentation d'une approche unificatrice de ces deux comportements extrêmes rencontrés dans les structures mésoscopiques à un électron. On s'intéressera en particulier à divers effets de séparation des niveaux dans les points quantiques, pour des situations intermédiaires entre blocage de Coulomb et effet Kondo ¹. Pour conclure ce dernier chapitre et cette thèse, on discutera brièvement dans la section 7.3 de la possibilité d'observer une transition métal-isolant dans des systèmes macroscopiques pour lesquels les effets à la fois de charge et de cohérence sont importants : matériaux granulaires formés de nanoparticules métalliques, et réseaux de points quantiques couplés.

7.1 Approche théorique unifiée pour les structures à un électron

Dans cette première section, nous nous proposons d'étendre directement les approches usuelles du blocage de Coulomb (action effective bosonique) pour inclure désormais le régime cohérent où le transport est assisté par les processus Kondo à basse température. Comme nous allons le voir, il est crucial de conserver par ailleurs les degrés de liberté fermioniques. Considérons le hamiltonien suivant, qui peut être utilisé pour décrire tant les points quantiques que les îles métalliques :

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k a_{k\sigma}^\dagger a_{k\sigma} + \sum_{p\sigma} \epsilon_p d_{p\sigma}^\dagger d_{p\sigma} + E_c \left(\sum_{p\sigma} n_{p\sigma} - n_g \right)^2 + \sum_{k\sigma p} t (a_{k\sigma}^\dagger d_{p\sigma} + d_{p\sigma}^\dagger a_{k\sigma}) \quad (7.1)$$

Nous avons inclus ici une seule électrode pour simplifier les formules, et supposé un contact ponctuel entre cette électrode et la boîte à électrons (dont la forme du spectre ϵ_p sera spécifiée par la suite). L'électrode est considérée métallique, avec une densité d'état $D(\epsilon)$ continue. L'indice $p = 1 \dots N_L$ correspond aux niveaux d'énergie dans le point/l'île, et $\sigma = 1 \dots \mathcal{N}$

¹Ce travail a été réalisé en collaboration avec A. Georges, F. Guinea et P. San José (Article-5).

est un indice de spin et de canal de conduction (conservé par l'hamiltonien tunnel). On écrit une représentation de rotateur $d_{p\sigma}^\dagger = f_{p\sigma}^\dagger e^{i\theta}$, comme au chapitre 3, et l'on intègre l'électrode explicitement :

$$\begin{aligned}
 S = & \int_0^\beta d\tau \sum_{p\sigma} f_{p\sigma}^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_p - \delta\mu) f_\sigma + \frac{(\partial_\tau \theta + i\delta\mu)^2}{4E_c} + i n_g \partial_\tau \theta \\
 & + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{1}{N_L} \Delta(\tau - \tau') \sum_{pp'\sigma} f_{p\sigma}^\dagger(\tau) f_{p'\sigma}(\tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \quad (7.2)
 \end{aligned}$$

On peut remarquer dans l'expression précédente la position particulière des indices dans le dernier terme. On a noté, en extrayant un facteur $1/N_L$, $\Delta(i\omega) \equiv \sum_k N_L t^2 / (i\omega - \epsilon_k)$, et introduit un potentiel chimique renormalisé $\delta\mu$ qui est essentiel pour maintenir l'équivalence entre états de charge fermionique et moment angulaire du rotateur.

L'approche de phase-seule, valide pour $\mathcal{N} \gg 1$ et pour $T \gg \delta E$ (δE est l'espacement des niveaux ϵ_p), conduit à l'action purement bosonique (6.16) du chapitre précédent (pour prouver ce résultat, il faut développer la fonction de partition en puissances de $\Delta(\tau)$ dans la limite où $\mathcal{N}$ est grand, et resommer les contributions dominantes).

□ Approximation utilisée

Au lieu de cela, en s'inspirant de la section 3.4, on réalise une factorisation du couplage fermion-boson dans l'action précédente :

$$\begin{aligned}
 S \simeq & \int_0^\beta d\tau \sum_{p\sigma} f_{p\sigma}^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_p - \delta\mu) f_\sigma + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{1}{N_L} \Delta(\tau - \tau') \langle e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \rangle \sum_{pp'\sigma} f_{p\sigma}^\dagger(\tau) f_{p'\sigma}(\tau') \\
 & + \int_0^\beta d\tau \frac{(\partial_\tau \theta + i\delta\mu)^2}{4E_c} + i n_g \partial_\tau \theta + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \frac{1}{N_L} \sum_{pp'\sigma} \langle f_{p\sigma}^\dagger(\tau) f_{p'\sigma}(\tau') \rangle e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \quad (7.3)
 \end{aligned}$$

La partie fermionique est donc triviale, alors que la partie bosonique fait apparaître une action de phase avec un goût de déjà vu. La nouveauté de cette approche est que les noyaux intervenant dans l'expression précédente sont déterminés de façon autocohérente, et constitue une sorte de resommation de la théorie de perturbation en $\Delta(\tau)$, qui va donc au-delà de l'approche de phase seule. Cette factorisation constitue l'étape essentielle de ce travail, et la suite du chapitre consiste à en analyser les conséquences. Nous allons voir tout d'abord que cette approximation la plus simple possible nous permet de capturer à la fois le blocage de Coulomb et l'effet Kondo dans les structures à un électron.

7.1.1 Île métallique : blocage de Coulomb

Considérons ici le cas d'une île métallique, pour laquelle le spectre ϵ_p est continu, avec une densité d'états $\rho_0(0)$ identique à celle des électrodes, $D(0)$. De plus, le couplage de l'île aux électrodes présente en pratique un grand nombre de canaux de transmission $\mathcal{N} \sim 10^4 \gg 1$.

On voit tout de suite que notre théorie de champ moyen se réduit *exactement* à l'approche de phase seule, qui est utilisée pour décrire la physique de ces jonctions tunnel. En effet, dans les îles métalliques, l'élément de matrice tunnel est en général très petit par rapport à la largeur de bande W des grains (couche d'oxyde), typiquement $|t|^2 \sim W^2/(\mathcal{N}N_L)$. On en déduit que la conductance classique

$$G_t = 4\pi^2(e^2/h)\mathcal{N}N_L|t|^2D(0)\rho_0(0) \quad (7.4)$$

peut être d'un ordre de grandeur comparable (ou inférieure) au quantum e^2/h , ce qui permet d'observer le blocage de Coulomb dans ces structures. D'un point de vue théorique, cela implique que $\Delta(\tau) \propto 1/\mathcal{N}$, et permet de négliger la self-énergie fermionique dans (7.3), alors que la self-énergie bosonique, proportionnelle à G_t , survit [1]. On arrive donc à un propagateur de fermions libres :

$$G_0^{pp'}(\tau) \equiv \langle f_{p\sigma}^\dagger(0)f_{p'\sigma}(\tau) \rangle_0 \quad (7.5)$$

$$G_0^{pp'}(i\omega) = \frac{\delta_{pp'}}{i\omega - \epsilon_p + \delta\mu} \quad (7.6)$$

L'action bosonique qui en résulte est bien celle étudiée au chapitre précédent, équation (6.16), car le noyau (self-énergie dans le langage précédent) qui décrit la dynamique des phases est simplement :

$$\alpha(\tau) = -\Delta(\tau)\frac{1}{N_L} \sum_p G_0^{pp}(-\tau) = \alpha_t \frac{(\pi/\beta)^2}{[\sin(\pi\tau/\beta)]^2} \quad (7.7)$$

la seconde égalité étant établie dans la limite de grande largeur de bande ² pour l'île et les électrodes. On a noté ici $\alpha_t \equiv G_t h/(4\pi^2 e^2)$ la conductance sans dimension. On conclut que notre approximation modélise le blocage de Coulomb dans les îles métalliques de manière exacte.

7.1.2 Point quantique : blocage de Coulomb et effet Kondo

Comme précisé au chapitre précédent, les paramètres intervenant dans la description des points quantiques sont assez différents de ceux utilisés pour les îles métalliques, même si le modèle initial est essentiellement le même. En effet, le nombre de canaux transverses $\mathcal{N}$ est d'ordre un (pour un point peu ouvert), et l'espacement δE des niveaux ϵ_p du point n'est pas négligeable (à cause de la plus faible densité électronique du gaz bidimensionnel d'électrons). Pour étudier ces effets plus en détail, commençons par simplifier la partie fermionique de l'action (7.3). On a besoin de calculer le propagateur des fermions qui intervient dans l'expression du bain bosonique :

$$\alpha(\tau) = -\Delta(\tau)\frac{1}{N_L} \sum_{pp'\sigma} \langle f_{p\sigma}^\dagger(\tau)f_{p'\sigma}(0) \rangle = -\mathcal{N}\Delta(\tau)\frac{1}{N_L} \sum_{pp'} G_f^{pp'}(-\tau) \quad (7.8)$$

²On remarque de plus que la dépendance en $\delta\mu$ disparaît complètement dans le secteur fermionique, et peut donc être réabsorbée dans une redéfinition du potentiel de grille V_g .

où l'on a introduit la fonction de Green fermionique, en notation matricielle :

$$\widehat{G}_f = [\widehat{G}_0^{-1} - \frac{1}{N_L} \widehat{\Sigma}_f]^{-1} = \widehat{G}_0 [1 - \frac{1}{N_L} \widehat{\Sigma}_f \widehat{G}_0]^{-1} \quad (7.9)$$

$$G_0^{pp'}(i\omega) = \frac{\delta_{pp'}}{i\omega - \epsilon_p + \delta\mu} \quad (7.10)$$

$$\Sigma_f^{pp'}(\tau) = \Delta(\tau) \langle e^{i\theta(\tau) - i\theta(0)} \rangle \quad (7.11)$$

L'inversion de cet objet conduit à l'expression suivante pour le propagateur "local" :

$$G_f^{loc}(i\omega) \equiv \frac{1}{N_L} \sum_{pp'} G_f^{pp'}(i\omega) = \left[\frac{1}{\frac{1}{N_L} \sum_p 1/(i\omega - \epsilon_p + \delta\mu)} - \Sigma_f(i\omega) \right]^{-1} \quad (7.12)$$

et le problème qu'il suffit de résoudre en fin de compte est l'action de phase autocohérente :

$$S = \int_0^\beta d\tau \frac{(\partial_\tau \theta + i\delta\mu)^2}{4E_c} + i n_g \partial_\tau \theta - \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \alpha(\tau - \tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \quad (7.13)$$

$$\alpha(\tau) = -\mathcal{N} \Delta(\tau) G_f^{loc}(-\tau) \quad (7.14)$$

Les équations (7.11-7.14) sont le résultat central de ce chapitre, et décrivent les effets des corrélations pour des points quantiques dans le régime de blocage de Coulomb (haute température) ou dans le régime Kondo (basse température), comme nous allons maintenant le montrer.

□ Régime blocage de Coulomb dans les points quantiques

Considérons des températures plus faibles que l'énergie de charge E_c , mais bien supérieures à l'espacement δE des niveaux dans le point. Dans ce cas, on peut prendre une limite continue sur les états d'énergie, et simplifier

$$\frac{1}{N_L} \sum_p \frac{1}{(i\omega - \epsilon_p + \delta\mu)} \sim -i\pi\rho_0(0) \quad (7.15)$$

ce qui donne le propagateur des pseudo-fermions de l'île :

$$G_f^{loc}(i\omega) \sim \left[\frac{i}{\pi\rho_0(0)} - \Sigma_f(i\omega) \right]^{-1} \quad (7.16)$$

Il apparaît donc une partie imaginaire constante dans cette fonction de Green, qui doit dominer largement la self-énergie $\Sigma_f(i\omega)$ à basse fréquence. On se retrouve donc avec un noyau $\alpha(\tau)$ similaire à celui (7.7) obtenu pour une île métallique, c'est à dire avec une décroissance en $1/\tau^2$ à long temps. Il y a donc blocage de Coulomb dans ce régime, à cause de la partie bosonique (les fermions pouvant apporter des corrections non négligeables à plus haute énergie par rapport à une action de type phase-seule). On vérifie de plus que l'hypothèse de négliger $\Sigma_f(i\omega)$ à basse fréquence dans (7.16) est compatible avec ce résultat, puisque dans le régime de blocage de Coulomb, le propagateur $\langle e^{i\theta(\tau) - i\theta(0)} \rangle$ décroît exponentiellement en temps (il en est donc de même pour $\Sigma_f(\tau)$, à cause de l'équation (7.11)).

□ **Effet Kondo dans les points quantiques**

À très basse température ($T \ll \delta E$), considérons uniquement le niveau d'énergie ϵ_p le plus près du niveau de Fermi dans le point (disons $\epsilon_{p=0} = 0$). On sait d'après la section 3.4, que la factorisation (7.3) est suffisante pour décrire l'effet Kondo correctement. Notre approche est donc interpolative entre ce régime cohérent (où la conductivité retrouve la limite unitaire grâce à l'effet Kondo), et le blocage de Coulomb (avec une conductivité décroissante en température). Il faut bien entendu résoudre dans les deux cas le problème de phase (7.3), qui est couplé aux degrés de liberté fermioniques seulement par l'intermédiaire du noyau $\alpha(\tau)$, et l'on dispose pour cela de diverses méthodes analytiques et numériques, revues au chapitre précédent. Afin de faciliter l'analyse, nous allons dans la suite considérer la limite de grand nombre de composante pour l'action de phase (modèle-sigma), de la même façon qu'à la section 3.4. On introduit donc le champ de phase $X(\tau) = e^{i\theta(\tau)}$, et son corrélateur $G_X(\tau) = \langle X(\tau)X^*(0) \rangle$. Les équations que nous obtenons ainsi s'écrivent (on se place par ailleurs dans le cas particule-trou symétrique, c'est à dire en centre de marche de l'escalier de Coulomb) :

$$G_X(i\nu_n) = \left[\frac{\nu_n^2}{2E_c} + \lambda - \Sigma_X(i\nu_n) \right]^{-1} \quad (7.17)$$

$$G_X(\tau = 0) = 1 \quad (7.18)$$

$$G_f^{loc}(i\omega_n) = \left[\frac{1}{\frac{1}{N_L} \sum_p 1/(i\omega_n - \epsilon_p)} - \Sigma_f(i\omega_n) \right]^{-1} \quad (7.19)$$

$$\Sigma_X(\tau) = \mathcal{N} \Delta(\tau) G_f^{loc}(\tau) \quad (7.20)$$

$$\Sigma_f(\tau) = \Delta(\tau) G_X(\tau) \quad (7.21)$$

$$\Delta(i\omega_n) = \sum_k \frac{N_L t^2}{i\omega_n - \epsilon_k} \quad (7.22)$$

Ces équations simplissimes régissent en première approximation la physique de base des points quantiques et des îles métalliques (loin des marches de conductance). On aurait pu aussi envisager de résoudre l'action bosonique dans un champ moyen encore plus simple, en condensant les variables de phase $\langle e^{i\theta} \rangle$ comme à la section 3.3. Cette approche a été utilisée récemment [2] dans le cas de deux impuretés couplées, pour étudier le transport à travers deux points quantiques en série (compétition entre effet Kondo et interaction d'échange).

7.2 Régimes intermédiaires de conduction dans les points quantiques

Nous allons illustrer ici la solution numérique du système d'équations précédent. Dans les calculs qui suivent, on prendra $\mathcal{N} = 2$ (un canal de conduction) et l'énergie de Coulomb sera fixée à $E_c = 1$. La largeur de bande $\Lambda = 50$ des électrodes sera considérée comme la plus grande échelle du problème. La forme du spectre des électrodes jouant donc peu de rôle, on a pris une semi-circulaire :

$$\Delta(i\omega) = |t|^2 \frac{8}{\Lambda^2} \left(i\omega - iSg(\omega) \sqrt{\omega^2 + \Lambda^2/4} \right) \quad (7.23)$$

On fixera t de façon que la largeur à N_L niveaux $\Gamma^{\text{multi}} \equiv |\text{Im}\Delta(i0)| = 4N_L t^2/\Lambda = 0.5$ soit légèrement inférieure à E_c (observation facile de l'effet Kondo). Cela correspond au régime de conductance forte, utilisé dans les expériences qui ont mis en évidence l'effet Kondo dans les points quantiques, et est schématisé à la figure 7.1.

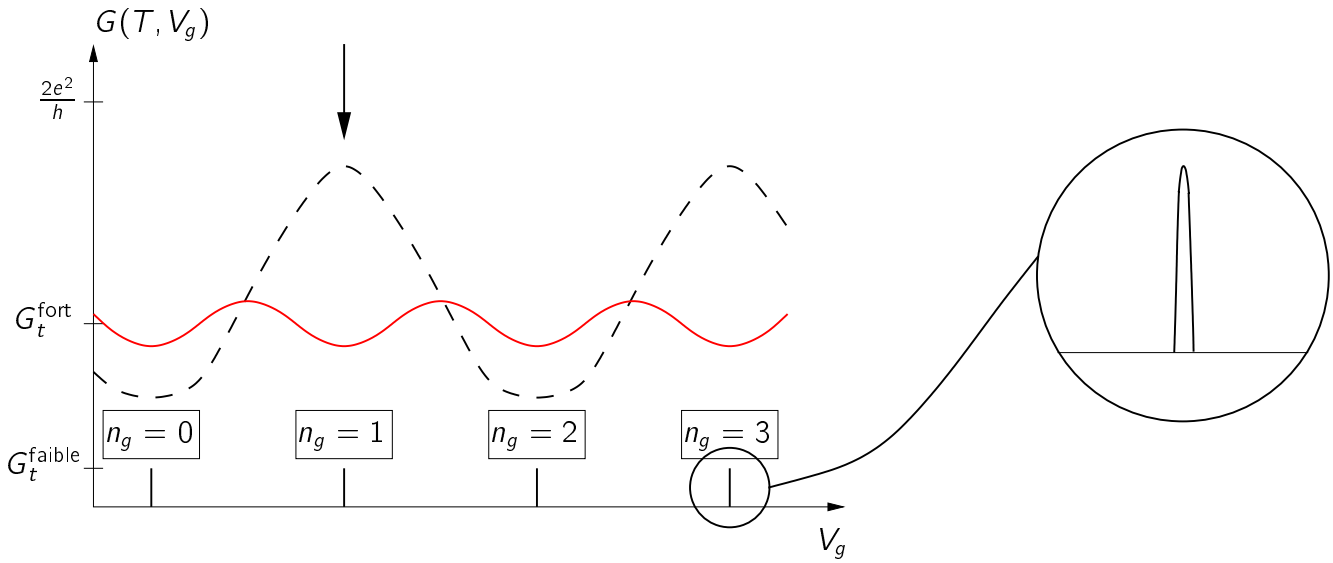


Fig. 7.1 – Régime de conductance forte, $G_t^{\text{fort}} \sim e^2/h$, dans un point quantique (schématique) : courbe à haute température (trait continu) et sous la température Kondo (pointillés). On indique aussi le régime de conductance faible, $G_t^{\text{faible}} \ll e^2/h$ (pics étroits). La flèche indique la région d'applicabilité des résultats obtenus dans cette section (vallées de conduction).

Pour le calcul de la conductance, on obtiendra la fonction de Green locale par factorisation, $G_d(\tau) = G_f^{\text{loc}}(\tau)G_X(\tau)$, puis prolongement analytique afin de pouvoir appliquer la formule de Landauer, équation (6.8). Le but de cette section est de montrer l'intérêt de la méthode de rotateurs pour étudier des régimes de couplage qui ne sont pas facilement accessibles par les méthodes usuelles (théorie de phase seule ou modèle effectif d'Anderson à un seul niveau d'impureté).

7.2.1 Effets de l'espacement des niveaux

L'analyse basse fréquence des équations de champ moyen montre que l'effet Kondo subsiste à température nulle tant que l'espacement entre niveaux est fini. En effet, l'obtention de la règle de Friedel repose sur un comportement singulier à basse fréquence de la self-énergie $\Sigma_f(i\omega)$, qui n'est pas modifié par la présence des N_L niveaux dans le points, comme on le voit à l'équation (7.19). Ceci est valide tant que $\delta E \neq 0$ et on trouve la conductance de température nulle (en utilisant les résultats de la section 3.4) :

$$G(T = 0) = \frac{2e^2}{h} \frac{\pi/2}{\mathcal{N} + 1} \tan\left(\mathcal{N} \frac{\pi/2}{\mathcal{N} + 1}\right) \simeq 0.9 \frac{2e^2}{h} \quad (7.24)$$

(calculée ici pour $\mathcal{N} = 2$). On retrouve ainsi une conductance unitaire (en faisant abstraction de la violation d'environ 10% du résultat exact qui provient de la factorisation approximative de l'action), signature de l'effet Kondo dans les points quantiques. Cependant, lorsque l'espacement δE entre niveaux dans le point se réduit, la température Kondo diminue très fortement, jusqu'à devenir exactement nulle dans la limite $\delta E \rightarrow 0$, si l'on maintient une largeur de bande du point $W = (N_L - 1)\delta E$ finie. Le cas limite des niveaux denses où l'on retrouve le blocage de Coulomb a été expliqué précédemment aux équations (7.15-7.16). Cet effet est clairement observé sur la figure 7.2.

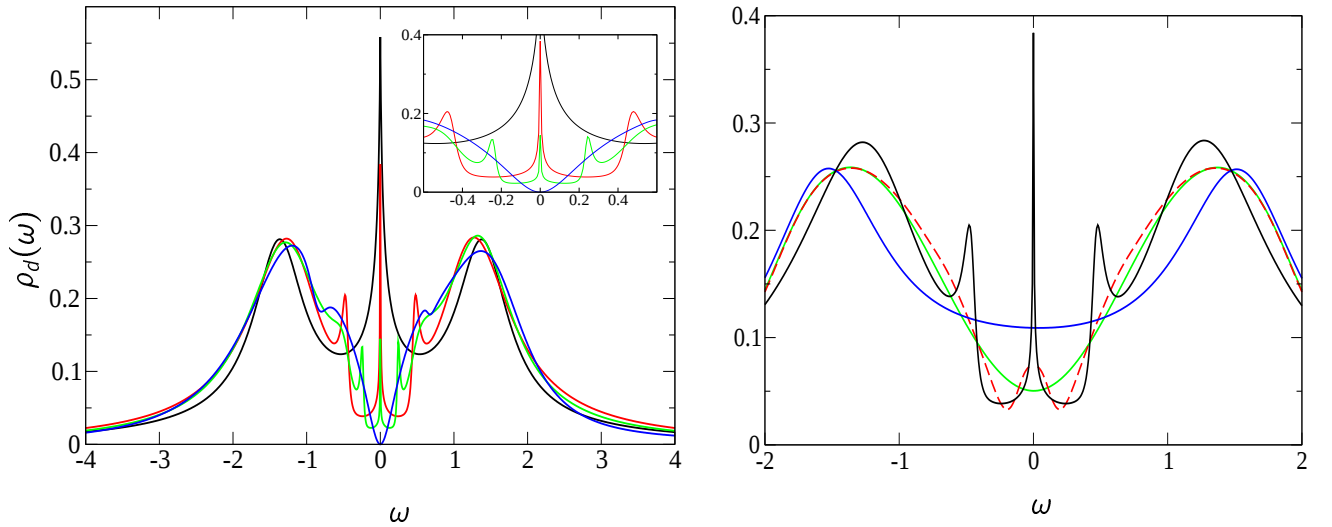


Fig. 7.2 – À gauche : tracé de $\rho_d(\omega)$ à $W = E_c = 2\Gamma^{\text{multi}} = 1$ et basse température ($\beta = 800$), pour $N_L = 1, 3, 5, \infty$ (de haut en bas en suivant le pic central), illustrant la réduction de T_K avec N_L . À droite : effet de la température sur $\rho_d(\omega)$ pour la courbe $N_L = 3$; les températures croissantes correspondent à $\beta = 800$ (pic central fort), $\beta = 25$ (pic central écrasé), $\beta = 10$ (minima profond) et $\beta = 2$ (minima rempli par les excitations thermiques). Comparer cette évolution avec la conductance $G(T, N_L = 3)$ de la figure 7.3.

On peut aussi estimer qualitativement la température Kondo (par un argument analogue à celui donné à la section 3.4). En effet, le comportement à temps long de la fonction de Green fermionique dans le régime blocage de Coulomb est $G_f^{loc}(\tau) \sim -1/(2N_L)\text{Sg}(\tau)$, ce qui conduit à la self-énergie de rotateur $\Sigma_X(i\nu) \sim -(\Gamma^{\text{multi}}/N_L)\log|\nu|$. La température Kondo est donnée lorsque cette self-énergie est d'ordre E_c , c'est à dire pour :

$$T_K(N_L) \propto \exp\left(-C\frac{E_c N_L}{\Gamma^{\text{multi}}}\right) = \exp\left(-C\frac{E_c}{\Gamma}\right) \quad (7.25)$$

où C est une constante d'ordre 1 et $\Gamma = \Gamma^{\text{multi}}/N_L$ la largeur à un niveau. La température Kondo est donc en pratique très faible dans un point quantique, sauf si l'on se place dans le régime de conductance forte (*i.e.* ce qui revient à augmenter Γ dans l'expression précédente).

Examinons maintenant plus en détail la figure 7.2, qui montre la densité d'états locale sur le point en fonction de la température et du nombre d'états N_L . Sur le tracé de gauche, on voit nettement la rapide diminution de T_K avec N_L par l'aminicissement du pic central (ainsi que par son effondrement vertical à température fixée non nulle). Lorsque N_L est assez grand, le spectre présente un pseudogap, caractéristique du blocage de Coulomb sur le point. La partie droite de la même figure présente l'évolution en température du cas $N_L = 3$. Lorsque l'on baisse la température, la densité d'état à basse fréquence commence par diminuer à $T < E_c^*$ (blocage de Coulomb des états de charge différente). On arrive alors à un minimum de $\rho_d(0)$ et puis une remontée lorsque l'effet Kondo se met en place (à $T_K \lesssim T$) ; la densité d'état a alors un maximum peu prononcé. Celui-ci se développe pleinement aux températures plus basses que la température Kondo, avec restauration de la limite unitaire. Cette description permet de comprendre aussi l'évolution de la conductance d'équilibre à travers le point, qui est montrée à la figure 7.3. Cette figure illustre aussi la diminution de la température Kondo avec N_L par le déplacement vers la gauche du minimum de conductance. On voit très bien sur cette figure l'amorce du régime de blocage de Coulomb pour $T_K < T < E_c$ (ce régime s'étend jusqu'à température nulle pour une densité continue d'états dans le grain). L'insert détaille grâce à une échelle logarithmique le comportement basse température de la conductance du modèle d'Anderson ($N_L = 1$).

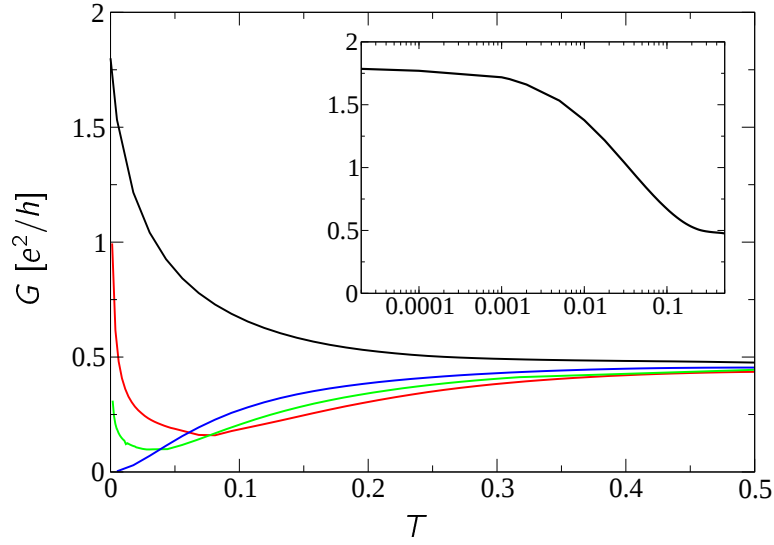


Fig. 7.3 – Conductance $G(T, N_L)$ pour $W = E_c = 2\Gamma^{\text{multi}} = 1$ en fonction de la température. On a tracé les cas $N_L = 1, 3, 5, \infty$ (de haut en bas sur la partie extrême gauche du tracé). Insert : conductance en échelle logarithmique pour $N_L = 1$.

7.2.2 Crossover inverse

On va s'intéresser ici à un cas un peu différent du précédent. On suppose que le point possède un nombre non négligeable d'états (au moins quelques dizaines), mais que la largeur de bande se trouve inférieure à l'énergie de Coulomb, $W \lesssim E_c$. La réalisation physique d'une telle situation n'est pas très claire (on peut penser à des grains métalliques de très petite taille, ou des petits points quantiques de haute densité électronique), mais il s'agit d'une limite bien définie du modèle (7.1) qui n'a pas été envisagée dans la littérature. Commençons par regarder un cas limite simple.

□ Niveaux complètement dégénérés

Supposons que les N_L niveaux du point soient mis simultanément à zéro, $\epsilon_p = 0$ pour tout $p = 1 \dots N_L$ (la largeur de bande est donc nulle, $W = 0$). Réécrivons le modèle initial après un changement de base orthonormée $\{d_{p\sigma}^\dagger\} \rightarrow \{c_{p\sigma}^\dagger\}$, tel que :

$$c_{1\sigma}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N_L}} \sum_{p=1}^{N_L} d_{p\sigma}^\dagger \quad (7.26)$$

Dans ce cas, les degrés de liberté fermioniques $c_{p\sigma}^\dagger$ pour $p > 1$ se découplent complètement, laissant un modèle Anderson effectif pour le fermion $c_{1\sigma}^\dagger$. En fait, il persiste un couplage capacitif uniquement entre les deux espèces de fermions, mais pour des températures inférieures à E_c (et loin d'une marche de conductance) la charge des fermions découplés est complètement

gelée. Puisque l'on obtient la conductance à travers le point à partir de la fonction de Green :

$$G_d^{loc}(\tau) \equiv \frac{1}{N_L} \sum_{pp'} \langle d_{p\sigma}^\dagger(0) d_{p'\sigma}(\tau) \rangle = \langle c_{1\sigma}^\dagger(0) c_{1\sigma}(\tau) \rangle \quad (7.27)$$

on obtient une restauration complète de la conductance unitaire à basse température pour ce modèle très particulier. On peut vérifier que notre solution approchée, équations (7.17-7.22), obéit à ce résultat. En effet, lorsque les niveaux du point sont exactement dégénérés ($W = 0$), on trouve d'après l'équation (7.19) que la fonction de Green des pseudo-fermions vaut simplement $G_f(i\omega) = [i\omega - \Sigma_f(i\omega)]^{-1}$. On obtient bien là l'effet Kondo associé à un modèle d'Anderson standard (ce résultat est en particulier indépendant de N_L).

□ Faible largeur de bande

Plaçons-nous maintenant dans le cas où $W \lesssim E_c$ avec un nombre suffisant d'états ϵ_p dans le point (non dégénérés). L'idée qu'on suit ici est de “brancher” W progressivement à partir de la situation précédente ($W = 0$), en maintenant un nombre fixé ($N_L \gtrsim 20$) de niveaux ϵ_p dans le point. On observe alors à une “séparation” du pic Kondo central que l'on vient de décrire, comme le montre la figure 7.4. La raison est que l'on passe directement d'un régime Kondo à une situation de blocage de Coulomb, puisque où la densité d'états dans le point est importante (voir l'argument donné aux équations (7.15-7.16)). Cependant, bien que le système soit incohérent à très basse température, l'effet Kondo se fait toujours sentir à des échelles d'énergie intermédiaires (du moins tant que W est bien inférieur à E_c).

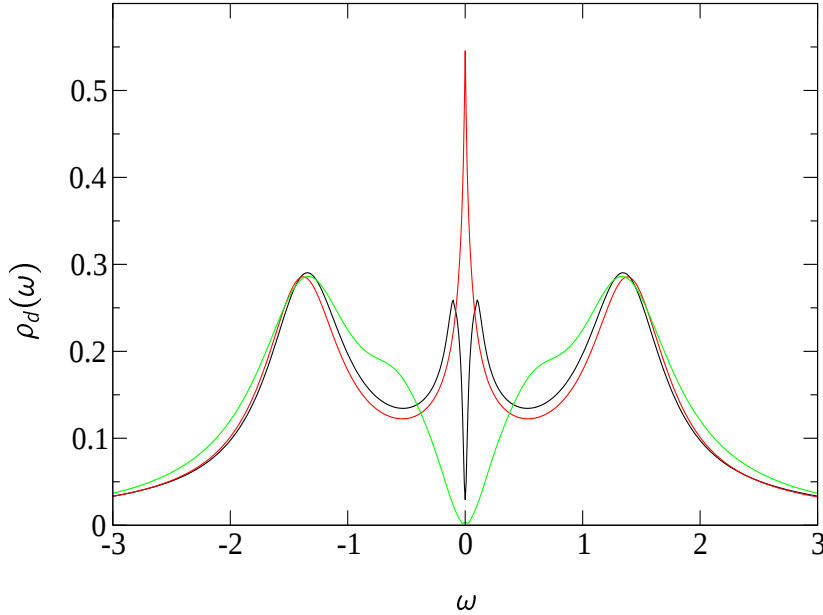


Fig. 7.4 – Densité d'états sur le point pour $E_c = 2\Gamma^{\text{multi}} = 1$, $\beta = 400$ et $N_L = 21$, avec différentes valeurs de la largeur de bande : $W = 0, 0.2, 1$.

7.2. RÉGIMES INTERMÉDIAIRES DE CONDUCTION DANS LES POINTS QUANTIQUES

Le fait remarquable est que la température Kondo n'est plus contrôlée par le nombre de niveaux sur le point ³, mais est donnée en première approximation dans la limite $W \lesssim E_c$ par une température caractéristique d'un modèle d'impureté à un seul niveau :

$$T_K \propto \exp\left(-\frac{\pi E_c}{4\Gamma^{\text{multi}}}\right) \quad (7.28)$$

Pour que cet effet soit visible, il faut que l'énergie de Coulomb renormalisée, $E_c^* \propto \exp(-2\pi^2\alpha_t)$, soit inférieure à cette température caractéristique. En comparant ces quantités, on en déduit donc les conditions (la première condition est certainement la plus difficile à satisfaire en pratique) :

$$W \lesssim E_c \quad (7.29)$$

$$\sqrt{\frac{WE_c}{16\pi^2}} \lesssim \Gamma^{\text{multi}} \quad (7.30)$$

Une conséquence amusante de cette constatation est que le comportement en température de la conductance est inversé par rapport à la signature traditionnelle de l'effet Kondo dans les points quantiques. En effet, lorsque la température diminue, on constate maintenant une remontée initiale de conductance (due à l'effet Kondo à $T \simeq T_K$), puis une décroissance de la conductance à cause du blocage de Coulomb. Ceci est illustré à la figure 7.5.

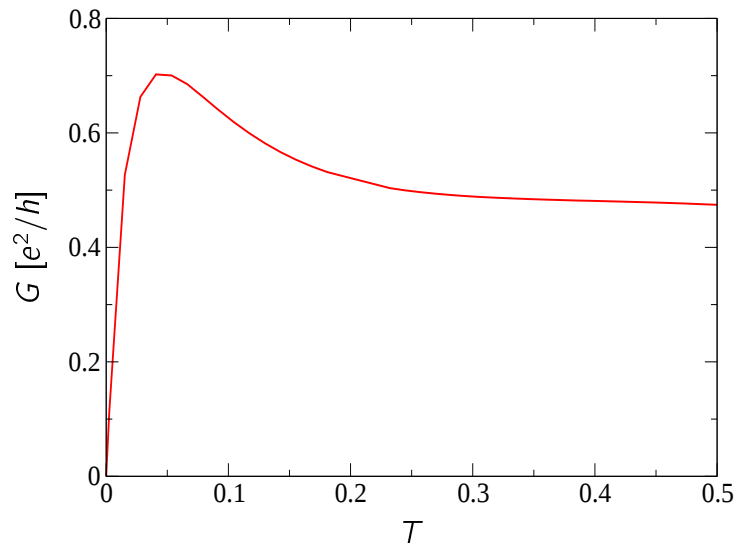


Fig. 7.5 – Conductance en fonction de la température pour $W = 0.2$, $E_c = 2\Gamma^{\text{multi}} = 1$, $\beta = 400$, et $N_L = 21$.

³L'application de la formule (7.25) donnerait ici une température Kondo $T_K(N_L)$ quasi-nulle.

7.3 Conclusion

Deux grandes thématiques, *a priori* disjointes, ont été abordées dans cette thèse : la transition de Mott dans les systèmes de fermions corrélés et l'étude d'effets d'interaction dans les structures mésoscopiques (le dernier chapitre, qui concerne le magnétisme quantique, est plutôt déconnecté des précédents). Une technique commune a été développée pour traiter ces problèmes bien différents : il s'agit d'une extension de la méthode de bosons esclaves à des variables de phase (rotateurs quantiques esclaves), qui sont les degrés de liberté naturels pour décrire les interactions entre électrons. Une voie de développements futurs de cette méthode semble possible à la jonction entre ces sujets de matière condensée et de physique mésoscopique. En effet, les milieux granulaires (constitués de grains métalliques de taille typique 10 nm), et les réseaux de points quantiques (couplés entre eux) sont des systèmes macroscopiques constitués d'entités nanoscopiques où le blocage de Coulomb joue un rôle important ⁴. L'idée de rotateur semble tout à fait adaptée pour attaquer de tels problèmes (par exemple, pour envisager une transition métal-isolant dans ces systèmes), puisque qu'elle réussit à englober effets de cohérence et de localisation de la charge dans une méthodologie commune.

⁴Ce sujet étant assez vaste (en particulier, le désordre joue un rôle important dans ces systèmes), je renvoie le lecteur à quelques articles récents [3–6].

Bibliographie du chapitre 7

- [1] **G. Schön** et **A. D. Zaikin**, *Phys. Rep.* **198**, 237 (1990).
- [2] **A. Georges** et **C. Marquet** Communication privée.
- [3] **D. P. Arovas**, **F. Guinea**, **C. Herrero** et **P. San José** , cond-mat/0211686.
- [4] **K. B. Efetov** et **A. Tschersich**, *Euro. Phys. Lett.* **59**, 114 (2002).
- [5] **C. A. Stafford** et **S. D. Sarma**, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3590 (1994).
- [6] **A. V. Herzog**, **P. Xiong**, **F. Shafiri** et **R. Dynes**, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 668 (1996).

Article 5

cond-mat/0307207

Coherence and Coulomb blockade in single electron devices: a unified treatment of interaction effects

S. Florens,¹ P. San José,² F. Guinea,² and A. Georges¹

¹*Laboratoire de Physique Théorique, Ecole Normale Supérieure,
24 Rue Lhomond 75231 Paris Cedex 05, France*

²*Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid, CSIC, Cantoblanco, E-28049 Madrid, Spain*

We study the interplay between Coulomb blockade and the Kondo effect in quantum dots. We use a self-consistent scheme which describes mesoscopic devices in terms of a collective phase variable (slave rotor) and quasiparticle degrees of freedom. In the strong Coulomb blockade regime, we recover the description of metallic islands in terms of a phase only action. For a dot with well-separated levels, our method leads to the Kondo effect. We identify the regime where a crossover between the Coulomb blockade regime at high temperatures and the formation of a Kondo resonance at lower temperature takes place. In addition, we find that for a dot with many overlapping resonances, an *inverse crossover* can take place. A Kondo resonance which involves many levels within the dot is first formed, and this coherent state is suppressed by correlation effects at lower temperatures. A narrower Kondo resonance, due to a single level in the dot can emerge at even lower temperatures.

I. INTRODUCTION

Electron-electron interactions play a crucial role in single electron devices (quantum dots, metallic islands), see for instance [1–4]. The electrostatic repulsion between electrons in the dot can be described by the energy required to change the charge in the dot by one unit, E_c . At temperatures, or frequencies, below this charging energy, but much greater than the spacing between the electronic levels in the dot, δE , Coulomb blockade effects dominate [5–8], and the conductance through the dot is suppressed, except at degeneracy points. At scales below the level splitting within the dot, and when the ground state of the dot is degenerate, electronic coherence can be restored by the Kondo effect [9, 10], leading to an increase in the conductance [11–15]. Hence, when the charging energy is much greater than the level spacing within the dot, $E_c \gg \delta E$, and the number of electrons in the dot is odd, one expects a crossover between a high temperature regime where Coulomb blockade effects dominate, and a low temperature one described by the Kondo effect [16].

The theoretical analysis of these two regimes, Coulomb blockade and the Kondo effect, has been carried out using rather different techniques. Coulomb blockade can be studied, when the coupling between the leads and the dot is weak, by describing electron transport in terms of sequential hopping processes [2], *i.e.* perturbatively in the tunneling matrix element. When the conductance is large, it is convenient to describe the internal degrees of freedom of the dot in terms of a collective variable, the phase conjugated to the total charge [17–19]. Using this representation, the renormalization of the effective charging energy by virtual fluctuations can be studied by a variety of methods [20–26]. This approach becomes exact when the level spacing within the dot tends to zero

and the number of transmitting channels is large. In this limit the Kondo effect disappears. In the opposite limit, when the level spacing within the dot becomes comparable to other scales of interest, the standard procedure is to truncate the Hilbert space of the dot, and keep only the interacting electronic states closest to the Fermi level of the leads, so that the system is reduced to the Anderson model [27], see [11, 28, 29]. The situation when many levels within a magnetic impurity contribute to the Kondo effect was initially discussed in [30]. The same effect in quantum dots was analyzed in [31]. Other modifications of the Kondo effect in a quantum dot due the presence of many levels are discussed in [32–38]. Recent experiments [39] suggest that the regime where level spacing, level broadening and the charging energy are comparable can be achieved by present day techniques.

The aim of this paper is to analyze the different regimes of a quantum dot characterized by the charging energy, E_c , level spacing, δE , and coupling to the leads, Γ , where Γ is the typical width of each level. We introduce a new scheme which describes the charge excitations of the dot in terms of a collective phase, but also retains information about the electronic degrees of freedom on the dot. This approach allows to recover the Kondo effect in the case of quantum impurities with exactly degenerate levels (slave rotor representation introduced in [40] by two of us). Technically, the new scheme draws inspiration from self-consistent resummations used for describing the Kondo effect in single impurity models (the so-called Non Crossing Approximation, or NCA [41, 42]), but adapted in an economical way to the situation of mesoscopic structures (that can contain up to thousands of electrons).

The outline of this paper is as follows. In section II we review basic properties of the single electron box, and present the model that we will study throughout. The

self-consistent approach used to analyze the model is presented in section III, and will be shown to describe the Coulomb blockade regime of metallic grains *exactly* (also for quantum dots); we will furthermore show that it is a reasonable approximation for dealing with the Kondo effect (in quantum dots). In section IV we will investigate in more detail intermediate regimes of conduction that were not previously attainable or considered in earlier works. In particular we will be interested in the different ways how one can cross over from coherent, Kondo assisted transport to the Coulomb blockade regime. Extensions of our approach to other systems such as quantum dot arrays will be briefly outlined in the conclusion.

II. MODEL FOR SINGLE ELECTRON DEVICES

A. Phase representation and electronic degrees of freedom

Let us first review the standard model for single electron devices. The basic ingredient that determines the

behavior of quantum dots as well as metallic islands is the relatively large Coulomb energy $E_c = e^2/(2C) \sim 1K$ associated with small capacitances of the structure, $C \sim 10^{-15}F$. We will take also into account the internal structure of the small charge droplet, with energy levels ϵ_p (which are shape - and disorder - dependent), and an index $\sigma = 1 \dots \mathcal{N}$ associated to transmitting channels to the outside circuit. The electrodes, to which the mesoscopic region is coupled, are described as Fermi Liquids with a spectrum ϵ_k associated with a finite density of states $D(0)$ at the Fermi level. Physical quantities, such as the conductance G , are also determined as a function of temperature T (we set $\beta \equiv 1/T$) and applied gate voltage V_g . Summarizing all these energy scales, we arrive to the following hamiltonian:

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k a_{k\sigma}^\dagger a_{k\sigma} + \sum_{p\sigma} \epsilon_p d_{p\sigma}^\dagger d_{p\sigma} + E_c \left(\sum_{p\sigma} d_{p\sigma}^\dagger d_{p\sigma} - n_g \right)^2 + \sum_{k\sigma p} t_k^p (a_{k\sigma}^\dagger d_{p\sigma} + d_{p\sigma}^\dagger a_{k\sigma}) \quad (1)$$

We have introduced here the coupling t_k^p between the mode p in the electrode and mode k in the electron box. The index $p = 1 \dots N_L$ corresponds to the N_L energy levels of the dot (or metallic island), and $\sigma = 1 \dots \mathcal{N}$ is the conserved channel index (including spin). We defined also n_g as a dimensionless external gate voltage, $n_g \equiv eV_g/(2E_c)$. Because of the large number of degrees of freedom involved with respect to a single impurity Anderson model (N_L and/or $\mathcal{N}$ can be quite large), this hamiltonian is remarkably complicated.

One way to make progress is to single out the relevant charge variable on the dot, and pilot its dynamics by means of a rotor degree of freedom:

$$\sum_{p\sigma} d_{p\sigma}^\dagger d_{p\sigma} = \hat{L} = -i\partial/\partial\theta \quad (2)$$

This mapping is motivated by the fact that the hamiltonian $H_{\text{rotor}} = E_c \hat{L}^2$, with its quadratic spectrum, re-

produces exactly the charging energy term in (1). Alternatively, one can argue, as in [17, 18], that a metallic grain can be studied with the same formalism used for a superconducting grain, except that the gap vanishes. In this case, the phase is the collective variable conjugate to the number of particles, as implied by equation (2).

In order to fulfill the Pauli principle, one must however keep fermionic degrees of freedom, so that the creation of a physical electron on the dot is represented as:

$$d_{p\sigma}^\dagger = f_{p\sigma}^\dagger e^{i\theta} \quad (3)$$

using a channel - and momentum - carrying quasiparticle $f_{p\sigma}^\dagger$. According to (2), a constraint $\hat{L} = \sum_{p\sigma} f_{p\sigma}^\dagger f_{p\sigma}$ must also be implemented [40], introducing for this purpose a Lagrange multiplier $\delta\mu$. Integrating explicitly the electrode in (1), one gets the following expression for the action of the original model in this new representation:

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_{p\sigma} f_{p\sigma}^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_p - \delta\mu) f_{p\sigma} + \frac{(\partial_\tau \theta + i\delta\mu)^2}{4E_c} + i n_g \partial_\tau \theta + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{1}{N_L} \sum_{pp'\sigma} \Delta^{pp'}(\tau - \tau') f_{p\sigma}^\dagger(\tau) f_{p'\sigma}(\tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \quad (4)$$

In principle, $\delta\mu$ should be integrated over $[0, 2\pi/\beta]$ in order to preserve the correct structure of the Hilbert space.

One can notice in this expression how the indices are positioned in the last term (σ is conserved by the charge transfer procedure, whereas p is not). We also have defined the bath function:

$$\Delta^{pp'}(i\omega) \equiv \sum_k \frac{N_L t_k^p t_k^{p'}}{i\omega - \varepsilon_k} = \int d\varepsilon D(\varepsilon) \frac{N_L t^p(\varepsilon) t^{p'}(\varepsilon)}{i\omega - \varepsilon} \quad (5)$$

introducing the lead density of states $D(\varepsilon) = \sum_k \delta(\varepsilon - \varepsilon_k)$ (we have extracted here a factor $1/N_L$ for future convenience).

B. Metallic grains: phase only approach

In the case of small metallic islands [6, 7], the number of transverse channels $\mathcal{N} \sim 10^4 - 10^6 \gg 1$ is quite large, so that the fermionic degrees of freedom can be integrated out explicitly from (4). Technically, this is done by expanding the initial action (4) in the coupling function $\Delta^{pp'}(\tau)$, leading to an exact expression of the effective action:

$$S[\theta] = \int_0^\beta d\tau \frac{(\partial_\tau \theta + i\delta\mu)^2}{4E_c} + in_g \partial_\tau \theta - \log \sum_{n=0}^\infty \frac{(-1)^n}{n!} \left\langle \prod_{m=1}^n \int_0^\beta d\tau_m \int_0^\beta d\tau'_m \frac{1}{N_L} \sum_{p_m p'_m \sigma_m} \Delta^{p_m p'_m}(\tau_m - \tau'_m) e^{i\theta(\tau_m) - i\theta(\tau'_m)} f_{p_m \sigma_m}^\dagger(\tau_m) f_{p'_m \sigma_m}(\tau'_m) \right\rangle_0 \quad (6)$$

The average over the fermionic variables $\langle \dots \rangle_0$ in the preceding expression is taken with respect to the free fermionic action $S_0 = \int_0^\beta d\tau \sum_{p\sigma} f_{p\sigma}^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_p - \delta\mu) f_{p\sigma}$, and simplifies considerably in the large $\mathcal{N}$ limit because Wick contractions at leading order occur between pair of fermions holding the *same* channel index σ_m . We can

then re-exponentiate the last term in (6), and, if one notes that the multiplier $\delta\mu$ can be treated in the grand canonical ensemble, *i.e.* reabsorbed in n_g (due to small charge fluctuations over many accessible states), one gets the effective phase-only action:

$$S[\theta] = \int_0^\beta d\tau \frac{(\partial_\tau \theta)^2}{4E_c} + in_g \partial_\tau \theta - \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \alpha_0(\tau - \tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \quad (7)$$

The kernel $\alpha_0(\tau)$ in the last equation is given by the expression:

$$\alpha_0(\tau) = -\frac{1}{N_L} \sum_{pp'\sigma} \Delta^{pp'}(\tau) \langle f_{p\sigma}^\dagger(\tau) f_{p'\sigma}(0) \rangle_0 \quad (8)$$

which can be evaluated:

$$\alpha_0(\tau) \simeq \alpha_t \frac{(\pi/\beta)^2}{[\sin(\pi\tau/\beta)]^2} \quad (9)$$

$$\text{with } \alpha_t = \mathcal{N} N_L t^2 D(0) \rho_0(0) \quad (10)$$

We have defined here the grain density of states, $\rho_0(\epsilon) = \sum_p \delta(\epsilon - \epsilon_p)$, and have taken the large bandwidth limit to obtain equation (9). We have also assumed for simplicity that the coupling to the lead is a constant, $t_k^p = t$ (point contact). The parameter α_t is interpreted as the (dimensionless) high temperature conductance between the dot and the island, to lowest order in the hopping t , namely $\alpha_t = G(T \rightarrow \infty)/(4\pi^2 e^2/h)$ [17, 18, 22].

Physically, the use of the phase-only action [22] is vindicated by the fact that the charge fluctuations are suppressed by the Coulomb blockade phenomenon, allowing one to forget about the fermionic statistics of the charge carriers (incoherent transport through the island).

This phase-only action (7) can be handled using a variety of techniques [20–26]. An important question, which is very relevant for experiments on small metallic grains strongly coupled to the environment [8, 43], is the destruction of Coulomb blockade in the strong tunneling regime $\alpha_t \gtrsim 0.1$. This implies a generic renormalization of the Coulomb energy E_c towards smaller values, denoted here by E_c^* [21, 23]. In the following, we will be more interested in this question in the context of quantum dots, for which the model (7) is inadequate. However, the phase-only approach will be considered as an important benchmark for any approach that intends to describe the Coulomb blockade regime.

III. UNIFIED APPROACH TO SINGLE ELECTRON DEVICES

A. Self-consistent scheme

Our purpose here is to develop a simple approximation scheme (avoiding direct numerical solution of the model (1)) that could encompass the main interaction effects in single electron devices: the Coulomb blockade and the Kondo effect. One can note that one is usually forced to employ different techniques to handle the Coulomb interaction, depending on the regime one is interested in. Since the details of the dynamics of the electrons are not usually involved in the Coulomb blockade phenomenon, introducing the total charge as the physi-

cally relevant variable and using the phase-only action (7) seems mandatory to deal with this regime. On the other hand, dealing with the Kondo effect requires a rather sophisticated treatment of the correlation effects among electrons, and a simplification of the initial model (1) is unavoidable. We will see in this paper that one can reconcile these two paradigms if one treats on an equal footing fermionic degrees of freedom and the phase variable conjugated to the total charge.

Drawing inspiration from strong coupling approaches for single impurity models (NCA [41] and its generalization to the phase representation (2) as introduced by two of us [40]), we will perform a self-consistent decoupling of the fermion-rotor coupling in (4):

$$S \simeq \int_0^\beta d\tau \sum_{p\sigma} f_{p\sigma}^\dagger (\partial_\tau + \epsilon_p - \delta\mu) f_{p\sigma} + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{1}{N_L} \sum_{pp'\sigma} \Delta^{pp'}(\tau - \tau') \langle e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \rangle f_{p\sigma}^\dagger(\tau) f_{p'\sigma}(\tau') \quad (11)$$

$$+ \int_0^\beta d\tau \frac{(\partial_\tau \theta + i\delta\mu)^2}{4E_c} + in_g \partial_\tau \theta + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{1}{N_L} \sum_{pp'\sigma} \Delta^{pp'}(\tau - \tau') \langle f_{p\sigma}^\dagger(\tau) f_{p'\sigma}(\tau') \rangle e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \quad (12)$$

This approximation goes far beyond the lowest order perturbative result that led to the phase-only action (7), and is the central starting point of the present work. Its distinctive feature is the decoupling of fermionic and phase degrees of freedom, whose joint dynamics is nevertheless determined *self-consistently*. Indeed, the fermionic self-energy obviously depends on the phase-phase correlator, and reciprocally. Moreover, the bosonic part of the effective action (12) is similar in structure to the phase-only approach (7), allowing to use the large body of work on this particular model.

In order to detail the method of solution, we start here by simplifying the kernels appearing in the previous self-consistent action. The bosonic kernel can be expressed in terms of the full propagator $G_f^{pp'}$ of the $f_{p\sigma}^\dagger$ fermions:

$$\begin{aligned} \alpha(\tau) &\equiv -\frac{1}{N_L} \sum_{pp'\sigma} \Delta^{pp'}(\tau) \langle f_{p\sigma}^\dagger(\tau) f_{p'\sigma}(0) \rangle \\ &= -\mathcal{N} \frac{1}{N_L} \sum_{pp'} \Delta^{pp'}(\tau) G_f^{pp'}(-\tau) \end{aligned} \quad (13)$$

where the Green's function $\hat{G}_f$ has been introduced in a matrix notation:

$$\hat{G}_f = \left[\hat{G}_0^{-1} - \frac{1}{N_L} \hat{\Sigma}_f \right]^{-1} = \hat{G}_0 \left[1 - \frac{1}{N_L} \hat{\Sigma}_f \hat{G}_0 \right]^{-1} \quad (14)$$

with the free propagator in the electron box:

$$G_0^{pp'}(i\omega) = \frac{\delta_{pp'}}{i\omega - \epsilon_p + \delta\mu} \quad (15)$$

We also have introduced the self-energy of the quasiparticles:

$$\Sigma_f^{pp'}(\tau) = \Delta^{pp'}(\tau) \langle e^{i\theta(\tau) - i\theta(0)} \rangle \quad (16)$$

The “self-consistent phase action” that one needs to solve finally reads:

$$S = \int_0^\beta d\tau \frac{(\partial_\tau \theta + i\delta\mu)^2}{4E_c} + in_g \partial_\tau \theta - \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \alpha(\tau - \tau') e^{i\theta(\tau) - i\theta(\tau')} \quad (17)$$

with $\alpha(\tau)$ given previously. The set of equations (13-17)

is the main technical result of this paper. In practice,

this is solved by an iterative procedure which starts with a given kernel $\alpha(\tau)$ as input to the action (17), from which a new correlator $\langle e^{i\theta(\tau)-i\theta(\tau')} \rangle$ is computed. It is then fed back to the self-energy (16), allowing to compute the quasiparticle propagator (14), and then a new kernel $\alpha(\tau)$ from equation (13). This full cycle is repeated until convergence is reached.

In all further calculations, we will assume a point contact between lead and box, $t_k^p = t$, so that $\Delta^{pp'}(\tau) = \Delta(\tau)$ and $\Sigma_f^{pp'}(\tau) = \Sigma_f(\tau) = \Delta(\tau) \langle e^{i\theta(\tau)-i\theta(\tau')} \rangle$, which allows to simplify expressions (13) and (14) into:

$$\alpha(\tau) = -\mathcal{N}\Delta(\tau)G_f^{loc}(-\tau) \quad (18)$$

$$G_f^{loc}(i\omega) \equiv \frac{1}{N_L} \sum_{pp'} G_f^{pp'}(i\omega) \quad (19)$$

$$\left[G_f^{loc}(i\omega) \right]^{-1} = \frac{1}{\frac{1}{N_L} \sum_p \frac{1}{i\omega - \epsilon_p + \delta\mu}} - \Sigma_f(i\omega) \quad (20)$$

In the following two paragraphs, we will sketch how this novel scheme allows to capture both Coulomb blockade and Kondo effect in single electron devices.

B. Metallic islands: Coulomb blockade

We consider here the case of a metallic island, for which the energy spectrum is taken as a continuous density of states $\rho_0(\epsilon)$. Due to the smallness of the Fermi wavelength with respect to the typical transverse size of the island, the number of transmitting channels is usually quite large, $\mathcal{N} \gg 1$, as discussed before in section II B.

One interesting remark is that our self-consistent phase model (11-12) *exactly* reproduces the phase-only approach (7) in this case. Indeed, we note that the fermionic self-energy (16) is suppressed with respect to the kernel (18) by a relative factor of order $1/\mathcal{N}$. The self-consistency between fermions and the phase variable can therefore be ignored at $\mathcal{N} \gg 1$ (one has to scale $t \propto 1/\sqrt{\mathcal{N}}$), leading to a free fermionic propagator:

$$G_0^{pp'}(\tau) \equiv \langle f_{p\sigma}^\dagger(0) f_{p'\sigma}(\tau) \rangle_0 \quad (21)$$

$$G_0^{pp'}(i\omega) = \frac{\delta_{pp'}}{i\omega - \epsilon_p} \quad (22)$$

Putting this expression back into (13), one recovers indeed the phase-only action (7-8). This test case implies that our self-consistent scheme allows to deal correctly with the Coulomb blockade phenomenon in metallic grains.

C. Quantum dots: interaction effects

In quantum dots, the discreteness of the energy spectrum ϵ_p and the fact that $\mathcal{N}$ is generally of order one

(unless the point contacts are quite open) invalidate the phase-only approach (7). This is clear by the fact that coherent transport through the dot can be restored due to the Kondo effect at low temperature. We now sketch how the self-consistent action (17) is able to describe this phenomenon.

1 Coulomb blockade regime in quantum dots

We consider first temperatures smaller than the charging energy E_c , but still greater than the interlevel spacing δE . We can therefore take a continuous limit for the dot (due to thermal smearing of the energy levels), which leads crudely to the simplification:

$$\frac{1}{N_L} \sum_p \frac{1}{(i\omega - \epsilon_p + \delta\mu)} \simeq -i\pi\rho_0(0) \quad (23)$$

From (20), this gives the $f_{p\sigma}^\dagger$ fermion propagator in the dot:

$$G_f^{loc}(i\omega) \simeq \left[\frac{i}{\pi\rho_0(0)} - \Sigma_f(i\omega) \right]^{-1} \quad (24)$$

The constant imaginary part in the last expression dominates the long time behavior of the Green's function $G_f^{loc}(\tau)$, so that the kernel (18) decays as $1/\tau^2$, similarly to the case of the metallic island (9). There is therefore Coulomb blockade in this regime, as expected.

2 Kondo effect in quantum dots: first discussion

At temperatures below the interlevel spacing δE in the dot, the discreteness of the spectrum becomes sizeable. Let us assume here that a single level sits close to the Fermi energy, so that we can forget all other levels. In this case, we can argue here that the factorization (11-12) reproduces the Kondo physics correctly. This property is well known if, instead of the phase variable θ , one uses a slave boson representation of the interaction (in the case of the $E_c = \infty$ limit) [44]. This method has been extended recently by two of us to the case of finite E_c , using the phase representation $d_{p\sigma}^\dagger = f_{p\sigma}^\dagger e^{i\theta}$ [40], and shown to lead to a good approximation scheme for dealing with the Kondo effect.

In quantum dots, the Kondo effect manifests itself by the buildup of a many-body resonance close to the Fermi level that allows the coherent transport of charge through the structure. The existence of the Friedel sum rule (to be discussed later on) guarantees that the conductance through the dot can recover the unitarity limit (*i.e.* $G = 2e^2/h$) at low temperature.

In conclusion, we can therefore expect that our self-consistent approach interpolates between the coherent Kondo regime (associated with a large and increasing conductance with decreasing temperature) and the

Coulomb blockade (which leads to a suppression of the charge fluctuations on the dot and a decreasing conductance). In practice, we still need to solve the self-consistent phase problem (11-12). This will be done in the next section.

IV. INTERMEDIATE CONDUCTION REGIMES IN QUANTUM DOTS

A. Solution of the phase action in the spherical limit

The simplest, yet non trivial treatment of the bosonic action (17) is to take its spherical limit [40, 45, 46] (this is also equivalent to the large number of component limit for the sigma-model in the field theory literature [47]). We introduce for this purpose the complex phase field $X(\tau) \equiv e^{i\theta(\tau)}$, with its correlator $G_X(\tau) \equiv \langle X(\tau)X^*(0) \rangle$. This representation is perfectly equivalent to the original problem if the hard constraint $|X(\tau)|^2 = 1$ is maintained exactly. The approximation that we will make in order to solve the (self-consistent) phase action (17) is to impose this constraint on average only. For this we introduce a Lagrange multiplier λ to enforce the equality $G_X(\tau = 0) = \langle |X(\tau)|^2 \rangle = 1$. The main drawback (on a qualitative level) of this approximation is that, although it works fine close to the center of the charge plateaus, it eventually breaks down at the degeneracy points [40]. We will also enforce the constraint $\sum_{p\sigma} f_{p\sigma}^\dagger f_{p\sigma} = \hat{L}$ on average. In the symmetric case (*i.e.* at the center of a plateau), this simply implies that $\hat{q}\mu = 0$.

The bosonic action is now purely quadratic, leading to the set of self-consistent equations [54]:

$$G_X(i\nu_n) = \left[\frac{\nu_n^2}{2E_c} + \lambda - \alpha(i\nu_n) \right]^{-1} \quad (25)$$

$$G_X(\tau = 0) = 1 \quad (26)$$

$$G_f^{loc}(i\omega_n) = \left[\frac{1}{\frac{1}{N_L} \sum_p 1/(i\omega_n - \epsilon_p)} - \Sigma_f(i\omega_n) \right]^{-1} \quad (27)$$

$$\alpha(\tau) = \mathcal{N}\Delta(\tau)G_f^{loc}(\tau) \quad (28)$$

$$\Sigma_f(\tau) = \Delta(\tau)G_X(\tau) \quad (29)$$

with the notation:

$$\Delta(i\omega_n) = \sum_k \frac{N_L t^2}{i\omega_n - \epsilon_k} \quad (30)$$

We have noted here ω_n (resp. ν_n) a fermionic (resp. bosonic) Matsubara frequency. In addition to the relative simplicity of this scheme, we note that it allows to obtain a solution for real frequency quantities (doing the analytic continuation of these equations), as required for computing spectral and transport properties of quantum dots.

A few technical remarks: The numerical solution of the system of coupled integral equations (25-30) is straightforward using Fast Fourier Transforms (we will also give analytical arguments later on). In all calculations that follow, we take $\mathcal{N} = 2$ (single channel of conduction per spin). The Coulomb energy is chosen as the reference, $E_c = 1$, and the bandwidth of the continuous density of states of the electrodes is $\Lambda = 50$, which is the largest energy scale of the problem. The precise form of the spectrum in the electrodes playing little role in the low energy limit, we have chosen a semi-elliptic density of states:

$$\Delta(i\omega) = N_L |t|^2 \frac{8}{\Lambda^2} \left(i\omega - i\text{Sgn}(\omega) \sqrt{\omega^2 + (\Lambda/2)^2} \right) \quad (31)$$

We define also the *single-level* width $\Gamma \equiv |\Delta(i0^+)|/N_L = 4t^2/\Lambda$ (see equation (4)), which characterizes the strength of the coupling of the electrons in the dot to the reservoirs. Other important parameters, that we will also investigate, are the separation between the electronic levels of the dot, δE , and the number of states in the dot, N_L . We also define a typical “bandwidth” of the dot, $W = \delta E(N_L - 1)$ (although the spectrum is made up of discrete states).

A technical aspect worth mentioning is the method of computation of the conductance through the dot. In the same spirit of the decoupling performed in equations (11-12), we will compute the Green's function of the *physical* electron as $G_d^{loc}(\tau) = G_f^{loc}(\tau)G_X(\tau)$. An analytical continuation (performed numerically) allows then to get the (interacting) density of states in the dot, $\rho_d(\omega) = -(1/\pi)\text{Im} G_d^{loc}(\omega + i0^+)$. We will also use the interacting Landauer formula for the conductance:

$$G = \frac{\mathcal{N}e^2}{h} \Gamma \int d\omega \left(-\frac{\partial n_F(\omega)}{\partial \omega} \right) \pi \rho_d(\omega) \quad (32)$$

where $n_F(\omega) = 1/(e^{\beta\omega} + 1)$ is the Fermi function. This expression involves the “local” density of states (*i.e.* summed over all $p = 1 \dots N_L$) because of the form of the local coupling to the reservoir, see equation (1).

In the following, we explore situations that are intermediate to the single level Kondo effect and the Coulomb blockade regime, depending on the internal structure of the quantum dot. We insist on the fact that the results that we will obtain are not easily accessible to usual approaches of the hamiltonian (1), unless only a few levels in the dot are considered (for which case the Numerical Renormalization Group is quite successful [37, 48]).

B. Results for finite interlevel spacing: Kondo effect and Coulomb blockade

We now analyze the case of a few, well separated energy levels in the dot. We start by discussing the Coulomb blockade using the spherical limit (for temperature larger than the interlevel spacing), then we give analytical arguments in favor of the existence of a Kondo resonance at

lower temperature, and finally we show the full numerical solution of the self-consistent equations corresponding to the usual situation found in experiments.

1 Renormalized Coulomb energy

As discussed in section III C 1, for $T \gg \delta E$ the quantum dot is in the Coulomb blockade regime, and the bosonic kernel (28) behaves at long times as $\alpha(\tau) \sim \alpha_t/\tau^2$, see eq.(9). Here α_t is a measure of the dimensionless high temperature conductance. One can now focus on equation (26), that we write (at low temperature) as:

$$\int \frac{d\nu}{2\pi} \frac{1}{\nu^2/(2E_c) + \pi\alpha_t|\nu| + \lambda - \alpha(i0)} = 1 \quad (33)$$

This is easily solved to obtain the Lagrange parameter:

$$\lambda - \alpha(i0) = 2\pi^2\alpha_t^2 E_c e^{-\pi^2\alpha_t} \equiv E_c^* \quad (34)$$

that we naturally interpret as the renormalized Coulomb energy E_c^* , since this quantity appears as a mass term in the phase propagator (25), which decays exponentially over time scales of order $\hbar/E_c^*$. This quick calculation allows us to understand the origin of the Coulomb blockade for quantum dots in our formalism.

2 Single level Kondo effect: analytical proof

In quantum dots, the basic manifestations of the Kondo effect are twofold: existence of a small energy scale, the Kondo temperature T_K , and restoration of the unitarity limit (at $T < T_K$), as discussed in section III C 2.

To prove the first point from our integral equations (25-30), we examine qualitatively the solution of the self-consistent equations at temperatures smaller than the interlevel spacing δE . There, the fermionic Green's function (27) is dominated by the $\epsilon_p = 0$ pole, so that $G_f^{loc}(\tau) \sim -1/(2N_L) \text{Sgn}(\tau)$, at long times. From equation (28), this produces in turn a rotor self-energy $\alpha(i\nu) \sim -N\Gamma \log|\nu/T_0|$ at low frequency (here T_0 is an undetermined cutoff, in practice of order $\sqrt{E_c\Gamma}$). Upon lowering the temperature, this self-energy can reach the charging energy E_c (assumed to be only weakly renormalized), indicating the suppression of Coulomb blockade and the beginning of the Kondo regime. This happens (very roughly) for $-N\Gamma \log(T_K/T_0) \sim E_c$, giving the estimate:

$$T_K(N_L) = T_0 \exp\left(-C \frac{E_c}{N\Gamma}\right) \quad (35)$$

where $C = \pi/2$ (the simple argument here does not allow to compute this precise value). This estimates of T_K (in agreement with [4]) explains that the key step to the experimental observation of the Kondo effect in quantum

dots [13] lies in the realization of strongly coupled structures, having Γ comparable to E_c in magnitude, such that the Kondo temperature remains accessible.

We finish by explaining precisely the restoration of full coherence below the Kondo temperature. In order to do this, we set the temperature to zero and perform an exact low-energy solution of the system of equations (25-30) (this was done in Appendix-C of [40]). This analysis, valid while $\delta E \neq 0$ for an arbitrary number of levels, leads to the following value of the zero temperature, zero frequency density of states in our approximation:

$$\rho_d(\omega = T = 0) = \frac{1}{\pi\Gamma} \frac{\pi/2}{N+1} \tan\left(N \frac{\pi/2}{N+1}\right) \quad (36)$$

The interpretation of this relation is that, whenever the temperature is lower than T_K , the density of states is pinned at its non-interacting value, no matter how large the Coulomb energy E_c is. This constatation reflects indirectly the presence of the Kondo resonance at low energy. The *exact* Friedel's sum rule however states that $\rho_d^{\text{exact}}(\omega = T = 0) = 1/(\pi\Gamma)$, also independently of N . The difference between equation (36) and this exact result is a consequence of the decoupling approximation made above. It is nevertheless quite small in practice, since (36) goes to the exact value for N large, and is only 10% off for $N = 2$. The Friedel's sum rule provides also a simple explanation for the restoration of the unitary limit in the conductance below the Kondo temperature, since the Landauer formula (32) at zero temperature leads to:

$$G(T = 0) = \frac{Ne^2}{h} [\pi\Gamma \rho_d(0)] \quad (37)$$

3 Kondo effect: numerical solution and crossover to the Coulomb blockade regime

The numerical solution of the set of self-consistent equations (25-30) allows in principle to investigate all regimes of parameters. We will first concentrate on the gradual suppression of the Kondo effect with decreasing values of the single-level coupling Γ . In order to maintain the Coulomb blockade effect, we will keep in this section the total (multilevel) coupling fixed, $\Gamma^{\text{multi}} \equiv N_L\Gamma = 0.5$, and vary the number of levels N_L to allow changes in $\Gamma = \Gamma^{\text{multi}}/N_L$. We will also fix the total bandwidth of the dot, $W = 1$, so that the level spacing (assumed to be uniform) is also decreasing, $\delta E = W/(N_L - 1)$. This way of proceeding allows to interpolate from the few, well-sepatated levels situation relevant for small quantum dots in the Kondo regime to the case of larger dots with small level spacing and many levels N_L which show only Coulomb blockade.

The figure 1 demonstrates indeed how the low temperature local density of states evolves from $N_L = 1$ (single level: regular Kondo effect) to $N_L = \infty$ (continuum of levels: Coulomb blockade only). In particular the rapid suppression of the Kondo peak for diminishing values of

Γ at increasing N_L is in accordance with our previous discussion of the Kondo temperature, equation (35).

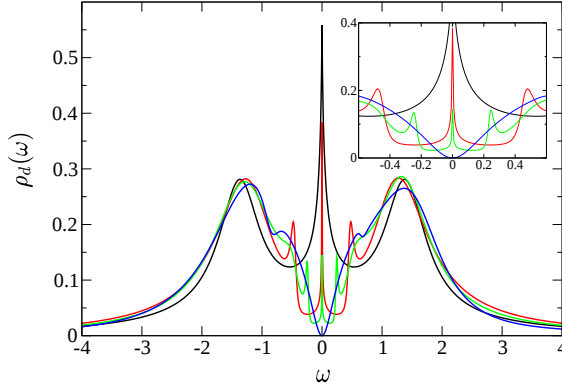


FIG. 1: Local density of states $\rho_d(\omega)$ at $E_c = 1$, $\beta = 800$, and fixed $W = (N_L - 1)\delta E$ and $\Gamma^{\text{multi}} = N_L \Gamma = 0.5$. The four curves correspond to different values of the number of levels in the dot: $N_L = 1, 3, 5, \infty$ (from top to bottom, following the evolution of the central peak).

The temperature dependence of the electronic spectrum is presented for the three level case $N_L = 3$ in figure 2. When temperature is lowered, the zero frequency density of states starts diminishing (by Coulomb blockade of states with different charge). One then reaches a minimum, before $\rho_d(0)$ begins shooting up, towards the unitarity limit (Friedel's sum rule) at zero temperature.

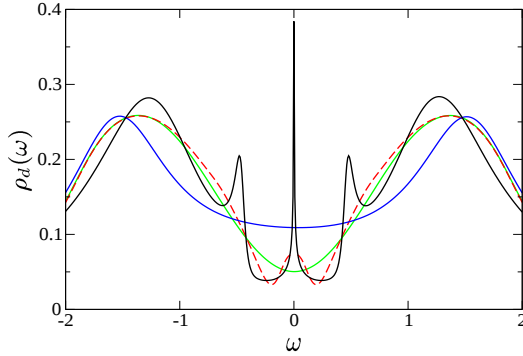


FIG. 2: Temperature dependence of $\rho_d(\omega)$ for the case $N_L = 3$; temperatures correspond to $\beta = 800$ (sharp central peak), $\beta = 25$ (broad peak), $\beta = 10$ (deep minima) and $\beta = 2$ (shallow minima filled by thermal excitations).

It is useful to compare this evolution of the density of states to the variations of the conductance $G(T, N_L)$ with temperatures, figure 3. This figure illustrates the reduction of the Kondo temperature with Γ by the downward

shifting of the minimum of conductance. The Coulomb blockade is present at higher temperature, as shown by the decrease of $G(T)$ for $T_K < T < E_c^*$ upon lowering T [16]. For the last curve with a continuum of states in the dot, this behavior persists up to zero temperature. The inset in log-scale on the same plot allows to grasp more clearly the saturation of conductance below the Kondo temperature.

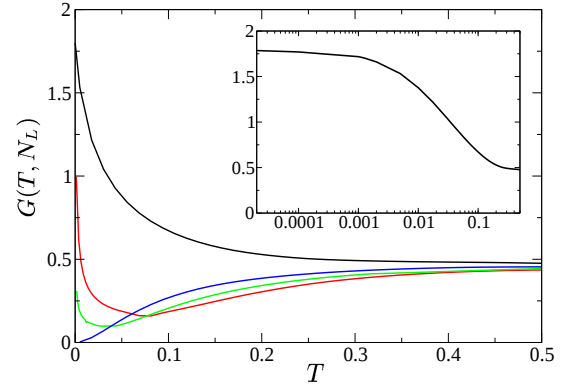


FIG. 3: Conductance $G(T, N_L)$ in units of e^2/h for the same parameters as in figure 1 in function of temperature; curves with $N_L = 1, 3, 5, \infty$ follow from top to bottom in the extreme left of the plot. Inset: $G(T, N_L = 1)$ in temperature-logarithmic scale.

C. Effects due to overlapping resonances in multilevel dots

The analysis in the previous section describes the usual situation where a crossover from the Coulomb blockade regime to the Kondo effect takes place as the temperature is lowered below the interlevel spacing in the dot. A different behavior can be expected when there is a set of overlapping resonances at low energies within the dot, *i.e.* an ensemble of levels of individual width greater than their separation, $\Gamma \gg \delta E$, that act together as a single effective level with enhanced coupling to the leads (the typical bandwidth of this set of level should also be smaller than the charging energy). The presence of broad resonances near the Fermi level can be relevant to some experimental situations [35, 36]. [DETAIL?] We give first some qualitative arguments in order to describe the new effects expected in this regime, and then present explicit calculations using the integral equations.

1 Inverse crossover from the Kondo effect to Coulomb blockade

In practical situations encountered in quantum dots, the single-level Kondo temperature T_K is usually much

smaller than the level spacing δE (which is typically comparable to E_c). Therefore Coulomb blockade occurs (if it does) inevitably before the Kondo effect sets in, as was shown at length in the previous section. There is however a simple mechanism that allows to obtain Kondo temperatures *greater* than both level spacing and renormalized Coulomb energy E_c^* . The idea is that when the individual level width Γ exceeds the interlevel spacing δE , many levels are involved in the formation of the Kondo resonance. This leads to a “multi-level Kondo temperature” [30, 31]:

$$T_K^{\text{multi}} \sim T_0 \exp\left(-C \frac{E_c}{\mathcal{N} N_{\text{eff}} \Gamma}\right) \quad (38)$$

which can be greatly enhanced with respect to the single level estimate, equation (35), by the presence of many levels $N_{\text{eff}} > 1$ acting together (increasing the number of channels $\mathcal{N}$ might also contribute to this effect). This way of enhancing the Kondo temperature allows to obtain a new regime where $T_K^{\text{multi}} \gg E_c^*, \delta E$, so that the Kondo effect can now occur *before* the Coulomb blockade (when lowering the temperature), in an *inverse* manner as observed traditionally in quantum dots. The fact that the Coulomb energy can be strongly renormalized to smaller values adds credibility to this idea. One further notes that, at even lower temperatures, a Kondo peak associated to the formation of a resonance which involves only one electronic state in the dot will ultimately emerge. One therefore has a “two-stage Kondo effect” (if the single-level Kondo temperature is not vanishingly small).

In order to be more precise, we will first give a concrete example with a limiting case that one can understand independently of any approximation scheme. Then, we will illustrate in detail this “inverse crossover” using our integral equations.

2 Limit of exactly degenerate levels

We consider here the extreme limit in which N_L levels in the dot are simultaneously put to zero: $\epsilon_p = 0$ for all p (the total bandwidth W is therefore also zero). We can formulate the model after a redefinition of the fermionic operators (unitary transformation) $\{d_{p\sigma}^\dagger\} \rightarrow \{c_{p\sigma}^\dagger\}$, such that:

$$c_{1\sigma}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N_L}} \sum_{p=1}^{N_L} d_{p\sigma}^\dagger \quad (39)$$

In this case, the remaining fermionic degrees of freedom, $c_{p\sigma}^\dagger$ for $p > 1$, simply decouple from the problem, leaving an *effective single level* Anderson model describing the fermion $c_{1\sigma}^\dagger$. Actually, a capacitive coupling persists between this fermion and all the other ones, but this influence gets frozen at low temperature. As the conductance through the dot is obtained from the Green’s

function:

$$G_d^{\text{loc}}(\tau) \equiv \frac{1}{N_L} \sum_{pp'} \langle d_{p\sigma}^\dagger(0) d_{p'\sigma}(\tau) \rangle = \langle c_{1\sigma}^\dagger(0) c_{1\sigma}(\tau) \rangle \quad (40)$$

one gets a full Kondo effect and a complete restoration of unitary conductance at low temperature. Furthermore, the width of this effective level is simply $N_L \Gamma$, as one checks by inserting $c_{1\sigma}^\dagger$ in equation (4). This leads then to an enhanced Kondo temperature,

$$T_K^{\text{deg.}} = T_0 \exp\left(-C \frac{E_c}{\mathcal{N} N_L \Gamma}\right) \quad (41)$$

as discussed in the introductory part of this section (because $\delta E = 0$ in this limiting case, one has $N_{\text{eff}} = N_L$).

We can easily check that our self-consistent scheme preserves this interesting property of the model. Indeed, when all levels ϵ_p are exactly degenerate ($W = 0$), one gets from equation (27) the f -electrons Green’s function $G_f(i\omega) = [i\omega - \Sigma_f(i\omega)]^{-1}$. We obtain therefore the Kondo effect of a single effective level [40].

The following paragraph will allow us to give more weight to this discussion, by studying the more realistic case of a quantum dot in the regime $\Gamma \gtrsim \delta E$, corresponding to nearly degenerate levels.

3 Inverse crossover: illustration

We now illustrate the inverse crossover discussed qualitatively in paragraph IV C 1 by solving our integral equations in the regime $\Gamma \gtrsim \delta E$, where multi-level effects play an important role. We will assume here that $\Gamma \ll E_c$ so that one can neglect the single level Kondo effect at low temperature (see however the next paragraph). For this computation, we have fixed $\Gamma = 0.04$, and taken $N_L = 9$ states in the dot, varying the interlevel spacing from $\delta E = 0$ (exactly degenerate level case considered in the previous paragraph) to $\delta E = 0.01 \lesssim \Gamma$ (possibility of multilevel effect) to $\delta E = 0.08 > \Gamma$ (absence of multilevel effect).

The low-temperature local density of states displayed in figure 4 shows the expected multi-level enhanced Kondo peak at $\delta E = 0$ corresponding to formula (41). Upon increasing the level spacing to $\delta E = 0.01$, Coulomb blockade sets in at a scale $E_c^* < T_K^{\text{multi}}$, however coherence effects remain around T_K^{multi} (since we are in a regime with $\delta E < \Gamma$). This results in a surprising splitting of the Kondo resonance at low energy. The last curve is taken with $\delta E = 0.08 > \Gamma$, so that no multilevel Kondo effect is possible, and only Coulomb blockade is observed. Another interesting consequence of this phenomenon is that the temperature dependance of the conductance is *reversed* with respect to the usual signature of the Kondo effect in quantum dots, *i.e.* to figure 3. Indeed, upon lowering the temperature, one remarks an initial increase of the conductance (due to the multilevel

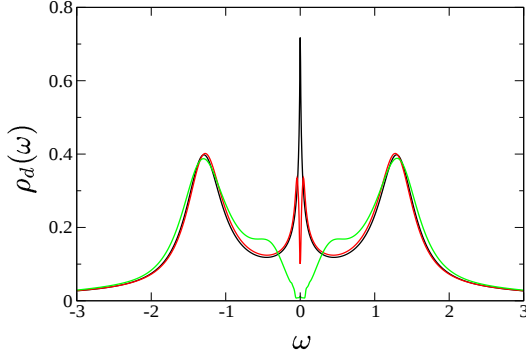


FIG. 4: Density of states $\rho_d(\omega)$ on the dot for $E_c = 1$, $\Gamma = 0.04$, inverse temperature $\beta = 400$, $N_L = 9$ states, and different values of the interlevel spacing: $\delta E = 0, 0.01, 0.08$.

Kondo effect), then a sharp decrease of the conductance because of the Coulomb blockade. This is illustrated by the middle curve in figure 5.

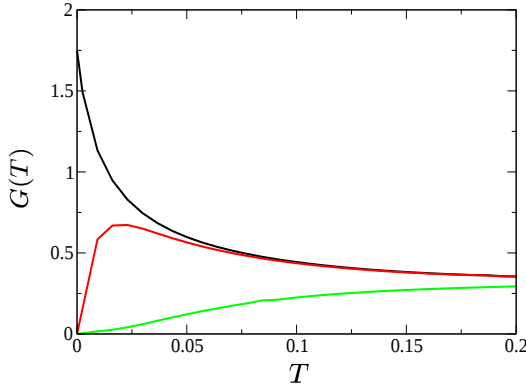


FIG. 5: Conductance $G(T)$ for the same parameters as in figure 4.

One can also perform a general evaluation of the multilevel Kondo temperature, starting from the leading behavior of the f -Green's function at high temperature:

$$G_f^{lpc}(i\omega) \simeq \frac{1}{N_L} \sum_p \frac{1}{i\omega - \epsilon_p} \quad (42)$$

Equation (28) then leads to [55]:

$$\alpha(i\nu) = -\frac{N\Gamma}{2} \sum_p \log \frac{\nu^2 + |\epsilon_p|^2}{\nu^2 + (|\epsilon_p| + T_0)^2} \quad (43)$$

The Kondo temperature is reached when this kernel is of

the order of E_c , so that one finds the final expression:

$$\prod_p \frac{(T_K^{\text{multi}})^2 + |\epsilon_p|^2}{(T_K^{\text{multi}})^2 + (|\epsilon_p| + T_0)^2} = (T_K)^2 \quad (44)$$

where T_K is the single level Kondo temperature (35). A similar result was obtained previously by a renormalization group argument[30]. The limiting cases studied before are obviously contained in the previous equation: T_K^{multi} reduces to T_K for widely separated levels (δE large) and in the opposite limit of exactly degenerate levels (or if $W \ll T_K^{\text{multi}}$), $T_K^{\text{multi}} = T_0(T_K/T_0)^{1/N_L}$, consistently with equation (41). In general, T_K^{multi} is enhanced with respect to the single level Kondo temperature T_K . As an example, formula (44) shows that in the regime $\delta E \ll T_K^{\text{multi}} \ll W$, one obtains then $T_K^{\text{multi}} \sim T_0 \exp[-E_c \delta E / (N\Gamma T_K^{\text{multi}})]$, so that the number of effective levels taking part to the multilevel Kondo resonance is $N_{\text{eff}} = T_K^{\text{multi}} / \delta E$, as discussed qualitatively at equation (38). [COMMENTAIRE ?]

4 Two-stage Kondo effect

Finally we consider again a multilevel case, $\delta E \ll \Gamma$, but now with $\Gamma \lesssim E_c$, so that the single-level Kondo resonance is accessible to the low temperature regime. Therefore, one witnesses a further increase of the conductance at low temperature, taking place after the inverse Kondo-to-Coulomb crossover that we discussed previously. The occurrence of such a “two-stage Kondo effect” is depicted for the conductances shown in figure 6. For this calculation, we have taken $N_L = 5$ levels, $\Gamma = 0.1$ and various level spacings between zero and 2.5Γ . The two curves

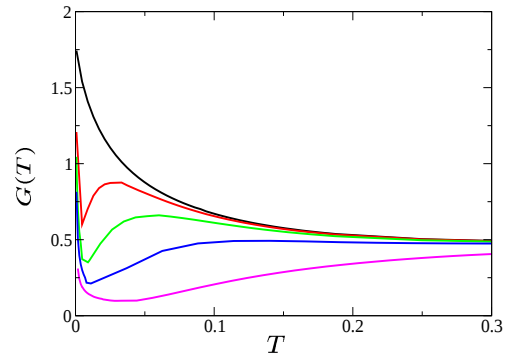


FIG. 6: Conductance $G(T)$ in the case $N_L = 5$, $\Gamma = 0.1$ and various level spacings: $\delta E = 0, 0.025, 0.05, 0.1, 0.25$.

with $0 < \delta E < \Gamma$ show indeed this two-stage Kondo effect: a first rise of the conductance at high temperature due to the multilevel resonance at $T \sim T_K^{\text{multi}}$, then the Coulomb blockade at $T \sim E_c^*$ and then a further increase at $T \sim T_K$ (smallest scale of the problem). The last two

curves, with $\delta E = 0.1, 0.25$, show the usual crossover that was illustrated on the figure 3 in section IV B 3.

A last point that was checked is that our results are weakly sensitive to the addition of more levels outside the energy window of width Γ . This calculation is shown in figure 7.

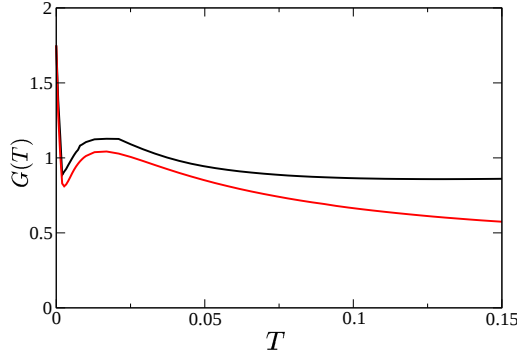


FIG. 7: Lower curve: conductance $G(T)$ in the case $N_L = 5$, $\Gamma = 0.1$ and $\delta E = 0.015$. Upper curve: similar model, but 10 additional levels (with larger spacing $\delta E' = 0.2$) have been superimposed to the previous ones.

5 Summary of the different regimes of transport

A sketch of the different regimes analyzed in this paper is given in figure 8, as a function of the level spacing, δE , and single level width, Γ . We assume that the number of electrons in the dot is odd, so that the ground state, in the absence of the coupling to the leads is degenerate. The transition between different regimes is a smooth crossover.

The occurrence of Kondo effect is signaled by a non monotonous temperature dependance of the conductance, and is observable at $\Gamma \ll \delta E$ for temperatures smaller than the single-level Kondo temperature T_K given by equation (35). Depending on the relative values of level spacing δE and Coulomb energy E_c , Coulomb blockade might be also present above the Kondo temperature, which is the usual experimental situation encountered in quantum dots. We emphasize that if Γ is much smaller than E_c the Kondo temperature is extremely small and the Kondo effect inobservable in practice; this correspond to weakly coupled dots, and this situation shows only Coulomb blockade. In the case $\delta E \ll \Gamma$ we have defined a region “MultiLevel” which corresponds actually to various regimes discussed previously. This describes the inverse crossover (Kondo to Coulomb Blockade), as well as the two-stage Kondo effect shown in section IV C 4. This region can also imply that the Kondo effect is observed in the usual manner, but with a Kondo temperature greater than the single-level estimate. Note

that the Kondo effect involving many levels can also occur in dots with an even number of electrons, in a similar manner to the Kondo resonance which arises at a singlet-triplet crossing in an applied magnetic field[49]. Finally, the region $\Gamma \gg E_c$ of the diagram (denoted “Coherent”) is associated with large conductances that are weakly modulated with temperature or applied gate voltage.

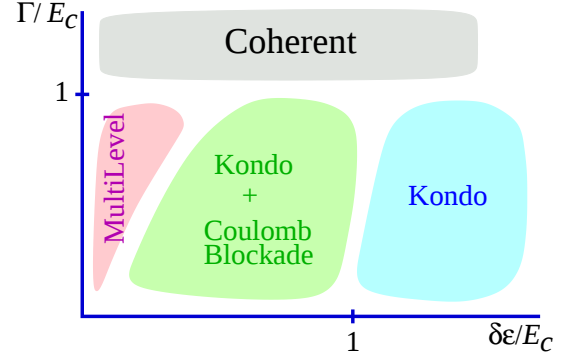


FIG. 8: Sketch of the the different regimes discussed in the paper, as function of the charging energy, E_c , level spacing within the dot, δE , and level widths, Γ . The notation “Kondo” corresponds to a single-level Kondo effect. The region “Kondo + Coulomb-Blockade” is the usual situation in quantum dots. The “Multilevel” region is also associated to the Kondo effect, but with important renormalization of the Kondo temperature, as discussed in the text. The “Coherent” regime implies a temperature insensitive conductance.

V. CONCLUSIONS

In this paper we have presented a method of calculation for strongly correlated mesoscopic systems in terms of a collective phase variable and the electronic degrees of freedom. The scheme is valid both for the study of the Coulomb blockade regime and of the Kondo effect.

We have shown examples of the crossover between a Coulomb blockade regime at temperatures below the charging energy, and the formation of a Kondo resonance at temperatures lower than the separation between levels within the dot. In addition, we have described an inverse regime, where a Kondo like resonance is splitted at low energies by Coulomb blockade effects. This regime is associated to the existence of many conduction channels, or overlapping resonances within the dot, which contribute collectively to the Kondo effect. The coherence of this state is destroyed at low energies by Coulomb effects. At even lower energies, a narrow Kondo peak, associated to a single level within the dot, will emerge.

Because the self-consistent approach used here was successfully applied to model of strongly correlated electrons

(Hubbard model) in a previous work [40], we can also envision possible applications of this work to the physics of granular materials or quantum dot arrays in the vicinity of the metal-insulator transition [50–53]. Disorder effects, that were neglected here, should also be included in future work along these lines.

Other possible development is an exact (numerical) solution of the self-consistent action (11-12) instead of taking the spherical limit as was done in section IV A, which brings some limitations (as the restriction to valleys of conduction). Also importantly, we believe that the present work, both by the technical concepts and the physical ideas, connects in an original manner the fields of strongly correlated systems and mesoscopic physics.

VI. ACKNOWLEDGEMENTS

SF and AG are grateful to D. Esteve, H. Pothier and C. Urbina for a useful discussion. We appreciate the hospitality of the Kavli Institute of Theoretical Physics, where this work was initiated. The KITP is supported by NSF through grant PHY99-07949. P. San José and F. Guinea are thankful to MCyT (Spain) for financial support through grant MAT2002-04095-C02-01. SF acknowledges the support of the CNRS-PICS(1062) program.

REFERENCES

- [1] M. Kastner, Rev. Mod. Phys. **64**, 849 (1992).
- [2] H. Grabert and M. Devoret, eds., *Single Electron Tunneling* (Plenum Press, 1992).
- [3] Y. Alhassid, Rev. Mod. Phys. **72**, 895 (2000).
- [4] I. L. Aleiner, P. W. Brouwer, and L. I. Glazman, Phys. Rep. **358**, 309 (2002).
- [5] D. V. Averin and K. K. Likharev, in *Mesoscopic Phenomena in Solids*, edited by B. L. Altshuler, P. A. Lee, and R. A. Webb (Elsevier, 1991).
- [6] T. A. Fulton and G. J. Dolan, Phys. Rev. Lett. **59**, 109 (1987).
- [7] P. Lafarge, H. Pothier, E. R. Williams, D. Esteve, C. Urbina, and M. H. Devoret, Z. Phys. B **85**, 327 (1991).
- [8] P. Joyez, V. Bouchiat, D. Esteve, C. Urbina, and M. H. Devoret, Phys. Rev. Lett. **79**, 1349 (1997).
- [9] J. Kondo, Prog. Theor. Phys. **32**, 37 (1964).
- [10] A. Hewson, *The Kondo problem to heavy fermions* (Cambridge, 1996).
- [11] L. I. Glazman and M. E. Raikh, JETP Lett. **47**, 452 (1988).
- [12] T. K. Ng and P. Lee, Phys. Rev. Lett. **61**, 1768 (1988).
- [13] D. Goldhaber-Gordon, H. Shtrikman, D. Mahalu, D. Abusch-Magder, U. Meirav, and M. A. Kastner, Nature **391**, 156 (1998).
- [14] S. M. Cronenwett, T. H. Oosterkamp, and L. P. Kouwenhoven, Science **281**, 540 (1998).
- [15] L. Kouwenhoven and L. Glazman, Physics World **14**, 33 (2001).
- [16] L. Glazman and M. Pustilnik (2003), cond-mat/0302159.
- [17] T.-L. Ho, Phys. Rev. Lett. **51**, 2060 (1983).
- [18] E. Ben-Jacob, E. Mottola, and G. Schön, Phys. Rev. Lett. **51**, 2064 (1983).
- [19] G. Göppert and H. Grabert, Phys. Rev. B **63**, 125307 (2001).
- [20] F. Guinea and G. Schön, Europhys. Lett. **1**, 585 (1986).
- [21] S. V. Panyukov and A. D. Zaikin, Phys. Rev. Lett. **67**, 3168 (1991).
- [22] G. Schön and A. D. Zaikin, Phys. Rep. **198**, 237 (1990).
- [23] G. Göppert, X. Wang, and H. Grabert, Phys. Rev. B **55**, 10213 (1997).
- [24] P. Joyez, D. Esteve, and M. H. Devoret, Phys. Rev. Lett. **80**, 1956 (1998).
- [25] D. S. Golubev, J. König, H. Schoeller, and G. Schön, Phys. Rev. B **56**, 15782 (1997).
- [26] C. P. Herrero, G. Schön, and A. D. Zaikin, Phys. Rev. B **59**, 5728 (1999).
- [27] P. W. Anderson, Phys. Rev. **124**, 41 (1961).
- [28] Y. Meir, N. S. Wingreen, and P. Lee, Phys. Rev. Lett. **66**, 3048 (1991).
- [29] L. P. Glazman and M. Pustilnik, Phys. Rev. Lett. **87**, 216601 (2001).
- [30] K. Yamada, K. Yosida, and K. Hanzawa, Prog. Theor. Phys. **71**, 450 (1984).
- [31] T. Inoshita, A. Shimizu, Y. Kuramoto, and H. Sakaki, Phys. Rev. B **48**, 14725 (1993).
- [32] T. Pohjola, J. König, M. M. Salomaa, J. Schmid, H. Schoeller, and G. Schön, Europhys. Lett. **40**, 189 (1997).
- [33] J. J. Palacios, L. Liu, and D. Yoshioka, Phys. Rev. B **55**, 15735 (1999).
- [34] A. L. Yeyati, F. Flores, and A. Martín-Rodero, Phys. Rev. Lett. **83**, 600 (1999).
- [35] P. G. Silvestrov and Y. Imry, Phys. Rev. Lett. **85**, 2565 (2000).
- [36] P. G. Silvestrov and Y. Imry, Phys. Rev. B **65**, 035309 (2001).
- [37] W. Hofstetter and H. Schoeller, Phys. Rev. Lett. **88**, 016803 (2002).
- [38] F. Guinea, Phys. Rev. B **67**, 195104 (2003).
- [39] C. Fühner, U. F. Keyser, R. J. Haug, D. Reuter, and A. D. Wieck, Phys. Rev. B **66**, 161305 (2002).
- [40] S. Florens and A. Georges, Phys. Rev. B **66**, 165111 (2002).
- [41] T. Pruschke and N. Grewe, Z. Phys. B **74**, 439 (1989).
- [42] O. Parcollet and A. Georges, Phys. Rev. Lett. **79**, 4665 (1997).
- [43] D. Chouvaev, L. S. Kuzmin, D. S. Golubev, and A. D. Zaikin, Phys. Rev. B **59**, 10599 (1999).

- [44] N. E. Bickers, Rev. Mod. Phys. **59**, 845 (1987).
- [45] S. Renn (1997), [cond-mat/9708194](#).
- [46] S. Drewes, D. P. Arovas, and S. Renn (2003), [cond-mat/0301396](#).
- [47] S. Sachdev, *Quantum Phase Transitions* (Cambridge, 2000).
- [48] T. A. Costi (2002), [cond-mat/0212651](#).
- [49] D. Giuliano, B. Jouault, and A. Tagliacozzo, Phys. Rev. B **63**, 125318 (2001).
- [50] D. P. Arovas, F. Guinea, C. Herrero, and P. San José (2002), [cond-mat/0211686](#).
- [51] K. B. Efetov and A. Tschersich, Europhys. Lett. **59**, 114 (2002).
- [52] C. A. Stafford and S. D. Sarma, Phys. Rev. Lett. **72**, 3590 (1994).
- [53] A. V. Herzog, P. Xiong, F. Shafiri, and R. Dynes, Phys. Rev. Lett. **76**, 668 (1996).
- [54] We have renormalized the Coulomb energy by a factor of two to obtain the correct solution in the atomic limit, see [40].
- [55] Naively the cut-off T_0 in this expression should be of order Λ as implied by the regularized expression of the bath $\Delta(\tau) = -N_L \Gamma[1 - \exp(-\Lambda|\tau|)]/\tau$. However logarithmic corrections to our approximative calculation imply that $T_0 \sim \sqrt{E_c \Gamma}$.

Partie IV

Fluctuations magnétiques dans les systèmes de fermions corrélés

8. Fluctuations magnétiques

Nous intéresserons ici à des questions de magnétisme dans les matériaux corrélés. Tout d'abord nous décrirons les comportements anormaux observés dans la phase normale de composés de fermions lourds comme $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$, au voisinage d'un point critique quantique. Ce problème sera étudié dans la perspective de la théorie d'Hertz-Moriya-Millis, que l'on abordera par des méthodes de théorie des champs et par l'approche EDMFT (section 8.1) ¹. Cela nous mènera à poser des limites à la fois sur le formalisme de champ moyen dynamique, mais aussi sur la validité de la théorie de fluctuation de spins pour le problème du point critique quantique. Ensuite, nous donnerons un exemple d'extension en clusters de la méthode DMFT (section 8.2), avec une application à l'étude d'un système de spins quantiques très frustrés de type Kagomé ².

8.1 Transition de phase quantique dans les fermions lourds

8.1.1 Présentation des résultats expérimentaux et interprétation théorique

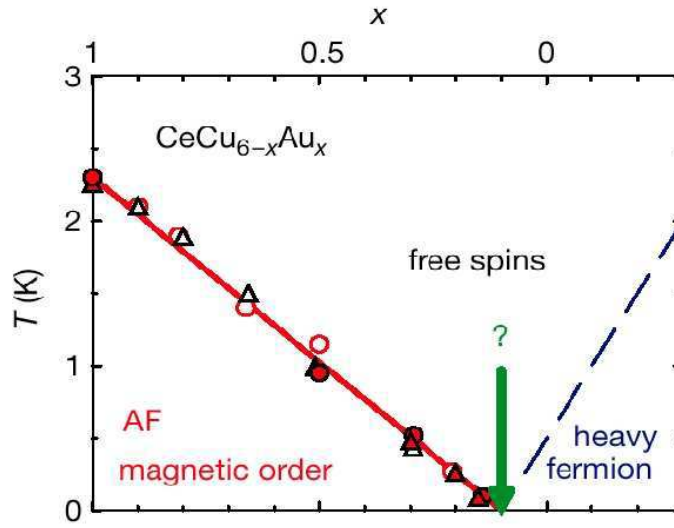
Nous allons maintenant nous intéresser à un problème complètement différent, celui des systèmes de fermions corrélés proches d'un point critique quantique. Cette physique intéressante se manifeste dans les composés de fermions lourds $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ (figure 8.1) et YbRh_2Si_2 en fonction de l'alliage ou de la pression respectivement [1]. Ces matériaux présentent en effet une transition de phase aux températures les plus basses observées entre une phase normale très corrélée et un état ordonné antiferromagnétiquement (métallique). À proximité d'un tel point critique de température nulle, on observe pour ces deux composés des comportements anormaux (non liquide de Fermi) dans toutes les mesures physiques [2–5].

Examinons d'abord les manifestations les plus flagrantes de ce comportement singulier, attribué à la proximité du point critique quantique ³ Les déviations par rapport au comportement de liquide de Fermi sont particulièrement fortes dans les quantités thermodynamiques (chaleur

¹Ce travail a été réalisé en collaboration avec A. Georges, G. Kotliar, S. Pankov et S. Sachdev (Article-6).

²Ce travail a été réalisé en collaboration avec A. Georges et R. Siddharthan (Article-7).

³Il existe par ailleurs des scénarios alternatifs qui prennent en compte le rôle du désordre [6, 7] (important dans $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$) ou des effets plus exotiques (effet Kondo multicanal [8]).


 Fig. 8.1 – Diagramme de phase de $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ en fonction de la composition [4].

spécifique, susceptibilité, résistivité)⁴ :

$$\begin{aligned} \frac{C}{T} &\sim \log \frac{T_0}{T} \\ \chi &\sim \chi_0 - B\sqrt{T} \\ \rho &\sim \rho_0 + A_1 T \end{aligned} \quad (8.1)$$

L'interprétation de ces résultats expérimentaux dans la théorie des phénomènes critiques quantiques n'est cependant pas immédiate. En effet, pour décrire les fluctuations magnétiques dans ces matériaux tridimensionnels, on devrait *a priori* considérer une théorie des champs [9–11] (Hertz-Moriya-Millis) bosonique à 3+1 dimensions, avec un exposant dynamique⁵ $z = 2$. Si l'on suit cette approche, les corrections au Liquide de Fermi sont alors différentes de celles observées dans les expériences : on trouverait ainsi une résistivité en $T^{3/2}$. Toutefois, ces résultats expérimentaux ont mené Rosch et collaborateurs [12] à remarquer que la théorie de Hertz-Millis à 2+1 dimensions reproduit exactement les résultats (8.1) ! La raison pour laquelle les fluctuations de spins seraient confinées à deux dimensions dans ces systèmes n'est cependant pas très claire, les fermions ayant une dispersion tridimensionnelle (on pourrait penser à un effet de frustration géométrique).

Des résultats plus récents de diffusion de neutrons sur $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}$ [3, 4] (figure 8.2) ont ajouté une confusion supplémentaire à ce problème. En effet la susceptibilité dynamique extraite de ces mesures semble montrer un comportement tout à fait curieux :

$$\chi(\vec{q}^*, \omega, T) = T^{-\alpha} g\left(\frac{\omega}{T}\right) \quad (8.2)$$

⁴ YbRh_2Si_2 présente des déviations à plus basse température par rapport à ce comportement [5].

⁵À cause du caractère itinérant des électrons, les degrés de liberté magnétiques ont une dynamique très particulière (amortissement de Landau).

Ici $\alpha \simeq 0.7$, $\vec{q}^*$ est le vecteur d'ordonnement, et g est une fonction d'échelle de ω/T que l'on peut déterminer à partir des résultats expérimentaux. On obtient ainsi un comportement

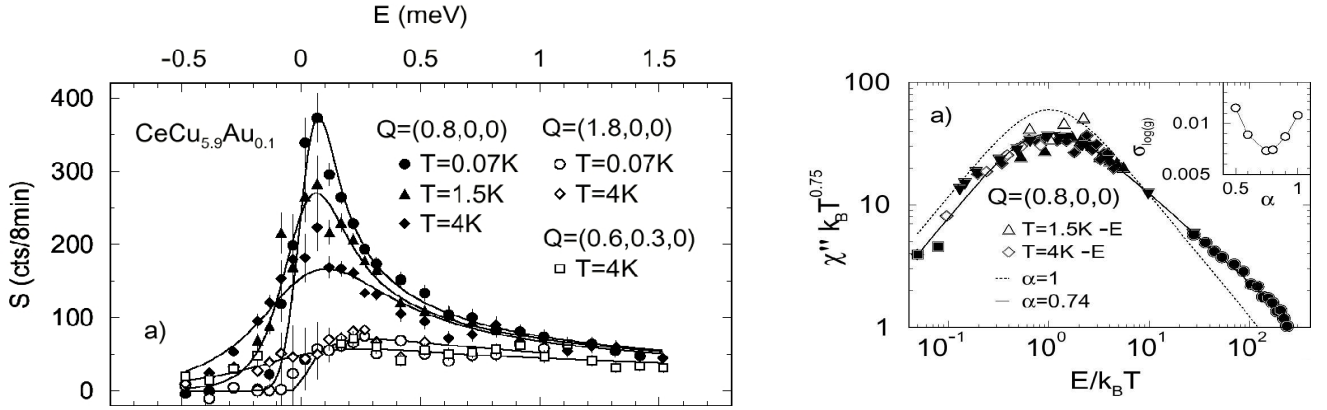


Fig. 8.2 – Données de neutrons [3] pour le composé $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$. À gauche : section efficace en fonction de l'énergie (pour différentes températures et vecteurs d'onde). À droite : illustration à partir de ces données de la forme d'échelle (8.2).

extrêmement singulier de la susceptibilité de spin, et cela semble *a priori* incompatible avec la suggestion d'utiliser une théorie des champs à 2+1 dimensions et $z = 2$, qui est décrite par un point fixe gaussien. En effet la susceptibilité expérimentale se comporte en $\omega^{-\alpha}$ à basse fréquence et température nulle, ce qui constitue à une correction singulière à l'amortissement de Landau.

Pour expliquer cette contradiction, de nombreux auteurs [4, 13, 14] ont avancé que l'approche de Hertz-Millis n'est pas valide dans le cas où l'échelle Kondo serait critique de façon concomitante avec les degrés de liberté magnétiques. Une manière possible de formaliser cette idée, due à Q. Si et collaborateurs, est d'utiliser le schéma EDMFT (dans le secteur de spin). Nous discuterons cette proposition à la section 8.1.3.

On peut cependant s'interroger sur la qualité et l'interprétation des résultats expérimentaux bruts que l'on discute ici. Tout d'abord, les données conduisant à la forme d'échelle (8.2) sont assez bruitées, même si des mesures plus récentes sous champ magnétique semblent confirmer ces résultats de manière assez convaincante. On remarque toutefois que l'origine de l'exposant anormal α est clairement associée au fait que la forme gaussienne d'une susceptibilité d'onde de spins :

$$\chi(\vec{q}^*, i\omega, T) \sim \frac{c}{|\omega| + aT} \quad (8.3)$$

n'est effectivement pas très bonne pour interpréter les données expérimentales. Or, si l'on croit à l'applicabilité de la théorie d'Hertz-Millis $d = z = 2$ (qui a le mérite d'expliquer la thermodynamique), on se rend compte que des corrections d'échelle peuvent modifier la forme (8.3), puisqu'on se trouve juste à la dimension critique supérieure. La question que l'on va se po-

ser dans la suite est dans quelle mesures ces corrections, sans être extrêmement singulières, pourraient simuler un exposant critique anormal α .

8.1.2 Corrections logarithmiques dans la théorie d'Hertz-Millis $d = z = 2$

On constate en effet qu'une théorie des champs à deux dimensions avec un exposant dynamique $z = 2$ est exactement à la dimension critique supérieure, et présente donc des corrections (logarithmiques) au scaling en ω/T . Ces corrections invalident donc la forme d'échelle (8.2), et pourraient aussi contribuer à un renforcement de l'amortissement de Landau (en $\omega(\log \omega)^\beta$), ce qui donnerait une explication simple pour réconcilier tous les faits expérimentaux.

Partons de la théorie de Hertz-Millis, qui décrit (sur une base semi-phénoménologique) les degrés de libertés magnétiques qui sont mous au point critique :

$$S = \int \frac{d\omega}{2\pi} \int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} (|\omega| + k^2) \Phi(i\omega, k)^2 + \int d\tau \int d^d x u \Phi(\tau, \vec{x})^4 \quad (8.4)$$

On remarque ici le terme d'amortissement de Landau en $|\omega|^{2/z}$ (avec $z = 2$) dans le propagateur des bosons. On se place à température nulle, et l'analyse dimensionnelle de l'action précédente montre que le couplage u est exactement marginal à $d = 2$. C'est le flot vers le point fixe gaussien de ce terme qui va produire les corrections qui nous intéressent ici. Pour calculer ces contributions, nous avons choisi deux stratégies complémentaires. La première est un calcul de groupe de renormalisation, qui permet de calculer *exactement* le comportement dominant des corrections logarithmiques. Le second calcul effectué est un développement de grand N dans une généralisation $O(N)$ de la théorie Φ^4 ci-dessus, à l'ordre $1/N$ inclus. Ces calculs sont assez techniques, et sont présentés dans l'Article-6 joint. Les deux méthodes employées pour traiter le problème conduisent au résultat suivant (à basse fréquence) :

$$\chi^{-1}(\vec{q}^*, i\omega, T = 0) = |\omega| + A \frac{|\omega|}{\log^2 |\omega|} + \dots \quad (8.5)$$

où A est une constante universelle.

□ CeCu_{6-x}Au_x : un problème ouvert

Les corrections logarithmiques sont donc sous dominantes par rapport au terme d'amortissement de Landau, et ne peuvent malheureusement pas expliquer les résultats expérimentaux. On peut donc se demander s'il faut abandonner totalement ce type d'approche se focalisant uniquement sur les fluctuations de spin. Il n'y a à l'heure actuelle pas de consensus réel sur le bon modèle à étudier (faut-il garder les fermions, introduire du désordre... ?). Il est à espérer que de nouvelles expériences seront menées prochainement (en particulier des mesures de neutrons sur d'autres composés que CeCu_{6-x}Au_x), et permettront peut-être d'y voir plus clair.

8.1.3 Faiblesses de l'approche EDMFT pour les phénomènes critiques

Une autre façon avancée pour aborder le problème est de considérer que la self-énergie des fluctuations de spin est purement locale [13], avec un comportement singulier en fréquence

(lois de puissance). La théorie de champ moyen dynamique étendue (présentée à la section précédente, mais dans le canal de charge) permet de formuler cette hypothèse de manière précise, et surtout de conserver les degrés de liberté fermionique du problème, qui sont supposés jouer ici un rôle important. On peut donc partir d'un modèle typique des problèmes de fermions lourds (réseau d'impureté Kondo) :

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k c_{k\sigma}^\dagger c_{k\sigma} + J_K \sum_{i\sigma\sigma'} \vec{S}_i \cdot c_{i\sigma}^\dagger \vec{\tau}_{\sigma\sigma'} c_{i\sigma'} + \sum_{i<j} I_{ij} S_i^z S_j^z \quad (8.6)$$

On a noté ici J_K le couplage Kondo (antiferromagnétique) entre les spins (qui représentent les électrons $4f$ quasi-localisés du cerium) et une bande d'électrons libres. Une interaction antiferromagnétique explicite (anisotrope) I_{ij} entre spins a été introduite, même si celle-ci est *a priori* générée par les fluctuations du bain d'électrons (effet RKKY). $\vec{\tau}_{\sigma\sigma'}$ dénote les trois matrices de Pauli. Le traitement EDMFT de ce problème introduit l'action locale :

$$\begin{aligned} S = & - \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_\sigma [c_\sigma(\tau)^\dagger \mathcal{G}_0^{-1}(\tau - \tau') c_\sigma(\tau') + S^z(\tau) \chi_0^{-1}(\tau - \tau') S^z(\tau')] \\ & + \int_0^\beta d\tau J_K \sum_{\sigma\sigma'} \vec{S} \cdot c_\sigma^\dagger \vec{\tau}_{\sigma\sigma'} c_{\sigma'} \end{aligned} \quad (8.7)$$

qui permet de décrire à la fois les fluctuations de spins près du point critique (grâce au bain bosonique $\chi_0(\tau)$), et le couplage Kondo au fermions (dont le mouvement est traité en DMFT). On capture donc la compétition, au coeur du problème considéré, entre l'écrantage des spins par les électrons de conduction et la tendance à l'ordre magnétique due à l'interaction RKKY : le point critique quantique est atteint lorsque les effets antagonistes de J_K et I_{ij} se contrebalancent exactement. On doit bien sûr suppléer au modèle d'impureté les relations d'autocohérence habituelles :

$$G(i\omega_n) = \sum_k \frac{1}{i\omega_n + G^{-1}(i\omega_n) - \mathcal{G}_0^{-1}(i\omega_n) - \epsilon_k} \quad (8.8)$$

$$\chi(i\nu_n) = \sum_q \frac{1}{\chi^{-1}(i\nu_n) + \chi_0^{-1}(i\nu_n) + I_q} \quad (8.9)$$

Cette formulation locale permet de réaliser maintenant l'intégration des électrons, grâce à un développement dans le terme de spin-flip de l'interaction Kondo [15]. On arrive ainsi à un modèle décrivant purement les fluctuations magnétiques :

$$S = \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' S^z(\tau) [-\chi_0^{-1}(\tau - \tau') + K(\tau - \tau')] S^z(\tau') + \int_0^\beta d\tau \Gamma S^x \quad (8.10)$$

où le noyau $K(\tau - \tau') \sim 1/(\tau - \tau')^2$ est introduit par les modes électroniques (analogue de l'amortissement ohmique de Landau), et $\Gamma \propto J_K$. On a donc un modèle de spin d'Ising en champ transverse, avec interactions à longue portée, que l'on peut traiter dans un développement de grand N . Celui-ci doit être réalisé à l'ordre $1/N$ inclus, pour trouver des corrections non triviales à la susceptibilité. Des arguments analytiques et une solution numérique complète des

équations EDMFT (à l'ordre $1/N$, pour un modèle bidimensionnel) sont donnés dans l'Article-6, et conduisent à des corrections extrêmement sous-dominantes dans la susceptibilité :

$$\chi^{-1}(\vec{q}^*, i\omega, T = 0) = |\omega| - A \omega^2 \log(1/|\omega|) \quad (8.11)$$

On n'observe donc pas de comportement singulier dans cette approche du problème, en contradiction avec des résultats numériques récents sur le modèle (8.10) [16]. On constate de plus que l'approche EDMFT ne prédit pas non plus les corrections logarithmiques attendues pour la théorie d'Hertz-Millis à la dimension critique.

8.1.4 Quelques remarques finales

Il est possible que la généralisation du modèle d'Ising quantique (8.10) à un modèle de phases ne soit pas valide (c'est une hypothèse que l'on a faite afin de pouvoir prendre la limite de N grand). De même, l'intégration des électrons à partir du modèle initial (8.7) pourrait ne pas être licite, même dans l'approche locale. Très récemment, P. Sun et G. Kotliar ont étudié le problème complet en EDMFT par Monte Carlo Quantique [17] (une variation dans le secteur de spin de l'algorithme à champs continus dont on a parlé à la section 5.2). Les résultats qu'ils ont obtenu montrent que les équations EDMFT pourraient être incapables de prédire un point critique quantique, car la transition vers la phase ordonnée est toujours du premier ordre, même à température nulle. Ce résultat peut en fait se comprendre (à haute température) sur des modèles plus simples (Ising) traités en EDMFT [18] : pour $d > 4$ on observe un comportement champ moyen correct (avec réduction de la température critique), mais on obtient une transition discontinue pour $d < 4$. Pour le problème du réseau Kondo (avec un couplage d'Ising entre spins localisés), cet effet semble persister jusqu'à température nulle, où (dans l'approximation EDMFT) le système préfère choisir un ordre magnétique de manière discontinue, plutôt que laisser les degrés de liberté fermioniques devenir critiques [17]. De plus, un modèle de réseau Kondo analogue à celui considéré ici (mais avec une interaction isotrope entre spins) a été regardé par Burdin et collaborateurs. Dans le cas bidimensionnel, près du point critique quantique, on a la mauvaise surprise de trouver que la solution des équations EDMFT devient non physique à basse température (violation de la causalité).

Pour conclure, on doit constater qu'il faut prendre les résultats de EDMFT avec précaution lorsqu'on se trouve près d'une phase ordonnée. Il n'est pas vraiment étonnant de constater qu'une telle approche locale manifeste violemment son mécontentement lorsque la longueur de corrélation commence à devenir grande. Mis à part ce défaut qu'il faut avoir en tête, ce formalisme est à l'heure actuelle une voie importante pour introduire les fluctuations de spin dans une approche de champ moyen dynamique. Nous allons en voir maintenant un dernier exemple.

8.2 Au delà des théories locales : application au magnétisme frustré

Cette dernière partie concerne des questions liées au magnétisme, et même si elle apparaît un peu déconnectée des travaux précédents sur le plan thématique, on va voir que les méthodes développées dans ce chapitre (champ moyen dynamique étendu, limite de grand N) y trouvent une application possible.

8.2.1 Système de spins sur le réseau Kagomé

L'intérêt porté aux modèles de spins quantiques de basse dimension sur des géométries très particulières est motivé par des considérations à la fois théoriques et expérimentales. Du côté matériaux, les exemples les plus souvent cités sont les composés à échelle de spin $\text{Sr}_{n-1}\text{Cu}_{n+1}\text{O}_{2n}$, qui interpolent directement entre une et deux dimension (de la chaîne au plan), les chaînes de spin entier comme Y_2BaNiO_5 , qui exhibent la physique du gap de Haldane, et les systèmes planaires dérivés du réseau Kagomé comme $\text{SrCr}_{9x}\text{Ga}_{12-9x}\text{O}_{19}$, qui présentent une forte frustration géométrique. Cette frustration est liée à la présence de boucles fermées de taille impaire dans la structure des couplages magnétiques, ce qui défavorise l'état de Néel (voir figure 8.3). Il faut noter que ce domaine est en pleine expansion au niveau de la synthèse de nouveaux composés, et on arrive à l'heure actuelle à réaliser des structures tout à fait complexes.

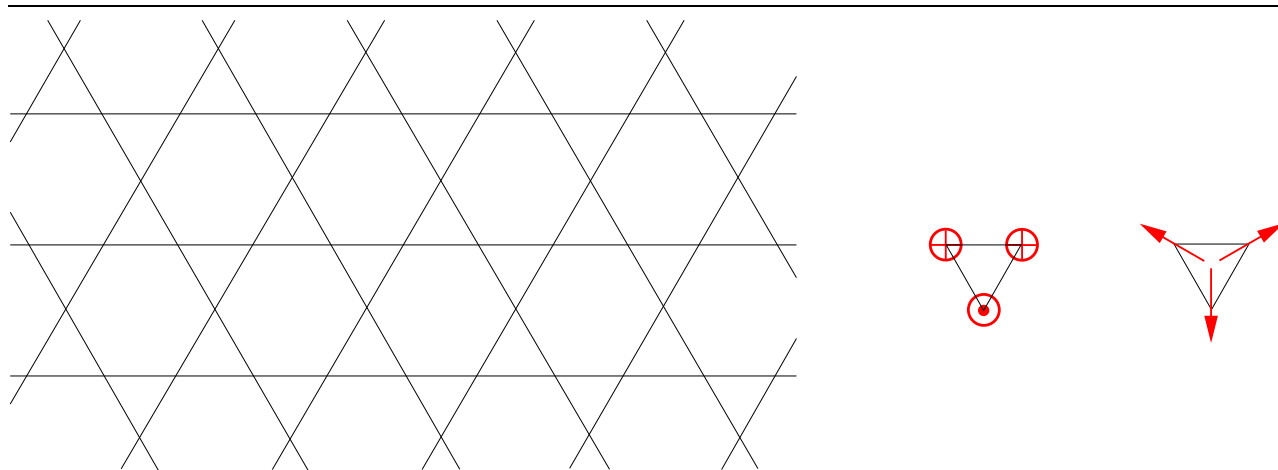


Fig. 8.3 – À gauche : structure Kagomé. À droite : trois spins (classiques) d'Ising ou de Heisenberg sur une plaquette triangulaire dans une configuration frustrée par l'interaction antiferromagnétique sur les liens.

Les modèles de spins sur réseaux frustrés, avec une connectivité faible (due bien sûr à la basse dimensionalité, mais aussi à la maille très particulière du réseau Kagomé, figure 8.3), peuvent posséder un état fondamental sans ordre à longue distance [19]. Les effets quantiques sont donc d'autant plus virulents dans ces systèmes frustrés, en particulier si l'on sonde la

physique à basse température. Il existe ainsi à l'heure actuelle un consensus sur le caractère désordonné de l'état fondamental du modèle de Heisenberg antiferromagnétique quantique ($S=1/2$) sur le réseau Kagomé, à la fois par des calculs de diagonalisation exacte [20, 21], et des séries haute température [22], bien qu'une preuve rigoureuse ne soit pas encore disponible.

Les modèles de spins qui sont magnétiquement désordonnés dans le fondamental manifestent une décroissance exponentielle des corrélations avec la distance ⁶, due à la présence d'un gap de spin entre le fondamental singulet et le premier état dans le secteur triplet. Il faut noter que cela n'est pas incompatible avec l'observation d'une mise en ordre dans un autre canal, comme par exemple une brisure de la symétrie d'espace par dimérisation des liens (cas du réseau carré à $J_2 \simeq 0.5J_1$). La physique du Kagomé est tout autre : comme Lhuillier et collaborateurs l'ont montré [20, 23], ce modèle présente une accumulation d'états singulets de basse énergie qui peuplent le gap ⁷ de spin $\Delta \simeq J/20$, avec une restauration complète des symétries (état liquide de spin).

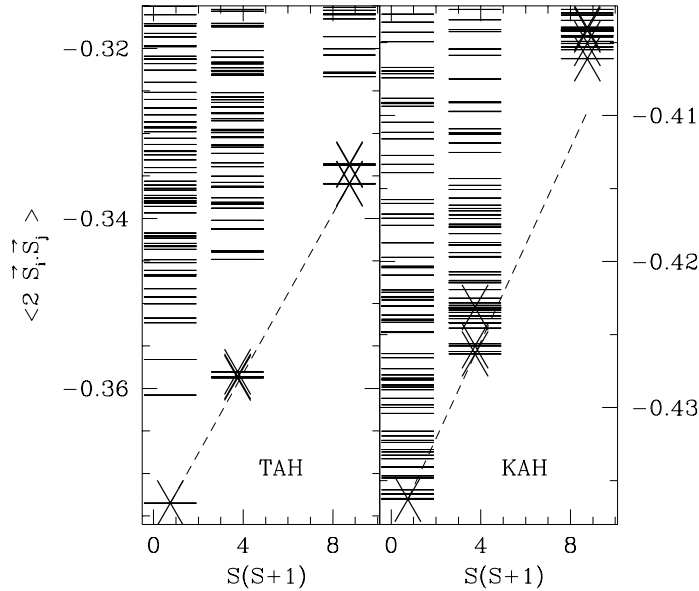


Fig. 8.4 – Spectres de diagonalisation exacte [20] pour le réseau triangulaire (TAH, à gauche) et kagomé (KAH, à droite). Dans le premier cas, le gap de spin (entre les tours $S = 1/2$ et $S = 3/2$) ne survit pas à la limite thermodynamique : TAH est ordonné à température nulle. La grande densité d'états de basse énergie dans le secteur singulet est explicite pour KAH.

Une des questions importantes est de savoir comment ces états influent sur les quantités thermodynamiques et fonctions de réponse à basse température. La structure très particulière du spectre du Kagomé conduit logiquement au résultat suivant (vérifié par les calculs de dia-

⁶Un quasi-ordre avec des corrélations algébriques est possible dans certains cas, comme la chaîne de spin $1/2$.

⁷Le terme "gap" n'est donc pas très heureux ici.

gonalisation exacte [24]) :

$$C(T) \propto T^2 \quad (8.12)$$

$$\chi(T) \propto e^{-\Delta/T} \quad (8.13)$$

Il n'est cependant pas évident d'obtenir une image très intuitive des états de basse énergie à partir de ces calculs numériques, comme illustré par la complexité des spectres de diagonalisation exacte, figure 8.4 (pour un réseau à 27 sites ; cette imparité implique un spin $S = 1/2$ dans le fondamental). Une façon d'aborder le problème de manière plus analytique est de se focaliser sur un espace formé par des recouvrements du réseau avec des états du type $[|i \uparrow, j \downarrow\rangle - |i \downarrow, j \uparrow\rangle]/\sqrt{2}$ (ici entre deux sites i et j différents), ce qui permet de générer une famille d'états singulets qui ne brisent pas l'invariance par rotation (ces idées ont mené à des progrès récents dans le cadre de modèles de dimères frustrés [25–27]). On parle alors d'états de liens de valence résonants, car les fluctuations quantiques entre plusieurs configurations de ce type permettent d'abaisser leur énergie [28]. Ces états sont des candidats naturels pour décrire le spectre de basse énergie dans le secteur singulet du Kagomé, même si l'on doit recourir à un mécanisme de sélection pour lever une partie de la dégénérescence de cet espace [29, 30]. Cette méthode n'est toutefois pas très adaptée au calcul des fonctions thermodynamiques.

□ Résultats de neutrons

Pour en revenir à l'aspect expérimental du problème, il faut remarquer que SCGO possède en fait une structure bi-couche Kagomé (figure 8.5) et présente un spin $3/2$ porté par les atomes de chrome. De plus le réseau comporte une forte dilution, car les atomes de galium (non magnétiques) viennent se substituer aux chromes (l'occupation en chrome d'un site de la bi-couche est de l'ordre de $x \sim 90\%$ pour $\text{SrCr}_8\text{Ga}_4\text{O}_{19}$). Le modèle sur un réseau Kagomé simple avec $S=1/2$ n'est donc pas quantitativement adapté pour décrire la physique de ce composé, mais on espère qu'il en capture l'essentiel. Des études récentes sur ce composé par mesure de diffusion de neutrons [31] ont révélé un comportement anormal de la susceptibilité de spin à basse fréquence pour des températures au-dessus de 4K (le système finit par trouver un ordre vitreux, non conventionnel, aux températures les plus basses). La réponse a en effet la forme suivante :

$$S(\omega) = \frac{\chi''(\omega)}{1 - \exp(-\omega/T)} = \omega^{-\alpha} F\left(\frac{\omega}{T}\right) \frac{1}{1 - \exp(-\omega/T)} \quad (8.14)$$

où $\alpha \simeq 0.4$, ce qui peut traduire en effet l'existence d'un grand nombre d'états de basse énergie au-dessus d'un fondamental non ordonné. Dans ce régime, la fonction de corrélation spin-spin décroît exponentiellement avec la distance (pas d'ordre à longue portée), mais possède une dynamique complexe, avec des corrélations algébriques en temps :

$$\langle \vec{S}(x, t) \cdot \vec{S}(x, 0) \rangle \sim \frac{1}{t^{0.6}} \quad (8.15)$$

On aimerait avoir une description de cette dynamique très particulière.

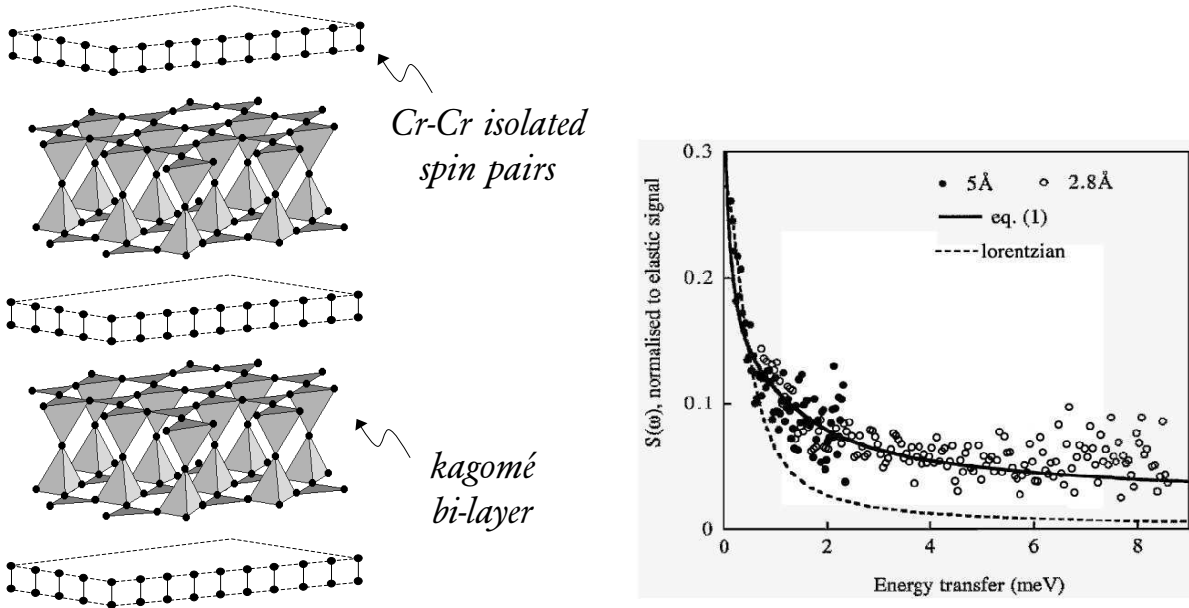


Fig. 8.5 – À gauche : structure bi-couche Kagomé de $\text{SrCr}_{9x}\text{Ga}_{12-9x}\text{O}_{19}$. À droite : résultat des mesures de neutrons [31] effectuées sur ce composé avec un fit des données par la loi d'échelle (8.14).

8.2.2 Approche de cluster-EDMFT

Avant d'aller plus loin, nous remarquons un fait expérimental supplémentaire, qui va motiver le type d'approche que nous allons envisager pour traiter ce problème. En effet, les études par neutrons mentionnées précédemment révèlent que, même si l'interaction Cr-Cr est assez forte ($J \sim 100K$), la longueur de corrélation spin-spin n'excède jamais une ou deux distances interatomiques [32]. Ce fait est vérifié par les calculs de diagonalisation exacte sur le réseau Kagomé, mais aussi sur des mesures de susceptibilité magnétiques [33, 34] (figure 8.6), qui révèlent des déviations à la loi de Curie :

$$\chi(T) \sim \frac{c}{T + \Theta} \quad (8.16)$$

seulement pour des températures en-dessous de $50K$, bien inférieures à la température de Curie-Weiss Θ ⁸. C'est donc une évidence supplémentaire qui indique que les corrélations magnétiques restent de très courte portée dans ce système. Nous remarquons aussi sur ces données que la susceptibilité macroscopique possède une contribution importante de moments localisés, due aux défauts dans la structure de la bi-couche ($\chi_{\text{def}} \propto 1/T$). Nous reviendrons sur ce point plus tard.

La forte décroissance des fonctions de corrélations dans l'espace nous pousse donc à traiter le problème en étudiant des degrés de liberté réduits à quelques sites. L'unité non triviale la plus simple du réseau Kagomé étant une plaquette triangulaire, nous nous proposons de considérer une action effective pour cette entité, qui sera couplée à des bains dépendant du

⁸Pour $\text{SrCr}_{9x}\text{Ga}_{12-9x}\text{O}_{19}$, $\Theta \simeq zJ \simeq 500K$, car $z = 5$ (bi-couche Kagomé), ce qui est vérifié à la figure 8.6.

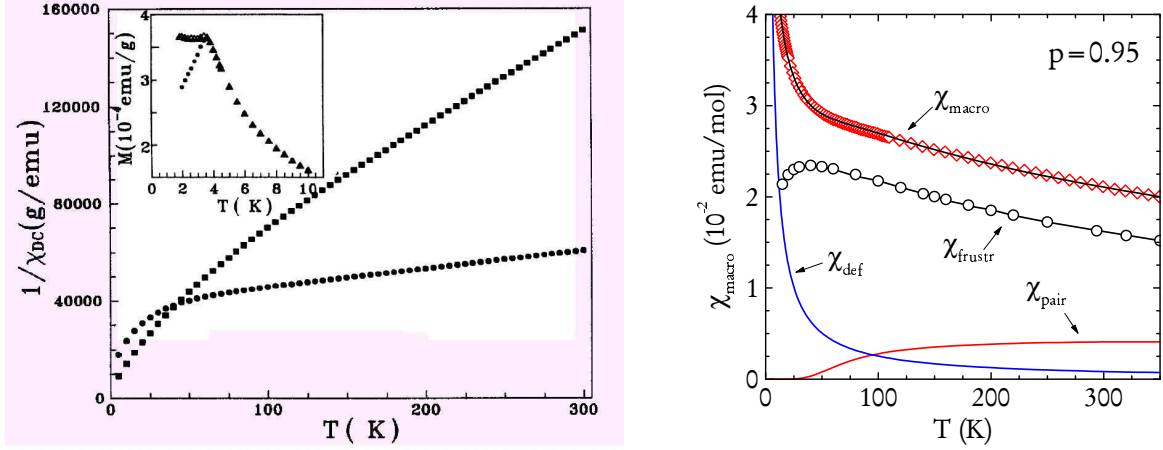


Fig. 8.6 – À gauche : inverse de la susceptibilité macroscopique (mesure SQUID [33]) pour $\text{SrCr}_2\text{Ga}_{10}\text{O}_{19}$ (réseau très dilué : $\Theta \sim 90\text{K}$) et $\text{SrCr}_8\text{Ga}_4\text{O}_{19}$ (réseau peu dilué : $\Theta \sim 500\text{K}$). À droite : séparation des diverses contributions à la susceptibilité pour $\text{SrCr}_8\text{Ga}_4\text{O}_{19}$ [35] ; susceptibilité macroscopique précédente χ_{macro} , susceptibilité intrinsèque χ_{frustr} de la bi-couche Kagomé (mesure RMN), susceptibilité des défauts de dilution χ_{def} et des paires de chrome isolées χ_{pair} .

temps pour simuler l'influence du réseau. Si l'on combine ainsi les approches cluster-DMFT [36] et Extended-DMFT [37–39], on est conduit à regarder l'action effective suivante :

$$S = S_B + \int_0^\beta d\tau \frac{J}{2} \sum_{a \neq b} \vec{S}_a \cdot \vec{S}_b + \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_{ab} D_{ab}(\tau - \tau') \vec{S}_a(\tau) \cdot \vec{S}_b(\tau') \quad (8.17)$$

où $a, b = 1, 2, 3$ sont des indices intra-plaquette et S_B le terme de Berry des spins. La susceptibilité dans la plaquette $\chi_{ab} = (1/3) \langle \vec{S}_a(\tau) \cdot \vec{S}_b(0) \rangle$ est déterminée par l'équation (matricielle) d'autocohérence :

$$\hat{\chi}(i\nu) = \sum_{\vec{q}} \left[J_{\vec{q}} - J\hat{\Delta}^{\text{intra}} + \hat{\chi}^{-1}(i\nu) - \hat{D}(i\nu) \right]^{-1} \quad (8.18)$$

où la matrice des couplages dans la plaquette $J\hat{\Delta}^{\text{intra}}$ est donnée par $J\hat{\Delta}_{ab}^{\text{intra}} = J(1 - \delta_{ab})$.

Cette approche permet donc de capturer à la fois la formation des corrélations magnétiques de courte distance (grâce à l'aspect étendu de l'unité de base que l'on considère), et une certaine dynamique de spin. Au lieu de tenter une résolution directe, nous avons choisi de simplifier davantage le problème en utilisant une solution de grand N dans une représentation fermionique des spins [40, 41] (voir l'Article-7), bien adaptée à ce type d'action effective. Le résultat final de ce calcul est que la susceptibilité présente, pour des température inférieures à J , un écrantage partiel des spins de la plaquette, de façon que :

$$\chi''(\omega) = \omega^{-\alpha} F\left(\frac{\omega}{T}\right) \quad (8.19)$$

où $\alpha \simeq 0.5$. Malheureusement, ce comportement persiste jusqu'aux températures les plus basses, ne permettant pas de capturer l'effet du gap triplet, dans le régime $T < \Delta \simeq J/20$.

Cependant, la petitesse du gap Δ laisse une plage importante en température où nos résultats peuvent être valides. On se référera à l'Article-7 pour plus de détails concernant cette solution.

8.2.3 Discussion critique

Il y a des arguments expérimentaux et théoriques que l'on pourrait soulever contre l'approche précédente. Tout d'abord, nous avons signalé la contribution importante de moments locaux à la susceptibilité uniforme, ainsi que les expériences de RMN récentes sur SCGO faites à Orsay l'ont montré [35]. Il n'est pas clair quel est le rôle attribué à ce signal dans les résultats de neutrons qui ont motivé notre calcul. Il semble probable, par la nature complexe du spectre pour le Kagomé, que la dynamique de ce système soit complexe, mais la forme (8.14) pourrait tout à fait ne pas être valide.

On peut aussi s'interroger sur le choix de l'action effective pour décrire la dynamique de la plaquette à trois spins que nous avons choisi d'isoler. Bien que cette forme soit très naturelle si l'on suit la philosophie du champ moyen dynamique étendu, on constate certaines déficiences intrinsèques à cette approche. En effet, le bain qui est couplé aux spins internes peut être représenté par un champ commutant :

$$S = S_B + \int_0^\beta d\tau \frac{J}{2} \sum_{a \neq b} \vec{S}_a \cdot \vec{S}_b + \sum_a \vec{h}_a(\tau) \cdot \vec{S}_a(\tau) + \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_{ab} D_{ab}^{-1}(\tau - \tau') \vec{h}_a(\tau) \cdot \vec{h}_b(\tau') \quad (8.20)$$

Ceci implique qu'à température nulle, on trouve un spin résiduel $S = 1/2$ sur la plaquette, car la formation de singulets entre les spins de la plaquette et le monde extérieur, qui est au cœur de cette physique, n'est pas correctement prise en compte dans cette action effective. D'un point de vue pratique, cette action est aussi extrêmement difficile à résoudre par les méthodes numériquement exactes (Monte Carlo Quantique [42]), car les problèmes de signes dus à la frustration sont très importants [43].

En fait il semblerait plus physique d'introduire un bain fermionique pour écranter les spins dans la plaquette (modèle Kondo généralisé), même si cette idée n'est pas évidente à formaliser d'un point de vue pratique. Il semble quand même raisonnable d'imaginer qu'un spin plongé dans un liquide de spin formé d'excitations fermioniques déconfinées (spinons) ait un lien avec le problème Kondo.

Bibliographie du chapitre 8

- [1] **G. R. Stewart**, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 797 (2001).
- [2] **H. v. Löhneysen, T. Pietrus, G. Portisch, H. G. Schlager, A. Schröder, M. Sieck et T. Trappmann**, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3262 (1994).
- [3] **A. Schröder, G. Aeppli, E. Bucher, R. Ramazashvili et P. Coleman**, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5623 (1998).
- [4] **A. Schröder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili et P. Coleman**, *Nature* **407**, 351 (2000).
- [5] **O. Trovarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F. M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, G. Sparn et F. Steglich**, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 626 (2000).
- [6] **O. O. Bernal, D. E. MacLaughlin, H. G. Lukefahr et B. Andraka**, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2023 (1995).
- [7] **A. Rosch**, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4280 (1999).
- [8] **C. L. Seaman, M. B. Maple, B. W. Lee, S. Ghamaty, M. S. Torikachvili, J. S. Kang, L. Z. Liu, J. W. Allen et D. L. Cox**, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 2882 (1991).
- [9] **J. Hertz**, *Phys. Rev. B* **14**, 1165 (1976).
- [10] **T. Moriya et J. Kawabata**, *Phys. Soc. Jap.* **34**, 639 (1973).
- [11] **A. J. Millis**, *Phys. Rev. B* **48**, 7183 (1993).
- [12] **A. Rosch, A. Schröder, O. Stockert et H. v. Löhneysen**, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 159 (1997).
- [13] **Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent et L. Smith**, *Nature* **413**, 804 (2001).
- [14] **P. Coleman et C. Pépin**, cond-mat/0301001.
- [15] **P. W. Anderson, G. Yuval et D. R. Hamann**, *Phys. Rev. B* **1**, 4464 (1970).
- [16] **D. Grempel et Q. Si**, cond-mat/0207493.
- [17] **P. Sun et G. Kotliar**, cond-mat/0303539.
- [18] **S. Pankov, G. Kotliar et Y. Motome**, *Phys. Rev. B* **66**, 45117 (2002).
- [19] **C. Lhuillier et G. Misguich**, *High Magnetic Fields*. Springer, (2002).
- [20] **P. Lecheminant, B. Bernu, C. Lhuillier, L. Pierre et P. Sindzingre**, *Phys. Rev. B* **56**, 2521 (1997).
- [21] **P. W. Leung et V. Elser**, *Phys. Rev. B* **47**, 5459 (1993).

- [22] **N. Elstner et A. P. Young**, *Phys. Rev. B* **50**, 6871 (1994).
- [23] **C. Waldtmann, H. U. Everts, B. Bernu, C. Lhuillier, P. Sindzingre, P. Lecheminant et L. Pierre**, *Euro. Phys. J. B* **2**, 501 (1998).
- [24] **P. Sindzingre, G. Misguich, C. Lhuillier, L. Pierre, C. Waldtmann et H. U. Everts**, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2953 (2000).
- [25] **R. Moessner et S. L. Sondhi**, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1881 (2001).
- [26] **G. Misguich, D. Serban et V. Pasquier**, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 137202 (2002).
- [27] **G. Misguich, D. Serban et V. Pasquier**, cond-mat/0302152.
- [28] **P. W. Anderson**, *Mater. Res. Bull.* **8**, 153 (1973).
- [29] **F. Mila**, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2356 (1998).
- [30] **M. Mambrini et F. Mila**, *Euro. Phys. J. B* **17**, 651 (2000).
- [31] **C. Mondelli, H. Mutka, C. Payen, B. Frick et K. Andersen**, *Physica B* **284**, 1371 (2000).
- [32] **C. Mondelli, K. Andersen, H. Mutka, C. Payen et B. Frick**, *Physica B* **267**, 139 (1999).
- [33] **B. Martinez, F. Sandiumenge, A. Rouco, A. Labarta, J. RodriguezCarvajal, M. Tovar, M. T. Causa, S. Gali et X. Obradors**, *Phys. Rev. B* **46**, 10786 (1992).
- [34] **P. Mendels, A. Keren, L. Limot, M. Mekata, G. Collin et M. Horvatic**, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3496 (2000).
- [35] **L. Limot, P. Mendels, G. Collin, C. Mondelli, B. Ouladdiaf, H. Mutka, N. Blanchard et M. Mekata**, *Phys. Rev. B* **65**, 144447 (2002).
- [36] **A. Schiller et K. Ingersent**, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 113 (1995).
- [37] **A. Sengupta et A. Georges**, *Phys. Rev. B* **52**, 10295 (1995).
- [38] **H. Kajueter et G. Kotliar**, *Non publié* (1995).
- [39] **Q. Si et J. L. Smith**, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3391 (1996).
- [40] **A. Georges, O. Parcollet et S. Sachdev**, *Phys. Rev. B* **63**, 134406 (2001).
- [41] **O. Parcollet, A. Georges, G. Kotliar et A. Sengupta**, *Phys. Rev. B* **58**, 3794 (1998).
- [42] **D. R. Grempel et M. J. Rozenberg**, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 389 (1998).
- [43] **R. Siddharthan** Communication privée.

Article 6

Phys. Rev. B **69**, 054426 (2004)

PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)

Non-Fermi-liquid behavior from two-dimensional antiferromagnetic fluctuations: A renormalization-group and large- N analysis

Sergey Pankov,¹ Serge Florens,² Antoine Georges,² Gabriel Kotliar,¹ and Subir Sachdev³¹*Center for Materials Theory, Department of Physics and Astronomy, Rutgers University, Piscataway, New Jersey 08854, USA*²*Laboratoire de Physique Théorique, Ecole Normale Supérieure, 24 Rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France*³*Department of Physics, Yale University, P.O. Box 208120, New Haven, Connecticut 06520-8120, USA*

(Received 6 May 2003; published 27 February 2004)

We analyze the Hertz-Moriya-Millis theory of an antiferromagnetic quantum critical point, in the marginal case of two dimensions ($d=2, z=2$). Up to next-to-leading order in the number of components (N) of the field, we find that logarithmic corrections do not lead to an enhancement of the Landau damping. This is in agreement with a renormalization-group analysis, for arbitrary N . Hence, the logarithmic effects are unable to account for the behavior reportedly observed in inelastic neutron scattering experiments on $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$. We also examine the extended dynamical mean-field treatment (local approximation) of this theory, and find that only subdominant corrections to the Landau damping are obtained within this approximation, in contrast to recent claims.

DOI: 10.1103/PhysRevB.69.054426

PACS number(s): 75.20.Hr, 71.27.+a, 71.10.Hf

I. INTRODUCTION

Materials in the vicinity of a quantum critical point (QCP) continue to be the subject of intensive investigations.¹ Particular attention has been paid to the heavy fermion system $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ which undergoes a phase transition from a paramagnetic, heavy-fermion metal to an antiferromagnetic metal as a function of chemical composition and pressure.^{2,3} Another remarkable case is the stoichiometric compound YbRh_2Si_2 which is apparently located very close (on the magnetic side) of an antiferromagnetic QCP.⁴ Hydrostatic pressure stabilizes the magnetic phase in that case. As the critical point is approached, these systems exhibit an enhancement of the specific heat coefficient C/T , magnetic susceptibility, resistivity $\Delta\rho$ and thermoelectric power, which is not easily described within the conventional theory of a three-dimensional quantum critical antiferromagnet.

Neutron scattering experiments^{3,5-7} on $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ have revealed that the spin fluctuation spectrum of this compound has a two-dimensional character in a wide range of temperatures. Indeed, maxima of the neutron scattering intensity are observed along rodlike structures in reciprocal space along which spin fluctuations are independent of one component of the wave vector. This motivated Rosch *et al.*⁵ to propose that the observed anomalies are the results of the coupling of three-dimensional electrons to quasi-two-dimensional critical spin fluctuations. In such a situation, conventional Hertz-Moriya-Millis theory⁸⁻¹¹ of quantum critical behavior leads to $C/T \propto \ln(1/T)$, $\Delta\rho \propto T$, consistent with experimental findings. A similar observation applies to the thermoelectric power.¹² The microscopic reason for the two-dimensional nature of spin fluctuations is not clear however for $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$, while magnetic frustration might provide a natural explanation⁴ in the case of YbRh_2Si_2 (for which inelastic neutron scattering data are not yet available).

The approach of Rosch *et al.*⁵ requires fine-tuning on a microscopic level (since a three-dimensional dispersion of the electrons will generically lead to three-dimensional criti-

cal fluctuations at the QCP) but it is internally consistent on a theoretical level. Indeed, the vertex corrections to the electron-spin fluctuation interaction is finite¹² in the case of a coupling to a three-dimensional fermion spectrum. (Note that the situation is different for two-dimensional fermions, which leads to a singular vertex.¹³) Since the vertex is non-singular, the physics of long-wavelength magnetic fluctuations is described by a ϕ^4 field theory with Ohmic damping. The quartic term is marginally irrelevant for $d=2$, which is the upper critical dimension of this theory. Hence, the flow of the quartic term will lead to logarithmic deviations from mean-field critical behavior. These effects have not been investigated previously for the frequency-dependent response function in this context. Inelastic neutron scattering^{3,6,7} on $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ at the QCP ($x_c \approx 0.1$) have revealed an anomalous enhancement of the Landau damping. Whether logarithmic effects at the upper critical dimension could account for such an enhancement in the range of experimentally accessible frequencies is an outstanding open question which we address in this paper. We use the number of components (N) of the field as a control parameter, and perform a calculation of the dynamical susceptibility to order $1/N$. We find that, to this order, the sign of the corrections to Landau damping cannot explain the experimental data.

An alternative theoretical viewpoint on the physics at the QCP is that the spin-fluctuation self-energy at the QCP is purely local (i.e., momentum independent) and has an anomalous power-law dependence on frequency and temperature. This was first proposed^{3,6} as a phenomenological fit to the inelastic neutron scattering data in the form $\text{Im} \chi_{q=Q}^{-1} = \omega^\alpha f(\omega/T)$ with $\alpha \approx 0.7-0.8$. Si *et al.*¹⁴ have further developed this point of view in the framework of the extended dynamical mean-field (EDMFT) theory of the Kondo lattice.¹⁵⁻¹⁷ It has been argued in this context that the separation of electronic degrees of freedom and long-wavelength magnetic fluctuations is not legitimate,^{14,18} because the (Kondo) coherence scale below which electron degrees of freedom can be eliminated might vanish at the QCP. Re-

PANKOV, FLORENS, GEORGES, KOTLIAR, AND SACHDEV

 PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)

cently however, Grempel and Si showed¹⁹ that starting above the Kondo temperature the EDMFT of the Kondo lattice can be mapped, using bosonization tricks, onto the EDMFT of the ϕ^4 theory for magnetic modes (see also the earlier work by Sengupta and one of us¹⁷). They further suggested that, in two dimensions, this theory would lead to an anomalous Landau damping, with the power-law form mentioned above ($\alpha < 1$). We study this effective theory in the EDMFT approximation, using both a strict $1/N$ expansion and a numerical solution using the large- N expansion as an “impurity solver.” We find that, contrary to the statements of Ref. 19, no anomalous power-law is generated. In fact, the EDMFT approximation to the ϕ^4 field theory in the marginal case does not correctly reproduce the logarithmic corrections to the damping rate found in our direct calculation for $d=2$, and leads only to subdominant $O(\omega^2)$ corrections at low energy. This extends to the marginal case the previous work of Motome and two of us²⁰ on the EDMFT approximation applied to critical behavior, in which it was indeed found that the approximation is better in higher dimensions, and becomes unreliable below the upper critical dimensions. Hence, the general conclusion of our paper is that logarithmic effects at the upper critical dimensions in the conventional theory of an antiferromagnetic QCP cannot explain the behavior observed experimentally for $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$, at least at dominant order in the $1/N$ expansion.

This paper is organized as follows. In Sec. II, we perform a general renormalization-group analysis of the ϕ^4 theory with damping. In Sec. III, we take a large- N perspective, and present an explicit solution up to next to leading order in the $1/N$ expansion. We also describe the local (EDMFT) approximation to this theory, up to order $1/N$. In Sec. IV we discuss in more details the EDMFT approach, and solve numerically the EDMFT equations using a large- N impurity solver. We conclude with a discussion of the implications of our work for the understanding of non-Fermi-liquid behavior in heavy-fermion materials close to an antiferromagnetic QCP.

II. RENORMALIZATION GROUP ANALYSIS

A. Model and general renormalization-group framework

In this paper, we consider the following field theory^{8,10,11} for an N -component field $\phi_a (a=1, \dots, N)$:

$$S = \frac{1}{2} \sum_{q,\omega} D_0^{-1}(q, i\omega) \sum_a \phi_a^2(q, i\omega) + \frac{u_0}{4!} \int d^d x d\tau \left[\sum_a \phi_a(x, \tau)^2 \right]^2 \quad (1)$$

in which the free propagator reads, for imaginary frequencies $D_0^{-1}(q, i\omega) = r + |\omega| + q^2$. This theory describes the vicinity of an antiferromagnetic quantum critical point, corresponding to the (bare) value $z=2$ of the dynamical critical exponent. In this context, the dissipative term is induced by the coupling to electronic degrees of freedom (Landau damp-

ing). For a different physical realization of this model see Ref. 21. The q -vector is the difference from the ordering wave vector, and r is a parameter which measures the distance to the critical point. We are particularly interested in this paper in the two-dimensional case, but we shall also briefly consider lower dimensions $1 \leq d < 2$ (Sec. II C). In this section, we shall use the following normalized coupling constant:

$$g_0 \equiv S_d u_0 \quad \text{with} \quad S_d = \frac{2}{\pi \Gamma(d/2) (4\pi)^{d/2}}. \quad (2)$$

When considering the bare theory, an (ultraviolet) cutoff Λ on momenta is introduced. We consider the bare irreducible two-point function $\Gamma \equiv \chi^{-1}$, which is the inverse of the correlation function [dynamical susceptibility $\chi(q, i\omega) = \langle \phi(q, i\omega) \phi(q, -i\omega) \rangle$]. The renormalization group (RG) specifies²² how Γ changes upon a rescaling of the cutoff $\Lambda \rightarrow \lambda \Lambda$. The corresponding RG equation is obtained by imposing that the renormalized two-point function $\Gamma_R = Z\Gamma$ is independent of the original cutoff (with Z the field or “wave function” renormalization). Focusing first, for simplicity, on the field-theory (1) in the critical (massless) case, Γ satisfies the following equation (all Green’s functions in this and the next subsection are at $T=0$):

$$\Gamma[q, i\omega; g_0, \Lambda] = (\lambda \Lambda)^2 Z_\lambda^{-1} \Gamma \left[\frac{q}{\lambda \Lambda}, \frac{Z_\lambda}{(\lambda \Lambda)^2} i\omega; g_\lambda, \Lambda = 1 \right]. \quad (3)$$

In this expression, Z_λ and the running coupling constant g_λ are defined from the usual RG functions

$$\lambda \frac{d}{d\lambda} g_\lambda = \beta(g_\lambda) \quad g_{\lambda=1} = g_0, \quad (4)$$

$$\lambda \frac{d}{d\lambda} \ln Z_\lambda = \eta(g_\lambda) \quad Z_{\lambda=1} = 1. \quad (5)$$

Let us emphasize a key aspect of Eq. (3), namely, that the damping term does not require an independent renormalization so that the frequency dependence in the right-hand side (RHS) of Eq. (3) involves only the wave-function renormalization Z_λ .^{23,24} This can be proven to hold to all orders, using a field theoretic RG.²⁵ For a use of this method in a different context see Ref. 26.

We have calculated the RG function β at one-loop order and the function η at two-loop order. The diagrams contributing to the two-point function Γ up to this order are depicted in Fig. 1. We obtain (with $\epsilon = d-2$)

$$\beta(g) = -\epsilon g + b_2 g^2 + O(g^3),$$

$$\eta(g) = c_2 g^2 + O(g^3),$$

where the coefficients b_2 and c_2 read, in the N -component theory

NON-FERMI-LIQUID BEHAVIOR FROM TWO-...

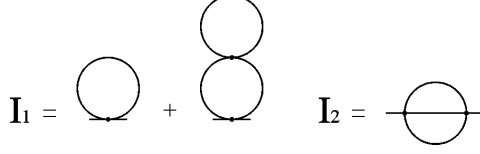
 PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)


FIG. 1. Graphs contributing to the two-point function at two-loop order.

$$b_2 = \frac{N+8}{6}, \quad c_2 = \frac{(N+2)(12-\pi^2)}{144}. \quad (6)$$

Details of calculation of the coefficient c_2 are given in Appendix A.

B. The marginal case $d=2$: logarithmic corrections to Landau damping

We focus here on the marginal case $d=2$ at the quantum-critical point, and integrate the above RG equations in order to obtain the corrections to the Landau damping at $T=0$. Integrating the RG equations (4), (5) using Eq. (6) yields, to this order

$$\Gamma(q=0, i\omega) = |\omega| \left(1 + \frac{[6\pi^2 \ln 2 - 11\zeta(3)](N+2)}{12(N+8)^2} \frac{1}{\ln^2(|\omega|Z^*/\Lambda^2)} \right). \quad (9)$$

Hence, only subdominant corrections to the Landau damping are generated in the marginal case $d=2$. Furthermore, the positive coefficient in the above expression can be interpreted as an effective exponent $\alpha=2/z>1$. This is in agreement with the $1/N$ expansion, which we consider later in this paper.

C. $\epsilon=2-d$ expansion of critical exponents and corrections to scaling

We consider here the case $d<2$, in which the quartic term is relevant, and the effective coupling g_λ tends to a nontrivial fixed point. The case $d=1$ is relevant, for example, when considering¹¹ an Ising chain in a transverse field ($N=1$) or a chain of quantum rotors ($N>1$) coupled to a dissipative environment.

We make use of the general RG equation (3) by choosing $\lambda=\lambda^*$ such that $q/\lambda^*\Lambda=1$. For $\lambda\rightarrow 0$, we now have $g_\lambda \rightarrow g^*$ and $Z_\lambda \sim \lambda^\eta$ [with the critical exponent $\eta \equiv \eta(g^*)$]. Hence, we obtain (at $T=0$) for the dynamical susceptibility $\chi = \Gamma^{-1}$ at low-frequency and small momentum

$$\chi(q, \omega) = q^{-2+\eta} \phi(\omega/cq^{2-\eta}). \quad (10)$$

In this expression, ϕ is a universal scaling function associated with the fixed point. From this expression, the dynamical critical exponent is identified as

$$g_\lambda = \frac{g_0}{1 - b_2 g_0 \ln \lambda},$$

$$Z_\lambda = \exp\left(\frac{c_2 g_0^2 \ln \lambda}{1 - b_2 g_0 \ln \lambda}\right). \quad (7)$$

As expected in the marginal case, g_λ flows logarithmically to zero as $\lambda \rightarrow 0$, while Z_λ tends to some (nonuniversal) constant Z^* . To analyze the frequency dependence of Γ we use the general RG equation (3), setting $q=0$ and choosing $\lambda = \lambda^*$ such that $\omega Z_{\lambda^*}/(\lambda^* \Lambda)^2 = 1$. This leads to

$$\Gamma(q=0, i\omega; g_0, \Lambda) = |\omega| \Psi(g_{\lambda^*}) \quad (8)$$

in which we use the notation $\Psi(g) \equiv \Gamma(q=0, i\omega=i; g, \Lambda=1)$. We then expand the RHS of Eq. (8) in powers of g_{λ^*} , with $g_{\lambda^*} \sim -1/(b_2 \ln \lambda^*) \sim -2/[b_2 \ln(Z^*|\omega|/\Lambda^2)]$. This expansion actually starts at second order in g_λ , since the two-point function Γ is subtracted to insure that one sits at the critical point (in other words, the tadpoles I_1 do not contribute to the frequency dependence). Noting that $I_2(q=0, i\omega=0; g_\lambda, \Lambda) - I_2(q=0, i\omega, g_\lambda, \Lambda) = c g_\lambda^2 |\omega|$, coefficient c computed in Appendix A, we finally obtain a correction to the frequency dependence of the two-point function at the $T=0$ QCP of the form

$$z = 2 - \eta. \quad (11)$$

An expression which holds to all orders, and is the result of the existence of a unique RG function, as explained above. This scaling form can actually be generalized to finite temperature in the quantum critical regime in the form

$$\chi(q, \omega) = \frac{1}{T} \Phi\left(\frac{\omega}{T}, \frac{c_1 q}{T^{1/z}}\right) \quad (12)$$

with Φ a universal scaling function and c_1 a nonuniversal constant. In particular, at zero-momentum, $T\chi(q=0, \omega)$ is an entirely universal scaling function of ω/T . At small ω/T , we expect an analytic dependence on ω/T , with $\Gamma(0, \omega)/T = C_1 - iC_2\omega/T + \dots$. In contrast, at large ω/T we have $\Gamma(0, \omega)/T = -iC_3\omega/T$, and the subdominant terms are not analytic, but are related to those in Eq. (19) below. Here C_{1-3} are all nontrivial *universal* constants. The value of C_3 is determined in the ϵ expansion by the computations in Appendix A [$C_3 = 1 + c(\epsilon/b_2)^2 + \dots$], and this universality is clearly related to the universal logarithmic correction in Eq. (9). The values of $C_{1,2}$ require a computation of the damping at $T>0$, and accurate determination of these is likely to require a self-consistent treatment of the loop corrections, as discussed in Ref 27. In particular, $C_2 \neq C_3$ and hence

PANKOV, FLORENS, GEORGES, KOTLIAR, AND SACHDEV

 PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)

$$\lim_{\omega \rightarrow 0} \lim_{T \rightarrow 0} \frac{\text{Im} \Gamma(q, \omega)}{\omega} \neq \lim_{T \rightarrow 0} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{\text{Im} \Gamma(q, \omega)}{\omega}. \quad (13)$$

So the Landau damping co-efficient is sensitive to the order of limits of $\omega \rightarrow 0$ and $T \rightarrow 0$; we expect that similar considerations will also apply to the logarithmic corrections in $d = 2$ noted in Eq. (9).

From the RG expressions in Sec. II A, the ϵ expansion of the critical exponent $\eta = 2 - z$ reads, to order ϵ^2

$$\eta = \frac{(N+2)(12-\pi^2)}{4(N+8)^2} \epsilon^2 + O(\epsilon^3). \quad (14)$$

We have also obtained the correlation length exponent at order ϵ :

$$\nu = \frac{1}{2} + \frac{(N+2)}{4(N+8)} \epsilon + O(\epsilon^2). \quad (15)$$

Finally, we comment briefly on the next-to-leading corrections at $T=0$ to the Landau damping at the QCP. These are obtained from corrections to scaling, i.e., depend on the manner in which g_λ flows to the fixed point:

$$g_\lambda = g^* + (g_0 - g^*) \lambda^\Omega + \dots \quad (16)$$

with

$$\Omega = \beta'(g^*) = \epsilon + O(\epsilon^2). \quad (17)$$

The RG equation then yields the following form for the two-point function, including corrections to scaling

$$\Gamma(q, \omega) = q^{2-\eta} [\gamma_0(\omega q^{-z}) + q^{2\Omega} \gamma_2(\omega q^{-z}) + \dots]. \quad (18)$$

Taking the limit $q \rightarrow 0$, this yields the following form of the Landau damping term

$$\Gamma(q=0, i\omega) = C_0 |\omega|^{(2-\eta)/z} + C_2 |\omega|^{(2-\eta+\Omega)/z} + \dots \quad (19)$$

In the present case, the exact identity $z=2-\eta$ implies that the dominant term is simply $\propto |\omega|$, while a correction of the form $|\omega|^{1+\Omega/(2-\eta)}$ is found. The logarithmic correction found above can be seen as the limiting behavior of this correction in the marginal case $d=2$ ($\epsilon=0$).

III. LARGE- N ANALYSIS OF THE ϕ^4 THEORY OF AN ANTIFERROMAGNETIC QUANTUM CRITICAL POINT IN TWO DIMENSIONS ($z=2$)

In this section, we treat the field theory (1) within the large- N expansion. For this purpose, we scale the coupling constant in Eq. (1) by $1/N$ and set

$$u_0 = \frac{6u}{N}. \quad (20)$$

We denote by Σ_0 and Σ_1 the contributions to the self-energy of order $1/N^0$ and $1/N$, respectively, ($(\phi\phi)^{-1} = D_0^{-1} - \Sigma$). The (skeleton) diagrams contributing to Σ_0 and Σ_1 are depicted in Fig. 2. The corresponding expressions read

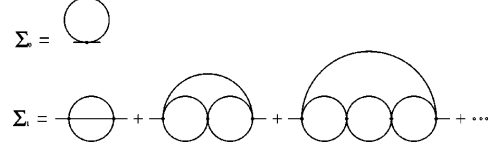


FIG. 2. Self-energy graphs in the $1/N$ expansion.

$$\Sigma_0(q, i\omega) = -uT \sum_{\nu_n} \int \frac{d^2k}{(2\pi)^2} D(k, i\nu_n), \quad (21)$$

$$\Sigma_1(q, i\omega) = -2\frac{u}{N} T \sum_{\nu_n} \int \frac{d^2k}{(2\pi)^2} \frac{D(k+q, i\nu_n+i\omega_n)}{1+u\Pi_0(k, i\nu_n)}, \quad (22)$$

where

$$\Pi_0(q, i\omega) = T \sum_{\nu_n} \int \frac{d^2p}{(2\pi)^2} D(p, i\nu_n) D(p+q, i\nu_n+i\omega_n). \quad (23)$$

In this expression, D denotes the full propagator to order $1/N^0$ (i.e., including the self-energy Σ_0). Hence, Eq. (21) should be viewed as a self-consistent equation for Σ_0 . We first consider this equation at $\omega=q=0$, defining a “gap” $\Delta(T) = r - \Sigma(q=0, i\omega=0)$ related to the correlation length ξ by $\Delta = \xi^{-2}$. Δ vanishes (ξ diverges) at the $T=0$ QCP. At the saddle point ($N=\infty$) level $\Delta(T) = \Sigma_0(T=0) - \Sigma_0(T)$. We show in Appendix B that, at this order, the self-consistent equation for the gap reads (see also Ref. 28)

$$\frac{(2\pi)^2}{u} \tilde{\Delta} = \frac{1}{2} \ln \frac{\tilde{\Delta}}{\tilde{\Delta} + \tilde{\Lambda}_{q^2}} + \ln \frac{\Gamma(\tilde{\Delta})}{\Gamma(\tilde{\Delta} + \tilde{\Lambda}_{q^2})} + \tilde{\Lambda}_{q^2} \ln \tilde{\Lambda}_{q^2} - \tilde{\Lambda}_{q^2}, \quad (24)$$

where Λ_{q^2} is a cutoff for q^2 , $\tilde{\Lambda}_{q^2} = \Lambda_{q^2}/(2\pi T)$ and $\tilde{\Delta} = \Delta/(2\pi T)$. In the limit $\tilde{\Delta} \ll 1$ and $\tilde{\Delta} \ll \tilde{\Lambda}_{q^2}$ Eq. (24) reduces to

$$\frac{(2\pi)^2}{u} \tilde{\Delta} = -\frac{1}{2} \ln \tilde{\Delta} - \tilde{\Delta} \ln \tilde{\Delta}. \quad (25)$$

We dropped the index in Λ_{q^2} as it is the only scale we use. In the limit $u \ln \tilde{\Delta} \gg 1$ the approximate solution of Eq. (25) is²⁸

$$\Delta = \pi T \frac{\ln(\ln \Lambda/2\pi T)}{\ln \Lambda/2\pi T}. \quad (26)$$

Hence, Δ vanishes faster than T as $T \rightarrow 0$. The contributions of the marginally irrelevant coupling are smaller than temperature (or energy) itself. As we shall now see, this also applies to the $T=0$ contributions to the Landau damping at the critical point, which is the main quantity of interest in this paper.

We perform a calculation of the damping rate at the $T=0$ QCP up to order $1/N$. At the saddle-point level ($1/N^0$), the propagator at the QCP reads $D(q, i\omega) = (|\omega| + q^2)^{-1}$.

054426-4

The polarization bubble $\Pi_0(q, i\omega)$ defined by Eq. (23) can then be calculated exactly. Details are given in Appendix C. Here we present the result

$$\begin{aligned}
 8\pi^2\Pi_0(q, i\omega) = & \frac{\pi^2}{4} - \frac{|\omega| + q^2}{q^2} \left(\ln \frac{|\omega| + \Lambda}{\Lambda} + 2 \ln \frac{|\omega| + q^2}{|\omega|} \right) \\
 & + 2 \ln \frac{|\omega| + \Lambda}{|\omega|} + \frac{s}{q^2} \ln \frac{|\omega| + q^2 + 2\Lambda + s}{|\omega| + q^2 + 2\Lambda - s} \\
 & - \text{Li}_2\left(\frac{q^2}{2|\omega| + q^2}\right) + \text{Li}_2\left(-\frac{q^2}{2|\omega| + q^2}\right) \\
 & + \text{Li}_2\left(\frac{q^2}{|\omega| + s}\right) - \text{Li}_2\left(-\frac{q^2}{|\omega| + s}\right) \\
 & + \text{Li}_2\left(\frac{q^2}{|\omega| - s}\right) - \text{Li}_2\left(-\frac{q^2}{|\omega| - s}\right), \quad (27)
 \end{aligned}$$

where $s = \sqrt{(|\omega| + q^2)^2 + 4q^2\Lambda}$ and $\text{Li}_2(x) = -\int_0^x dy \ln(1-y)/y$. The above expression has the following asymptotics at $\omega/\Lambda \rightarrow 0$, $q^2/\Lambda \rightarrow 0$:

$$\begin{aligned}
 4 - 2 \ln \frac{q^2}{\Lambda}, \quad \frac{|\omega|}{q^2} \rightarrow 0, \\
 2 + \frac{\pi^2}{4} - 2 \ln \frac{|\omega|}{\Lambda}, \quad \frac{q^2}{|\omega|} \rightarrow 0, \quad \frac{\omega^2}{q^2\Lambda} \rightarrow 0, \\
 -2 + \frac{\pi^2}{4} - 2 \ln \frac{|\omega|}{\Lambda}, \quad \frac{q^2}{|\omega|} \rightarrow 0, \quad \frac{q^2\Lambda}{\omega^2} \rightarrow 0. \quad (28)
 \end{aligned}$$

We use the explicit expression (27) into Eq. (22) and perform the frequency and momentum integrals numerically. The re-

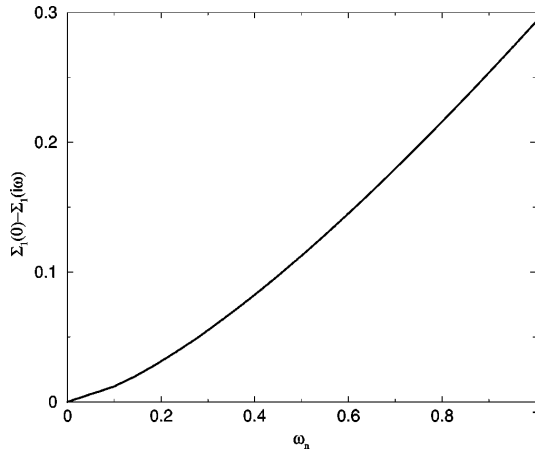


FIG. 3. Self-energy at the $d=2, z=2$ QCP, up to order $1/N$, as a function of (imaginary) frequency ω . The calculation is for $u/(2\pi)^3=5$, and ω is measured in units of the cutoff Λ .

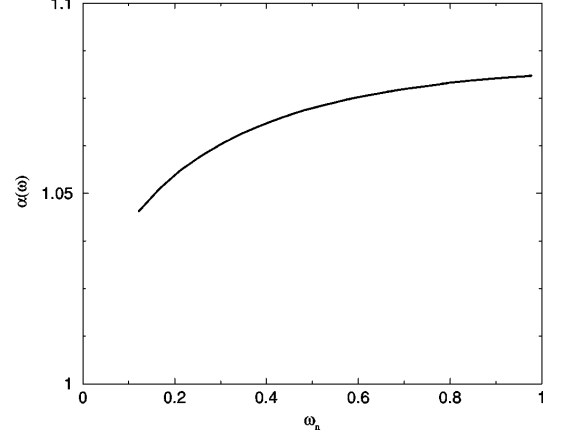


FIG. 4. Effective exponent $\alpha(\omega)$, as defined in the text, as a function of (imaginary) frequency ω . The parameters are as in Fig. 3.

sulting self-energy $\Sigma_1(q=0, i\omega)$ is plotted in Fig. 3. It is seen that the $1/N$ corrections to the damping rate are *less singular* than ω at low frequency. Alternatively, the corrections can be put in the form of an effective, scale-dependent exponent $\alpha(\omega)$, defined by $\alpha(\omega) = \omega \partial [\ln \chi^{-1}(i\omega)] / \partial \omega$ with $\chi^{-1}(i\omega) = |\omega| - \Sigma_1(q=0, i\omega) + \Sigma_1(q=0, i\omega=0)$ the $q=0$ dynamical susceptibility at the QCP. This effective exponent is plotted on Fig. 4: it is seen to be only weakly dependent on frequency in the range where it is displayed. Hence, the logarithmic corrections in the marginal case can be mimicked by a power law, but correspond to an effective exponent $\alpha > 1$, in contrast to the experimental observation $\alpha < 1$ for the two compounds mentioned above.

Incidentally, we would like to comment on the data analysis made in Ref. 6 in order to support ω/T scaling of the inelastic neutron scattering data in $\text{CeCu}_{5.9}\text{Au}_{0.1}$. To this aim, we perform a similar analysis on our analytical result, by plotting $T^\alpha \chi(\omega, T)$ versus ω/T (Fig. 5). In this plot, the frequency-dependent susceptibility at finite temperature and $q=0$ is approximated by $\chi(\omega, T)^{-1} \approx -i\omega + \Delta(T) - \Sigma_1(q=0, \omega) + \Sigma_1(q=0, \omega=0)$ [this approximation does not include the temperature dependence of the Bose functions in the calculations which would be required to obtain the correct damping coefficient, as is required to obtain Eq. (13)]. Such a scaling plot is attempted for a varying range of α , and the optimal value of the exponent is chosen such as to yield the best collapse,⁶ as measured by the standard deviation plotted in Fig. 6. It is seen that an excellent collapse is obtained with $\alpha \approx 1.09$. We emphasize that ω/T scaling, in a strict asymptotic sense, does apply here, but with a trivial Gaussian exponent and scaling function $T\chi(\omega, T) = i/\tilde{\omega}$ ($\tilde{\omega} = \omega/T$). The logarithmic corrections characteristic of the marginal case apparently mimic nontrivial scaling properties over quite an extended range of ω/T . This should serve as a warning for the interpretation of the experimental results.

We end this section by considering the *local approxima-*

PANKOV, FLORENS, GEORGES, KOTLIAR, AND SACHDEV

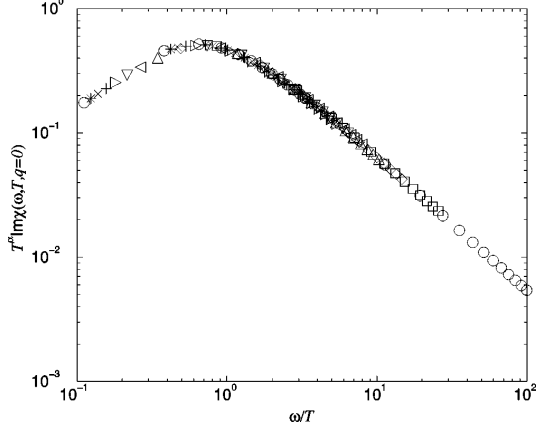
 PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)


FIG. 5. Scaling plot for $T^\alpha \text{Im} \chi(\omega, T, q=0)$ versus ω/T . The temperatures displayed are $T = .03 - .9\Lambda$. The choice $\alpha = 1.09$ provides a good collapse of the data over this frequency range. Different symbols correspond to different values of T .

tion to the damped ϕ^4 theory in the marginal case, up to order $1/N$. In a previous paper, Motome and two of us²⁰ have investigated the EDMFT approximation to the critical behavior of various models, and shown that this local approximation is quite satisfactory above the upper critical dimension (i.e., here for $d+z > 4$), when the quartic coupling is irrelevant. In this approach, all skeleton graphs are taken to be local. For arbitrary z and $d=2$, the local propagator at the $T=0$ QCP reads

$$D(i\omega) = \int \frac{qdq}{2\pi} \frac{1}{|\omega|^{\frac{2}{z}+q^2}} = \frac{1}{4\pi} \ln \left(\frac{\Lambda + |\omega|^{2/z}}{|\omega|^{2/z}} \right). \quad (29)$$

Performing the Fourier transform, this yields the asymptotic behavior at long (imaginary) time

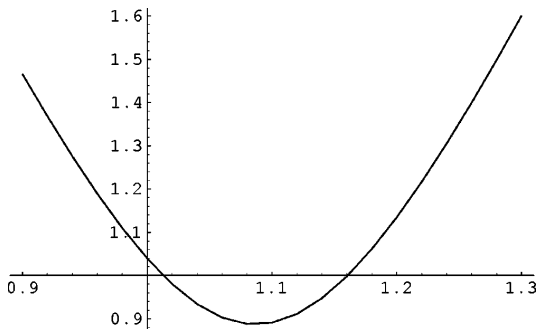


FIG. 6. Standard deviation $\sigma_{\ln(T^\alpha \chi)}$, measuring the quality of the ω/T collapse (Ref. 6), versus α .

$$\begin{aligned} D(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \frac{1}{4\pi} \ln \left(\frac{\Lambda + |\omega|^{2/z}}{|\omega|^{2/z}} \right) e^{-i\omega\tau} \\ &\approx \frac{1}{(2\pi)^2 |\tau|} \int_0^{+\infty} dx \ln x^{-2/z} \cos x \\ &= \frac{1}{4\pi z |\tau|}. \end{aligned} \quad (30)$$

The $1/N$ correction to the spin-fluctuation self-energy is

$$\Sigma_1(\tau) = \frac{2u^2}{N} D(\tau)^3 \approx \frac{1}{N} \frac{2u^2}{(4\pi)^3 z^3 |\tau|^3} \quad (31)$$

which corresponds to the following low-frequency behavior (with Λ_1 a cutoff of order 1):

$$\Sigma_1(i\omega) \approx \frac{1}{N} \frac{2u^2}{(4\pi)^3 z^3} \left(-\frac{3}{2} + \gamma - \ln \Lambda_1 + \ln |\omega| \right) \omega^2. \quad (32)$$

For real frequencies Eq. (31) corresponds to corrections to the Landau damping of the form $\text{Im} \Sigma_1(\omega + i0^+) \propto \omega^2 \text{sgn}(\omega)$. This is much smaller (by a factor of order ω , up to logarithms) than the corrections obtained from the direct calculation in $d=2$ detailed above (Fig. 3). Hence, we conclude that the local (EDMFT) approximation is not very reliable at the upper critical dimension (marginal case). As we shall see in the following section, a numerical solution of the EDMFT equations for the Kondo lattice using an approximate “impurity solver” based on the large- N expansion leads to a similar conclusion: only subdominant corrections to the Landau damping rate are generated instead of the anomalous (power-law-like) enhancement observed experimentally.

IV. “LOCALLY” CRITICAL POINT: SELF-CONSISTENT LARGE- N SOLUTION OF THE EDMFT EQUATIONS

A. EDMFT of the Kondo lattice and mapping onto a local spin-fluctuation model

It has been recently argued^{14,18} that the understanding of non-Fermi liquid behavior in heavy-fermion compounds close to a QCP requires a formalism in which electronic degrees of freedom and spin fluctuations can be treated on the same footing, at least as a starting point. This is a non-trivial task, which is however made easier in the context of the extended dynamical mean-field theory (EDMFT) (Refs. 15–17) of the Kondo lattice model, which we consider here.

Let us consider the Kondo lattice Hamiltonian with an explicit exchange coupling between localized spins, chosen to be Ising-like:

$$H = \sum_{k\sigma} \epsilon_k c_{k\sigma}^\dagger c_{k\sigma} + J_K \sum_{i\sigma\sigma'} \vec{S}_i \cdot c_{i\sigma}^\dagger \vec{\tau}_{\sigma\sigma'} c_{i\sigma'} + \sum_{i < j} I_{ij} S_i^z S_j^z. \quad (33)$$

054426-6

NON-FERMI-LIQUID BEHAVIOR FROM TWO-...

 PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)

In this expression, J_K is the (antiferromagnetic) Kondo coupling, and $\vec{\tau}$ stands for the Pauli matrices. EDMFT maps this model onto a local impurity model with effective action

$$S = - \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_\sigma [c_\sigma^\dagger(\tau) \mathcal{G}_0^{-1}(\tau - \tau') c_\sigma(\tau') + S^z(\tau) \chi_0^{-1}(\tau - \tau') S^z(\tau')] + \int_0^\beta d\epsilon J_K \sum_{\sigma\sigma'} \vec{S} \cdot c_\sigma^\dagger \vec{\tau}_{\sigma\sigma'} c_{\sigma'} . \quad (34)$$

Both $\mathcal{G}_0$ and χ_0 are effective “Weiss fields” which must be determined in such a way that the following self-consistency conditions hold:

$$G(i\omega_n) \equiv \langle c_\sigma^\dagger(i\omega_n) c_\sigma(i\omega_n) \rangle_S = \int d\epsilon \frac{\rho_0(\epsilon)}{i\omega_n - \Sigma_c(i\omega_n) - \epsilon} , \quad (35)$$

$$\chi(i\nu_n) \equiv \langle S^z(i\nu_n) S^z(-i\nu_n) \rangle_S = \int d\epsilon \frac{\rho_I(\epsilon)}{M(i\nu_n) - \epsilon} . \quad (36)$$

In this expression, $\Sigma_c(i\omega_n)$ and $M(i\nu_n)$ are, respectively, the fermionic and local spin self-energies calculated within the impurity problem (34), i.e.,

$$G^{-1}(i\omega_n) = \mathcal{G}_0^{-1}(i\omega_n) - \Sigma_c(i\omega_n) , \quad (37)$$

$$\chi^{-1}(i\nu_n) = -\chi_0^{-1}(i\nu_n) + M(i\nu_n) . \quad (38)$$

The densities of states ρ_0 and ρ_I associated, respectively, with the conduction band and to the spin interactions read $\rho_0(\epsilon) = \sum_k \delta(\epsilon - \epsilon_k)$, $\rho_I(\epsilon) = \sum_q \delta(\epsilon - I_q)$. The self-consistency conditions (35), (36) simply express that the impurity model Green’s functions and self-energies should coincide with their lattice counterpart (assuming momentum independence of the self-energies). They can be recast into a more compact form, relating directly the local correlation functions to the two Weiss fields appearing in the effective action (34):

$$G(i\omega_n) = \int d\epsilon \frac{\rho_0(\epsilon)}{i\omega_n + G^{-1}(i\omega_n) - \mathcal{G}_0^{-1}(i\omega_n) - \epsilon} , \quad (39)$$

$$\chi(i\nu_n) = \int d\epsilon \frac{\rho_I(\epsilon)}{\chi^{-1}(i\nu_n) + \chi_0^{-1}(i\nu_n) - \epsilon} . \quad (40)$$

The key question at this stage is whether the electronic degrees of freedom can be integrated out, particularly near the QCP. The local EDMFT framework allows one to handle this issue in a more controlled manner. Indeed, electronic degrees of freedom can be integrated out¹⁷ from the impurity model (34) using an expansion in the spin-flip part of the Kondo coupling in the manner of Anderson-Yuval-Hamann.^{29,30} This can be conveniently performed, for example, using bosonization methods.^{19,31,32} This leads to the following action for the spin degrees of freedom:

$$S = \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' S^z(\tau) [-\chi_0^{-1}(\tau - \tau') + K(\tau - \tau')] S^z(\tau') + \int_0^\beta d\tau \Gamma S^x . \quad (41)$$

In this expression, $K(\tau - \tau') \sim 1/(\tau - \tau')^2$ is a long-range interaction induced by the electronic modes. It corresponds to the bare Landau damping $[K(i\nu_n) = \kappa|\nu_n|$ at low frequency]. The coupling in front of the spin-flip term is proportional to the Kondo coupling $\Gamma \propto \tau_0 J_K$ (with τ_0 a short-time cutoff). Hence, the problem has been mapped onto a quantum Ising model in a transverse field with long range interactions.^{17,19,32}

B. Numerical solution based on the large- N approximation

This mapping has been used in order to perform analytical¹⁷ and numerical³² studies of the behavior at the QCP in mean-field models with random exchange couplings I_{ij} . It was demonstrated that this case is formally similar^{33,37} to the Hertz-Moriya-Millis theory of an antiferromagnetic QCP in $d=3$. Recently, Grempel and Si have analyzed the EDMFT theory of the QCP in the two-dimensional case using this mapping.¹⁹ Their claim is that anomalous Landau damping ($\propto \omega^\alpha$, $\alpha < 1$) and ω/T scaling can be demonstrated in this case. Here, we present a solution of this problem in which the local impurity problem is solved using a large- N method. In contrast to the claims of Ref. 19, we find that only subdominant corrections to the Landau damping are generated.

Following Ref. 17, we deal with the local action (41) for the transverse field Ising model by extending it to an N -component rotor model $\vec{n}$:

$$S = \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \left[\frac{(\partial_\tau \vec{n})^2}{g} + \lambda(\tau) (\vec{n}^2 - N) \right] + \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \vec{n}(\tau) [-\chi_0^{-1}(\tau - \tau') + K(\tau - \tau')] \vec{n}(\tau') . \quad (42)$$

In this expression, g plays a role similar to that of the transverse field in the original Ising model (disordering term). We define a self-energy correction for the local spin susceptibility $\chi(\tau) \equiv \langle S^z(0) S^z(\tau) \rangle$:

$$\chi(i\nu_n) = \frac{1}{\nu_n^2/g + K(i\nu_n) - \chi_0^{-1}(i\nu_n) - \Sigma(i\nu_n)} . \quad (43)$$

Let us first consider the problem at the saddle-point level ($N=\infty$), for a given Weiss function χ_0 . The self-energy is then frequency independent (as noted by Grempel and Si¹⁹) and is given by the saddle-point value of the Lagrange multiplier

$$\Sigma_0(i\nu_n) = -\lambda \quad (44)$$

such that

054426-7

PANKOV, FLORENS, GEORGES, KOTLIAR, AND SACHDEV

 PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)

$$\chi_{\infty}(\tau=0)=1. \quad (45)$$

In this expression, χ_{∞} is the local susceptibility at the saddle-point ($N=\infty$) level

$$\chi_{\infty}(i\nu_n) = \frac{1}{\nu_n^2/g + K(i\nu_n) - \chi_0^{-1}(i\nu_n) + \lambda}. \quad (46)$$

Both λ and χ_{∞} depend on the Weiss function χ_0 . We approximate the self-energy by its first two terms in the $1/N$ expansion

$$\Sigma(i\nu_n) \simeq \Sigma_0(i\nu_n) + \Sigma_1(i\nu_n) - \Sigma_1(i0), \quad (47)$$

$$\Sigma_1(\tau) = -\frac{2}{N} \Gamma(\tau) \chi_{\infty}(\tau), \quad (48)$$

$$\text{with } \Gamma(i\nu_n) = \frac{1}{\Pi(i\nu_n)} \text{ and } \Pi(\tau) = [\chi_{\infty}(\tau)]^2. \quad (49)$$

The EDMFT equations are thus solved by iterating (numerically) the following procedure. For a given $\chi_0(i\nu_n)$, the saddle-point quantities $\lambda = -\Sigma_0$ and χ_{∞} are computed by solving Eqs. (45), (46). Then, the self-energy is computed from Eqs. (47), (48), (49). This is inserted into the EDMFT self-consistency condition in order to obtain the local susceptibility

$$\chi(i\nu_n) = \int d\epsilon \frac{\rho_f(\epsilon)}{\nu_n^2/g + K(i\nu_n) - \Sigma(i\nu_n) - \epsilon}. \quad (50)$$

From this, an updated value of the Weiss function is obtained as $\chi_0^{-1}(i\nu_n) = \nu_n^2/g + K(i\nu_n) - \Sigma(i\nu_n) - \chi^{-1}(i\nu_n)$, and the procedure is iterated until convergence is reached.

The result of this numerical calculation for the (local) spin self-energy is displayed in Fig. 7. The behavior of the self-energy at low imaginary frequency is well fitted by $\Sigma_1(i\omega) \sim \omega^2 \ln|\omega|$ (inset) when one tunes the parameters to sit at criticality (Fig. 8). This corresponds to subdominant corrections to the Landau damping $\text{Im} \Sigma(\omega + i0^+) \propto \omega^2 \text{sgn}(\omega)$. These findings are in agreement with the expansion of the EDMFT equations for the ϕ^4 model at order $1/N$ discussed at the end of the previous section, and provide an independent check of this result. The method followed in the present section has been to use the large- N method as an approximate “impurity solver” for the local problem. It can be easily checked that if, instead, the equations used here are all expanded up to order $1/N$, the equations of the local approximation presented in the previous section are recovered.

V. CONCLUSION

We analyzed two of the approaches to a critical theory of the antiferromagnetic metal to paramagnetic metal in the

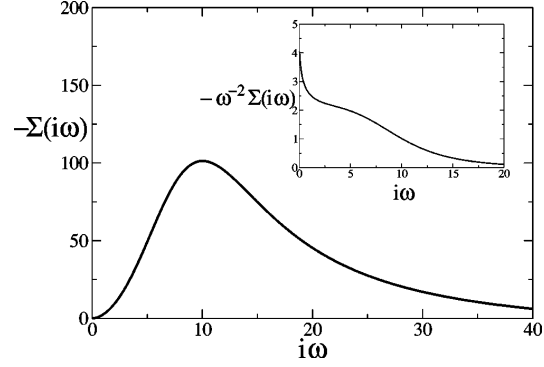


FIG. 7. Self-energy $\Sigma(i\omega)$ close to the critical point (at inverse temperature $\beta=500$ and $g=g_c=0.223$), as a function of imaginary frequency. For this calculation, we have set $N=2$, and used a flat density of states $\rho_f(\epsilon)$ of half-width equal to unity. Inset: plot of $\omega^{-2}\Sigma(i\omega)$, showing the logarithmic behavior of this quantity at small frequencies.

CeCu_{6-x}Au_x and YbRh₂Si₂ materials from the perspective of the antiferromagnetic spin fluctuations. In the context of the model of Rosch *et al.*⁵ we analyzed the corrections to mean field theory due to the marginally irrelevant fourth order coupling. We find that while there are logarithmic corrections to mean field theory which vanish as $1/\ln^2|\omega|$ the coefficient of this corrections is such that it can only be mimicked by a decreased Landau damping, in clear disagreement with experimental observations. In our view, this rules out this model, in spite of the fact that it can account nicely for many of the electronic properties of this systems.

We also analyze the “local” version of this model using the large- N expansion. Again in this case, we find that it is not possible to account for the anomalous frequency depen-

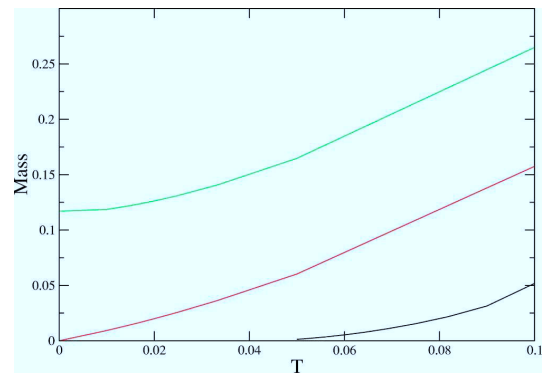


FIG. 8. Plot of the mass $\Sigma(i0)$ as a function of temperature, demonstrating the existence of a continuous transition at $T=0$ within our approximate solution of the EDMFT equations. From bottom to top: $g=0.1$ (ordered state), $g=0.223$ (critical at $T=0$), $g=0.3$ (disordered case).

dence of the damping coefficient. This is in disagreement with Ref. 19 but in agreement with a recent EDMFT study of the Anderson lattice model.³⁴

The anomalous damping has been recently observed in NMR measurements in both^{35,36} YbRh₂Si₂ and CeCu_{6-x}Au_x. While it has different temperature dependencies in each system, it is clearly enhanced above the Fermi-liquid temperature dependence. Possible resolution of this puzzle may require a better treatment of the effects of disorder or better treatments of models which retain the fermionic nature of the spin fluctuations as proposed by Coleman *et al.*¹⁸ and Si *et al.*¹⁴

ACKNOWLEDGMENTS

We thank D. Grempel and Q. Si for useful discussions and correspondence. The authors acknowledge the hospitality of

the Kavli Institute for Theoretical Physics (UCSB, Santa Barbara), where part of this work was performed and supported under Grant No. NSF-PHY99-07949 and NSF Grant No. DMR-0096462. We also acknowledge the support of an international collaborative grant from CNRS (PICS 1062).

APPENDIX A: COMPUTATION OF RG FLOW

The computations leading to the RG flow (6) are standard. Here we only provide some further details of the computation of the number c_2 , and of the constant c required to obtain the universal logarithmic correction in Eq. (9). These computations involve the $|\omega|$ term in the propagator in an essential and novel manner.

Repeating the standard field-theoretic derivation for the two-loop graph in Fig. 1 we have

$$I_2(q, i\omega=0) = \frac{u_0^2(N+2)}{18} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \int \frac{d^d q_1}{(2\pi)^d} \frac{d^d q_2}{(2\pi)^d} \frac{1}{(q_1^2 + |\omega_1|)(q_2^2 + |\omega_2|)} \frac{1}{[(\mathbf{q} + \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2)^2 + |\omega_1 + \omega_2|]} \\ = g^2 q^{2d-2} \left(-\frac{c_2}{2\epsilon} + \mathcal{O}(\epsilon^0) \right). \quad (\text{A1})$$

I_2 is to be evaluated for $d < 1$, where it is convergent, and the result analytically continued to near $d = 2$, where it is expected to have the small ϵ expansion shown on the RHS. The coefficient of the pole fixes the value of the constant c_2 .

Note that we are evaluating I_2 in an external momentum $\mathbf{q}$, and in $d = 2$ the pole on the RHS corresponds to the appearance of $q^2 \ln q$ term. In contrast, evaluation of $I_2(0, i\omega)$ (presented below) shows that no pole appears, and hence there is no $|\omega| \ln |\omega|$ term in $d = 2$. This absence of such a pole is, of course, the reason for the absence of an independent renormalization constant for the damping term noted below Eq. (5), and for the ω dependence of I_2 noted above Eq. (9). It is also responsible for the exponent identity $z = 2 - \eta$ for $d < 2$.

We now turn to the evaluation of I_2 in Eq. (A1) in an external momentum $\mathbf{q}$. First, we evaluate the integral over q_2 by the standard Feynman parameter method

$$I_2(q, 0) = \frac{u_0^2(N+2)\Gamma(2-d/2)}{18(4\pi)^{d/2}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \int \frac{d^d q_1}{(2\pi)^d} \int_0^1 dx \frac{1}{(q_1^2 + |\omega_1|)} \\ \times \frac{1}{[(\mathbf{q} + \mathbf{q}_1)^2 x(1-x) + |\omega_2|(1-x) + |\omega_1 + \omega_2|x]^{2-d/2}}. \quad (\text{A2})$$

Similarly, performing the integral over q_1 with a Feynman parameter y we obtain

$$I_2(q, 0) = \frac{u_0^2(N+2)\Gamma(3-d)}{18(4\pi)^d} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \int_0^1 dx [x(1-x)]^{\epsilon/2} \\ \times \int_0^1 dy y^{\epsilon/2} \frac{1}{[q^2 x(1-x)y(1-y) + |\omega_1 + \omega_2|x(1-x)(1-y) + |\omega_1|y(1-x) + |\omega_2|xy]^{1+\epsilon}}. \quad (\text{A3})$$

Now we perform the integral over ω_1 and ω_2 by using the useful formula

PANKOV, FLORENS, GEORGES, KOTLIAR, AND SACHDEV

 PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \frac{1}{[A+B|\omega_1|+C|\omega_2|+D|\omega_1+\omega_2|]^\sigma}$$

$$= \frac{4A^{2-\sigma}(B+C+D)\Gamma(\sigma-2)}{(B+C)(C+D)(B+D)\Gamma(\sigma)}. \quad (\text{A4})$$

The formula (A4) is derived by explicitly performing the integrals over $\omega_{1,2}$ over different regions in the $\omega_{1,2}$ plane delineated by changes in signs of ω_1 , ω_2 , and $\omega_1+\omega_2$. Note that Eq. (A4) is to be evaluated at $\sigma=1+\epsilon$. Consequently, we obtain from Eq. (A4) the factor $\Gamma(\sigma-2)=\Gamma(-1+\epsilon)$

$=-1/\epsilon+\mathcal{O}(\epsilon^0)$, which gives us the requisite pole in ϵ appearing on the RHS of Eq. (A1). So we may safely set $d=2$ in the remaining terms in Eq. (A3). In this manner, combining Eqs. (A1), (A3), and (A4) we obtain

$$c_2 = \frac{(N+2)}{36} \int_0^1 dx \int_0^1 dy \frac{(1-y)[x(1-x)(1-y)+y(1-x)+xy]}{[x(1-y)+y][(1-x)(1-y)+y]}$$

$$= \frac{(N+2)(12-\pi^2)}{144}. \quad (\text{A5})$$

Let us now present a few details of the evaluation of $I_2(0,i\omega)$. In this case, Eq. (A3) is replaced by

$$I_2(0,i\omega) = \frac{u_0^2(N+2)\Gamma(3-d)}{18(4\pi)^d} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \int_0^1 dx [x(1-x)]^{\epsilon/2}$$

$$\times \int_0^1 dy y^{\epsilon/2} \frac{1}{[|\omega+\omega_1+\omega_2|x(1-x)(1-y)+|\omega_1|y(1-x)+|\omega_2|xy]^{1+\epsilon}}. \quad (\text{A6})$$

Now, instead of Eq. (A4), we need the following integral:

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \frac{1}{[A|\omega_1|+B|\omega_2|+C|\omega+\omega_1+\omega_2|]^\sigma}$$

$$= \frac{4|\omega|^{2-\sigma}ABC\Gamma(\sigma-2)}{\Gamma(\sigma)} \left[\frac{A^{1-\sigma}}{(A^2-B^2)(A^2-C^2)} + \frac{B^{1-\sigma}}{(B^2-A^2)(B^2-C^2)} + \frac{C^{1-\sigma}}{(C^2-A^2)(C^2-B^2)} \right]. \quad (\text{A7})$$

As noted below Eq. (A4), we need to evaluate Eq. (A7) at $\sigma=1+\epsilon$ and pick out a possible pole in ϵ . Indeed, a possible pole does appear to be present in the $\Gamma(\sigma-2)$ prefactor in

Eq. (A7). However, careful evaluation shows that the residue of such a pole vanishes, and Eq. (A7) in fact has a smooth $\sigma \rightarrow 1$ limit:

$$\lim_{\sigma \rightarrow 1} (A7) = 4ABC|\omega| \left[\frac{\ln A}{(A^2-B^2)(A^2-C^2)} + \frac{\ln B}{(B^2-A^2)(B^2-C^2)} + \frac{\ln C}{(C^2-A^2)(C^2-B^2)} \right]. \quad (\text{A8})$$

The $\epsilon \rightarrow 0$ limit of the remaining terms in Eq. (A6) is straightforward, and this establishes the claimed absence of a $|\omega|\ln|\omega|$ term in $I_2(0,i\omega)$ in $d=2$. Evaluating the constant c in $I_2(0,i\omega)=I_2(0,0)-cg^2|\omega|$ we obtain

$$c = \frac{(N+2)}{36} \mathcal{P} \int_0^1 dx \int_0^1 dy \frac{x^2(1-y)}{(1-2x)[y^2-x^2(1-y)^2]} \ln\left(x\frac{1-y}{y}\right) = \frac{(N+2)[6\pi^2\ln 2 - 11\zeta(3)]}{1728}. \quad (\text{A9})$$

We performed integrations in Eq. (A9) by changing variables to $x'=x$, $y'=x(1-y)/y$ and integrating first over x' and then over y' .

APPENDIX B: GAP EQUATION

In this appendix we derive the gap equation Eq. (24). We need to evaluate

$$\Sigma_0(T) = -uT \sum_{\omega_n} \int \frac{qdq}{2\pi} D(q,i\omega)$$

$$= \frac{1}{4\pi} uT \sum_{\omega_n} \ln \frac{|\omega_n| + \Delta}{|\omega_n| + \Delta + \Lambda_{q^2}}. \quad (\text{B1})$$

054426-10

NON-FERMI-LIQUID BEHAVIOR FROM TWO- . . .

 PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)

We consider a q^2 cutoff Λ_q^2 , which from now on we denote as Λ , and a frequency cutoff $\Lambda_\omega \in 2\pi nT$ which is to be taken to infinity. For this choice of the sharp cutoff Λ_ω one can show

$$S_1(T) = \sum_{-\Lambda_\omega < \omega_n < \Lambda_\omega} \ln \frac{|\omega_n| + \Delta}{|\omega_n| + \Delta + \Lambda_q^2} \\ = \ln \frac{\tilde{\Delta} + \tilde{\Lambda}}{\tilde{\Delta}} + 2 \ln \frac{\Gamma(\tilde{\Delta} + \tilde{\Lambda})\Gamma(\tilde{\Delta} + \tilde{\Lambda}_\omega)}{\Gamma(\tilde{\Delta})\Gamma(\tilde{\Delta} + \tilde{\Lambda} + \tilde{\Lambda}_\omega)}, \quad (\text{B2})$$

where $\tilde{\Lambda} = \Lambda/(2\pi T)$, $\tilde{\Lambda}_\omega = \Lambda_\omega/(2\pi T)$, and $\tilde{\Delta} = \Delta/(2\pi T)$. Taking the limit $\tilde{\Lambda}_\omega \rightarrow \infty$ we have

$$S_1(T) = \ln \frac{\tilde{\Delta} + \tilde{\Lambda}}{\tilde{\Delta}} + 2 \ln \frac{\Gamma(\tilde{\Delta} + \tilde{\Lambda})}{\Gamma(\tilde{\Delta})} - 2\tilde{\Lambda} \ln \tilde{\Lambda}_\omega. \quad (\text{B3})$$

The finite T self-energy is $\Sigma_0(T) = (1/4\pi)uTS_1(T)$, and the zero temperature $\Sigma_0(T=0)$ is

$$\Sigma_0(T=0) = \frac{1}{4\pi}uTS_1(T)|_{T \rightarrow 0} = \frac{u\Lambda}{(2\pi)^2} \left(\ln \frac{\Lambda}{\Lambda_\omega} - 1 \right). \quad (\text{B4})$$

Noticing that $\Delta(T) = \Sigma_0(T=0) - \Sigma_0(T)$ we write Eq. (24).

APPENDIX C: POLARIZATION BUBBLE Π_0

Here we show in detail how we compute $\Pi_0(q, i\omega)$ in $d=2$ with $z=2$. We use a finite cutoff $\Lambda_q^2 \equiv \Lambda$ for q^2 in a momentum integration, and we use $\Lambda_\omega \rightarrow \infty$ as a frequency cutoff. We use the Feynman parametrization to find

$$\Pi_0(q, i\omega) = \int \frac{d^2p}{(2\pi)^2} \frac{d\nu}{2\pi} D(p, i\nu) D(p+q, i\nu + i\omega) \\ = \frac{1}{4\pi} \int_0^1 dx \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\nu}{2\pi} \{ l(x, q, \nu, i\omega)^{-1} \\ - [\Lambda + l(x, q, \nu, i\omega)]^{-1} \}, \quad (\text{C1})$$

where $l(x, q, \nu, i\omega) = x(1-x)q^2 + x|\nu| + (1-x)|\nu + \omega|$ and $D^{-1} = |\omega| + q^2$ at the QCP. Integrating out frequency we get

$$\Pi_0(q, i\omega) = \frac{1}{8\pi^2} \mathcal{P} \int_0^1 dx \frac{4x}{1-2x} \left\{ \ln[(1-x)(q^2x + |\omega|)] \right. \\ \left. - \ln \left[\left(\frac{1}{2q^2} (q^2 - |\omega| + s) - x \right) \right. \right. \\ \left. \left. \times \left(q^2x + \frac{1}{2}(|\omega| - q^2 + s) \right) \right] \right\}, \quad (\text{C2})$$

where $s = \sqrt{(|\omega| + q^2)^2 + 4q^2\Lambda}$. It is easy to show

$$\mathcal{P} \int_0^1 dx \frac{4x}{1-2x} \ln(ax+b) = 2 - 2\frac{a+b}{a} \ln \frac{a+b}{b} - 2 \ln b \\ - \text{Li}_2 \left(\frac{a}{a+2b} \right) + \text{Li}_2 \left(-\frac{a}{a+2b} \right) \quad (\text{C3})$$

for $a+b>0$ and $b>0$. From Eqs. (C2) and (C3), after simple algebra, Eq. (27) follows.

- ¹For a recent review, see G.R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **73**, 797 (2001).
- ²H.v. Löhneysen, T. Pietrus, G. Portisch, H.G. Schlager, A. Schroder, M. Sieck, and T. Trappmann, Phys. Rev. Lett. **72**, 3262 (1994).
- ³A. Schroder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H.v. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman, Nature (London) **407**, 351 (2000).
- ⁴O. Trovarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F.M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, G. Sparn, and F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **85**, 626 (2000).
- ⁵A. Rosch, A. Schröder, O. Stockert, and H.v. Löhneysen, Phys. Rev. Lett. **79**, 159 (1997).
- ⁶A. Schröder, G. Aeppli, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman, Phys. Rev. Lett. **80**, 5623 (1998).
- ⁷O. Stockert, H.v. Löhneysen, A. Rosch, N. Pyka, and M. Loewenhaupt, Phys. Rev. Lett. **80**, 5627 (1998).
- ⁸J. Hertz, Phys. Rev. B **14**, 1165 (1976).
- ⁹T. Moriya and J. Kawabata, J. Phys. Soc. Jpn. **34**, 639 (1973); **35**, 669 (1973).
- ¹⁰A.J. Millis, Phys. Rev. B **48**, 7183 (1993).
- ¹¹For a review, see: S. Sachdev, *Quantum Phase Transitions* (Cam-

bridge University Press, Cambridge, 1999).

- ¹²I. Paul and G. Kotliar, Phys. Rev. B **64**, 184414 (2001).
- ¹³A. Abanov and A. Chubukov, Phys. Rev. Lett. **84**, 5608 (2000).
- ¹⁴Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent, and L. Smith, Nature (London) **413**, 804 (2001).
- ¹⁵Q. Si and J.L. Smith, Phys. Rev. Lett. **77**, 3391 (1996); Phys. Rev. B **61**, 5184 (2000).
- ¹⁶H. Kajueter and G. Kotliar (unpublished); H. Kajueter, Ph.D. thesis, Rutgers University, New Brunswick, NJ, 1996.
- ¹⁷A.M. Sengupta and A. Georges, Phys. Rev. B **52**, 10 295 (1995).
- ¹⁸P. Coleman and C. Pépin, Acta Phys. Pol. B **34**, 691 (2003).
- ¹⁹D.R. Grempel and Q. Si, Phys. Rev. Lett. **91**, 026401 (2003).
- ²⁰S. Pankov, G. Kotliar, and Y. Motome, Phys. Rev. B **66**, 045117 (2002).
- ²¹B. Spivak, A. Zyuzin, and M. Hruska, Phys. Rev. B **64**, 132502 (2001).
- ²²See, e.g., J. Zinn-Justin, *Quantum Field and Critical Phenomena* (Clarendon Press, Oxford, 1989), in particular Chap. 22.
- ²³J. Sak, Phys. Rev. B **8**, 281 (1973).
- ²⁴A. Gamba, M. Grilli, and C. Castellani, Nucl. Phys. B **556**, 463 (1999).
- ²⁵A. Aharony, in *Phase Transitions and Critical Phenomena*, edited

PANKOV, FLORENS, GEORGES, KOTLIAR, AND SACHDEV

PHYSICAL REVIEW B **69**, 054426 (2004)

- by C. Domb and M. S. Green (Academic, London, 1976), Vol. 6.
- ²⁶D. Boyanovsky and J.L. Cardy, Phys. Rev. B **26**, 154 (1982).
- ²⁷S. Sachdev, Phys. Rev. B **55**, 142 (1997).
- ²⁸S. Sachdev, A.V. Chubukov, and A. Sokol, Phys. Rev. B **51**, 14 874 (1995).
- ²⁹P.W. Anderson, G. Yuval, and D.R. Hamann, Phys. Rev. B **1**, 4464 (1970).
- ³⁰S. Chakravarty and J. Rudnick, Phys. Rev. Lett. **75**, 501 (1995).
- ³¹G. Kotliar and Q. Si, Phys. Rev. B **53**, 12 373 (1996).
- ³²D.R. Grempel and M.J. Rozenberg, Phys. Rev. B **60**, 4702 (1999).
- ³³It is not yet clear at this stage whether the EDMFT approach to the antiferromagnetic Kondo lattice in the nonrandom case follows the conventional Hertz-Millis behavior, or undergoes a first-order transition from the Fermi liquid to the ordered phase. A large- N study for an $SU(N)$ -symmetric exchange coupling (in contrast to the Ising case studied here) provides indications in favor of the latter possibility (Ref. 35).
- ³⁴P. Sun and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **91**, 037209 (2003).
- ³⁵K. Ishida, K. Okamoto, Y. Kawasaki, Y. Kitaoka, O. Trovarelli, C. Geibel, and F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **89**, 107202 (2002).
- ³⁶R.E. Walstedt, H. Kojima, N. Butch, and N. Bernhoeft, Phys. Rev. Lett. **90**, 067601 (2003).
- ³⁷S. Burdin, M. Grilli, and D. Grempel, Phys. Rev. B **67**, 121104 (2003).

Article 7

Phys. Rev. Lett. **87**, 277203 (2001)

Dynamical Mean-Field Theory of Resonating-Valence-Bond Antiferromagnets

Antoine Georges, Rahul Siddharthan, and Serge Florens

*Laboratoire de Physique Théorique, Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France
and Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, Bât. 510, 91405 Orsay, France*

(Received 25 June 2001; published 13 December 2001)

We propose a theory of the spin dynamics of frustrated quantum antiferromagnets, which is based on an effective action for a plaquette embedded in a self-consistent bath. This approach, supplemented by a low-energy projection, is applied to the Kagomé antiferromagnet. We find that a spin-liquid regime extends to very low energy, in which local correlation functions have a slow decay in time, well described by power-law behavior and ω/T scaling of the response function: $\chi''(\omega) \propto \omega^{-\alpha} F(\omega/T)$.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.87.277203

PACS numbers: 75.10.Jm, 75.10.Nr, 75.40.Gb

The possibility of frustrated quantum antiferromagnets (QAF) having a resonating-valence-bond (RVB) ground state, that is, a superposition of states where all spins are paired into singlets, was suggested many years ago [1]; such a ground state has neither long-range spin order (e.g., Néel order) nor spin-Peierls order (an ordered arrangement of these singlet pairs). Recently, convincing evidence has been given that some frustrated two-dimensional QAF indeed have RVB physics [2,3]. In particular, numerical studies [2] of the spin-half Heisenberg QAF on the Kagomé lattice reveal that the model has no long-range order and displays a very small gap to magnetic (triplet) excitations (estimated to be of order $J/20$). Moreover, this gap is filled with an exponential number of singlet excitations, suggesting a possible continuum in the thermodynamic limit, and a large low-temperature entropy, in agreement with the RVB picture. We also note, though this is seldom emphasized, that the results of [2] suggest a correspondingly large number of triplet states immediately above the gap. This may be expected, since in any valence-bond component of an RVB state, one can replace any singlet pair by a triplet pair and continue to have an eigenstate of S . Resonance between such states would lower the excitation energy to much below J .

These considerations suggest that, in a temperature range above the triplet gap, the spin correlations have a rapid decay in space, but a slow decay in time due to the large density of triplet excited states. Equivalently, the dynamical susceptibility $\chi(\vec{q}, \omega)$ would not display a narrow peak around a specific ordering wave vector, but $\chi''(\vec{q}, \omega)$ would have weight at low frequency, characteristic of a spin liquid. Indeed, recent inelastic neutron scattering studies [4] on the $S = 3/2$ Kagomé slab compound $\text{SrCr}_9\text{Ga}_{12-9p}\text{O}_{19}$ (SCGO) reveal such behavior above the freezing temperature ($T \geq 4$ K). The only relevant energy scale in this spin-liquid regime is apparently set by the temperature itself, with $\chi''_{\text{loc}} \equiv \sum_{\vec{q}} \chi''(\vec{q}, \omega)$ obeying scaling behavior $\chi''_{\text{loc}} \sim \omega^{-\alpha} F(\omega/T)$ with $\alpha \approx 0.4$, corresponding to a slow decay in time of the local dynamical correlations $\langle S(x, 0)S(x, t) \rangle \sim 1/t^{1-\alpha} \sim 1/t^{0.6}$.

We observe that the uniform ($\vec{q} = \vec{0}$) susceptibility in this regime is also well fitted by $\chi \propto T^{-0.4}$.

In this Letter, we introduce a novel theoretical approach to the spin dynamics in the spin-liquid regime of frustrated QAF, which focuses on short-range spin correlations only. This approach draws inspiration from the dynamical mean-field theory (DMFT) of itinerant fermion models [5], and some of its extensions [5–10]. Our method is fairly general but is applied here to the concrete case of the spin-half Kagomé QAF. The determination of on-site and nearest-neighbor dynamical spin correlations is mapped onto the solution of a model of quantum spins on a triangular plaquette coupled to a self-consistent bath. (A single-site approach is not adequate, since the essential physics of singlet formation involves at least nearest-neighbor sites.) By using a projection onto the low-energy sector of this model, we demonstrate that, in a temperature range extending down to $T \ll J$, a slow (power-law) decay of temporal correlations is found.

We view the Kagomé lattice as a triangular superlattice of up-pointing triangular plaquettes (Fig. 1). Sites are labeled by an index $a = 1, 2, 3$ within a plaquette and by a triangular superlattice index I numbering the plaquette. We denote by $\chi_{ab}(\vec{q}, \tau - \tau')$ the Fourier transform of the dynamical spin correlation function $\frac{1}{3} \langle \vec{S}_{a,I}(\tau) \cdot \vec{S}_{b,I'}(\tau') \rangle$ with respect to the plaquette coordinates I, I' ($\vec{q}$ is a vector of the supercell Brillouin zone). Our approach relies on approximating the correlation function by

$$\chi(\vec{q}, i\nu_n)_{ab}^{-1} = J_{ab}(\vec{q}) + \mathcal{M}_{ab}(i\nu_n). \quad (1)$$

Here, $\nu_n \equiv 2n\pi/\beta$ is a bosonic Matsubara frequency, and all quantities are matrices in the internal plaquette indices (a, b) . $J_{ab}(\vec{q})$ is the supercell Fourier transform of the exchange couplings. $\mathcal{M}_{ab}$ is a measure of how much the correlation function differs from that of a Gaussian model, for which $\chi = J^{-1}$, and hence plays the role of a spin “self-energy” matrix for the QAF. Obviously, the key assumption made in (1) is that the $\vec{q}$ dependence of this self-energy can be neglected. This approximation, which is

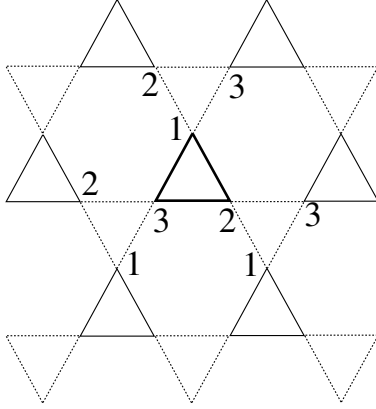


FIG. 1. The Kagomé lattice, viewed as an up-pointing cluster (bold) embedded in a network of similar clusters, which is approximated in the DMFT approach by a self-consistent bath.

likely to be reasonable when spatial correlations are short ranged, is analogous to the assumption of a momentum-independent self-energy made in the DMFT of correlated fermion models. Here, however, the DMFT concept is extended on two accounts: the local ansatz is made on the spin correlation function rather than on a single-fermion quantity, and a plaquette rather than a single site is considered. Extensions of DMFT to clusters [5–7] and to (spin or charge) response functions [8–10] have been previously considered separately in different contexts. Combining them is a unique aspect of our approach, which is necessary to capture the dynamical aspects of inter-site singlet formation at the heart of spin-liquid behavior.

In order to calculate the dynamical self-energy matrix $\mathcal{M}_{ab}(i\nu_n)$, an effective action involving only the spins of a single triangular plaquette is introduced, which reads

$$S = S_B + \frac{1}{2} J \sum_{a \neq b} \int_0^\beta d\tau \tilde{S}_a \cdot \tilde{S}_b + \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau d\tau' \sum_{ab} D_{ab}(\tau - \tau') \tilde{S}_a(\tau) \cdot \tilde{S}_b(\tau'), \quad (2)$$

in which S_B denote Berry phase terms. $D_{ab}(\tau - \tau')$ is a retarded interaction, generated by integrating out all spins outside the plaquette. Higher order interactions are also induced in this process, which have been neglected in (2). Equivalently, one can view the rest of the lattice as an external bath which couples to the spins in the cluster

through time-dependent external fields with a Gaussian correlator D_{ab} . The latter will be determined by a self-consistency requirement, which stipulates that the correlation functions on a plaquette calculated from the above action $[\chi_{ab}(\tau - \tau') \equiv \frac{1}{3} \langle \tilde{S}_a(\tau) \cdot \tilde{S}_b(\tau') \rangle_S]$ involve the same self-energy as the entire lattice. This reads $\chi_{ab}^{-1}(i\nu_n) = J\Delta_{ab} + D_{ab}(i\nu_n) + \mathcal{M}_{ab}(i\nu_n)$, where $J\Delta_{ab} \equiv J(1 - \delta_{ab})$ is the matrix of nearest-neighbor couplings on the cluster. Inserting this relation for the self-energy into (1) and imposing that $\sum_{\vec{q}} \chi_{ab}(\vec{q}) = \chi_{ab}$ lead to the final form of the self-consistency requirement

$$\chi_{ab}(i\nu_n) = \sum_{\vec{q}} [J(\vec{q}) - J\Delta + \chi^{-1}(i\nu_n) - D(i\nu_n)]_{ab}^{-1}. \quad (3)$$

We note that the matrix $J(\vec{q})_{ab} - J\Delta_{ab}$ involves only the exchange constants linking together different (up-pointing) triangular plaquettes. In the limit where these interplaquette couplings vanish while the internal ones are kept fixed (decoupled triangles), our approach becomes exact since (3) implies $D_{ab} = 0$ and (2) reduces to the action associated with the Heisenberg model on a single triangle. We also note that the above DMFT equations can be derived from a Baym-Kadanoff formalism in which a functional of the correlation function and self-energy matrix is introduced in the form

$$\Omega[\chi, \mathcal{M}] = \frac{1}{2} \text{Tr} \ln[\mathcal{M} + J] - \frac{1}{2} \text{Tr}[\chi \mathcal{M}] + \Phi[\chi]. \quad (4)$$

The stationarity conditions $\frac{\delta \Omega}{\delta \chi} = \frac{\delta \Omega}{\delta \mathcal{M}} = 0$ lead to the above equations when the exact functional Φ is approximated by its value for a single triangular plaquette. The free energy of the model can thus be calculated in the DMFT approach by inserting the self-consistent values of χ and $\mathcal{M}$ into (4). Alternatively, a functional of the correlation function only can be used, along the lines of Ref. [9].

In a phase with unbroken translational invariance, the matrix $\chi_{ab}(i\nu_n)$ in fact reduces to two elements: the local susceptibility $\chi_{\text{loc}} = \chi_{aa}$ and the nearest-neighbor one $\chi_{\text{nn}} = \chi_{ab}$ ($a \neq b$) (and similarly for D_{ab}). It is actually convenient to use the following linear combinations (proportional to the eigenvalues of the χ_{ab} and D_{ab} matrices): $\chi_s = 3(\chi_{\text{loc}} + 2\chi_{\text{nn}})$, $\chi_m = 3(\chi_{\text{loc}} - \chi_{\text{nn}})$, $D_s = \frac{1}{3}(D_{\text{loc}} + 2D_{\text{nn}})$, and $D_m = \frac{1}{3}(D_{\text{loc}} - D_{\text{nn}})$. Introducing the corresponding self-energies $\mathcal{M}_s(i\nu_n) \equiv 3/\chi_s(i\nu_n) - 3D_s(i\nu_n)$, $\mathcal{M}_m(i\nu_n) \equiv 3/\chi_m(i\nu_n) - 3D_m(i\nu_n)$, straightforward but tedious algebra allows us to recast (3) in the form of two scalar equations:

$$\frac{\chi_s}{3} = \int \frac{\mathcal{M}_m + J - \frac{2}{3} J\epsilon}{\mathcal{M}_s(\mathcal{M}_m + J) - 2J^2 - \frac{2}{3}(\mathcal{M}_s - \mathcal{M}_m)J\epsilon} \rho(\epsilon) d\epsilon, \quad (5)$$

$$\frac{\chi_m}{3} = \int \frac{\mathcal{M}_s \mathcal{M}_m - J^2 + \frac{1}{3} J(2\mathcal{M}_m - \mathcal{M}_s)J\epsilon}{(\mathcal{M}_m - J)[\mathcal{M}_s(\mathcal{M}_m + J) - 2J^2 - \frac{2}{3}(\mathcal{M}_s - \mathcal{M}_m)J\epsilon]} \rho(\epsilon) d\epsilon.$$

Here, ϵ stands for $\cos q_1 + \cos q_2 + \cos q_3$, where the q_i are components of $\vec{q}$ along the three directions of the triangular

lattice ($q_1 + q_2 + q_3 = 0$), and $\rho(\epsilon)$ is the corresponding density of states. The $\vec{q}$ summation in (3) simplifies into an ϵ integration in (5).

Equations (2) and (5) entirely define the plaquette-DMFT approach introduced here, and one could embark at this stage into a numerical determination of the two key dynamical quantities $\chi_{\text{loc}}(\tau)$ and $\chi_{\text{nn}}(\tau)$ using, e.g., a generalization of the quantum Monte Carlo algorithm recently introduced in [11] in the context of quantum spin glasses. Instead, we shall gain further insight into the problem by making use of a projection onto the low-energy sector of the Hilbert space [12]. Interesting insights into the low-energy excited states of the singlet sector have been recently obtained by Mila and Mambrini starting from the limit of decoupled up-pointing triangles [13,14]. Each such triangle has a fourfold degenerate ground state with spin $S = 1/2$ and a fourfold degenerate excited state with spin $S = 3/2$. Hence the lattice of decoupled triangles has an exponentially large number of ground states, equal to $4^{N_s/3}$. The physical picture of [13,14] is

that the degenerate ground state broadens into a band as the intertriangle coupling is turned on. In the following, we shall project the DMFT equations onto the low-energy Hilbert space corresponding to the $S = 1/2$ sector of each triangle. This amounts to first diagonalizing the single-plaquette Hamiltonian (neglecting D_{ab}) and then rewriting the retarded term in the action (2) in this low-energy sector. To this end, it is convenient to follow [12,13] and choose as a basis of the fourfold degenerate ground state the eigenvectors of the two following operators: the spin-1/2 operator corresponding to the total spin $\vec{S}$ in a plaquette, and a doublet of Pauli matrices $\vec{T} = (T^x, T^y)$ with the meaning of a plaquette chirality operator. In terms of those, the low-energy projection of the three spin operators in a plaquette reads (with $\omega \equiv \exp i2\pi/3$ and for $a = 1, 2, 3$)

$$\vec{S}_a^{\text{low}} = \frac{1}{3} \vec{S} [1 - 2\omega^{1-a} T^- - 2\omega^{a-1} T^+]. \quad (6)$$

The low-energy projection of the action (2) is then easily obtained as

$$S_{\text{low}} = S_B + \int_0^\beta d\tau d\tau' \left[\frac{1}{2} D_s(\tau - \tau') + D_m(\tau - \tau') \vec{T}(\tau) \cdot \vec{T}(\tau') \right] \vec{S}(\tau) \cdot \vec{S}(\tau'), \quad (7)$$

where D_s and D_m are as defined earlier. It turns out that χ_s and χ_m have simple interpretations as the “total spin” and “mixed” correlation functions:

$$\begin{aligned} \chi_s(\tau - \tau') &\equiv \frac{1}{3} \langle \vec{S}(\tau) \cdot \vec{S}(\tau') \rangle, \\ \chi_m(\tau - \tau') &\equiv \frac{1}{3} \langle \vec{S}(\tau) \cdot \vec{S}(\tau') \vec{T}(\tau) \cdot \vec{T}(\tau') \rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

To solve the local quantum problem defined by (7), we use an approximate technique that has proven successful in recent studies of quantum spin-glass models [10] and of impurities in quantum antiferromagnets [15]. We introduce two doublets of spin-1/2 fermions, $(s_\uparrow, s_\downarrow)$ and $(t_\uparrow, t_\downarrow)$, subject to the constraints, $s_\uparrow^\dagger s_\uparrow + s_\downarrow^\dagger s_\downarrow = t_\uparrow^\dagger t_\uparrow + t_\downarrow^\dagger t_\downarrow = 1$, in order to represent the operators $\vec{S}$ and $\vec{T}$ as $S^+ = s_\uparrow^\dagger s_\downarrow$, $S^- = s_\downarrow^\dagger s_\uparrow$, $S^z = (s_\uparrow^\dagger s_\uparrow - s_\downarrow^\dagger s_\downarrow)/2$; $T^+ = t_\uparrow^\dagger t_\downarrow$, $T^- = t_\downarrow^\dagger t_\uparrow$. The interacting fermion problem corresponding to (7) is then solved in the self-consistent Hartree approximation. Also, the local constraint is approximated by its average (the associated Lagrange multiplier is zero due to particle-hole symmetry). Introducing the Green's functions G_s and G_t for the two fermion fields and defining self-energies by $G_s^{-1}(i\omega_n) = i\omega_n - \Sigma_s(i\omega_n)$, $G_t^{-1}(i\omega_n) = i\omega_n - \Sigma_t(i\omega_n)$ [with $\omega_n = (2n+1)\pi/\beta$ a fermionic Matsubara frequency], yields the imaginary-time equations:

$$\begin{aligned} \Sigma_s(\tau) &= -\frac{3}{8} D_s(\tau) G_s(\tau) + 3D_m(\tau) G_s(\tau) G_t(\tau) G_t(-\tau), \\ \Sigma_t(\tau) &= 3D_m(\tau) G_t(\tau) G_s(\tau) G_s(-\tau). \end{aligned} \quad (9)$$

Then the local problem [for a given bath (D_s, D_m)] reduces to two coupled nonlinear integral equations. The correlation functions are given by

$$\begin{aligned} \chi_s(\tau) &= -\frac{1}{2} G_s(\tau) G_s(-\tau), \\ \chi_m(\tau) &= 2G_s(\tau) G_s(-\tau) G_t(\tau) G_t(-\tau). \end{aligned} \quad (10)$$

In practice, we use the following algorithm: we start with an initial guess for the bath $D_{s,m}$, and obtain the Green's functions by iteration of Eq. (9). We can then calculate the susceptibilities from (10), as well as the self-energies $\mathcal{M}_{s,m}$. Inserting the latter into (5) yields new $\chi_{s,m}$ and, in turn, the new baths $D_{s,m}^{\text{new}}(i\nu_n) = -\mathcal{M}_{s,m}(i\nu_n)/3 + 1/\chi_{s,m}(i\nu_n)$.

We now discuss our findings when solving these coupled equations numerically. The first key observation is that a paramagnetic solution can be stabilized down to the lowest temperature we could reach, with no sign of long-range ordering intervening. Long-range order is associated with a diverging eigenvalue of $\chi_{ab}(\vec{q})$ for some $\vec{q}$ and hence, within our scheme, to a vanishing denominator in (5), which we never observe [16]. In Fig. 2, we display our results for the temperature dependence of the local (i.e., on-site, or $\vec{q}$ -integrated) susceptibility $\chi_{\text{loc}}(T) = \int_0^\beta \chi_{\text{loc}}(\tau) d\tau$. At high temperatures, $\chi_{\text{loc}} \propto 1/T$ obeys Curie's law. Below $T \approx 0.5J$, the effective Curie constant decreases with decreasing T , indicating gradual quenching of the local moment. However, χ_{loc} itself continues to increase as the temperature is lowered. In the inset of Fig. 2, we display the effective exponent defined by $\alpha(T) \equiv -\ln \chi_{\text{loc}} / \ln T$. A transient regime, corresponding to a slowly decreasing α , is apparent and extends over more than two decades. At the lowest temperatures, α appears to saturate to a value $\alpha \approx 0.5$.

Correspondingly, the correlation function $\chi_{\text{loc}}(\tau)$ obeys a power-law dependence on time in the low-temperature

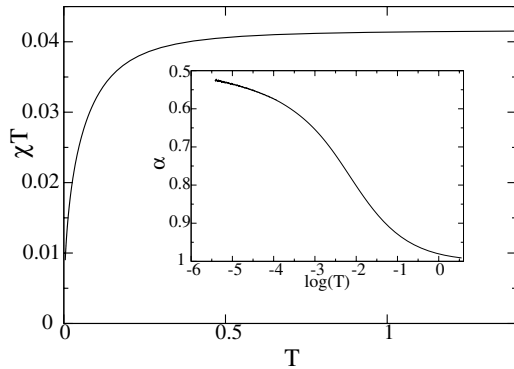


FIG. 2. Main plot: χ_{loc} obeys Curie law ($\propto 1/T$) at high temperature, but diverges more slowly than $1/T$ at lower temperature. Inset: evolution of the effective exponent α from high to low temperature when fitting $\chi_{\text{loc}}(T)$ to $1/T^\alpha$. (T is in units of J in all figures.)

regime. Figure 3 shows $\chi_{\text{loc}}(\tau)/\chi_{\text{loc}}(\beta/2)$ as a function of τ/β for several (large) values of $\beta = 1/T$; the graphs collapse on each other for different β , and are well fitted by the expression $\chi_{\text{loc}}(\tau)/\chi_{\text{loc}}(\beta/2) = [\sin(\pi\tau/\beta)]^{-(1-\alpha)}$, with $1 - \alpha \approx 0.5$. This scaling function is the one appearing in the study of quantum spin glasses [10] and quantum impurity models [15,17] and is dictated in the latter case by conformal invariance. It corresponds to the following scaling form of the dynamical susceptibility: $\chi''_{\text{loc}}(\omega) \propto \omega^{-\alpha} F_\alpha(\omega/T)$ with $F_\alpha(x) = x^\alpha |\Gamma(\frac{1-\alpha}{2} + i\frac{x}{2\pi})|^2 \sinh \frac{x}{2}$. This also implies diverging behavior of the relaxation rate $1/T_1 \propto T \chi''_{\text{loc}}(\omega)/\omega \sim 1/T^\alpha$.

These findings can be interpreted as the formation of a spin-liquid regime with a large density of triplet excited states, consistent with Ref. [2]. Our approach fails to predict a triplet gap, however, because our triangular plaquette has a spin-1/2 ground state, and the classical bath to which it is coupled cannot fully screen this local moment. Hence the local susceptibility continues to increase at low temperatures in our approach, down to an nonphysically low-energy scale (of order $J/100$). In fact the triplet gap for the $S = 1/2$ Kagomé QAF is known [2] to be quite small (of order $J/20$), so our description of the spin dynamics should be valid down to a rather low-temperature scale. The power-law behavior of the spin correlations and the low-temperature increase of the susceptibility agree well with experimental findings on SCGO above its freezing temperature at $T = 4$ K [4]. Since this is a $S = 3/2$ system, it is conceivable that higher spin extends the range of applicability of our approach even farther. A promising application of our approach is the pyrochlore lattice: the natural plaquette is a tetrahedron, with a twofold degenerate singlet ground state, so that the very low-energy singlet sector should be accessible within our approach. In future work we plan to address these issues, and also study the low-temperature thermodynamics

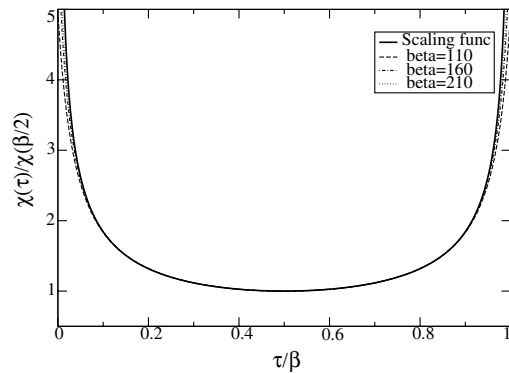


FIG. 3. For different (low) temperatures, $\chi_{\text{loc}}(\tau)/\chi_{\text{loc}}(\beta/2)$ plotted as a function of τ/β collapses on a single curve, well described by $[\sin(\pi\tau/\beta)]^{-0.5}$ (solid curve).

by solving the self-consistent local problem (2) using exact numerical techniques.

We are grateful to O. Parcollet for his very useful help with numerical routines, and to C. Lhuillier, G. Misguich, R. Moessner, and S. Sachdev for discussions. We also thank C. Mondelli for sharing her data with us.

- [1] P. W. Anderson, Mater. Res. Bull. **8**, 153 (1973).
- [2] C. Waldtmann, H.-U. Everts, B. Bernu, C. Lhuillier, P. Sindzingre, P. Lecheminant, and L. Pierre, Eur. Phys. J. B **2**, 501 (1998); P. Lecheminant, B. Bernu, C. Lhuillier, L. Pierre, and P. Sindzingre, Phys. Rev. B **56**, 2521 (1997).
- [3] R. Moessner and S. L. Sondhi, Phys. Rev. Lett. **86**, 1881 (2001); R. Moessner, S. L. Sondhi, and E. Fradkin, cond-mat/0103396.
- [4] C. Mondelli, H. Mutka, C. Payen, B. Frick, and K. H. Andersen, Physica (Amsterdam) **284B**, 1371 (2000); C. Mondelli, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble, 2000 (unpublished).
- [5] A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. **68**, 13 (1996).
- [6] A. Schiller and K. Ingersent, Phys. Rev. Lett. **75**, 113 (1995).
- [7] M. H. Hettler, A. N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, T. Pruschke, and H. R. Krishnamurthy, Phys. Rev. B **58**, R7475 (1998).
- [8] J. Llewellyn Smith and Q. Si, Phys. Rev. B **61**, 5184 (2000).
- [9] R. Chitra and G. Kotliar, Phys. Rev. B **63**, 115110 (2001).
- [10] A. Georges, O. Parcollet, and S. Sachdev, Phys. Rev. Lett. **85**, 840 (2000); Phys. Rev. B **63**, 134406 (2001).
- [11] D. R. Grempel and M. J. Rozenberg, Phys. Rev. Lett. **80**, 389 (1998).
- [12] V. Subrahmanyam, Phys. Rev. B **52**, 1133 (1995).
- [13] F. Mila, Phys. Rev. Lett. **81**, 2356 (1998).
- [14] M. Mambrini and F. Mila, Eur. Phys. J. B **17**, 651 (2000).
- [15] M. Vojta, C. Buragohain, and S. Sachdev, Phys. Rev. B **61**, 15 152 (2000).
- [16] In fact, a useful approximation to Eq. (5) is to replace the Hilbert transform of $\rho(\epsilon)$ by its high-frequency behavior.
- [17] O. Parcollet, A. Georges, G. Kotliar, and A. Sengupta, Phys. Rev. B **58**, 3794 (1998).

Appendices

A. Notations et formules utiles

L'objet de cet appendice est d'une part de préciser les conventions utilisées dans cette thèse, d'autre part de rappeler quelques résultats pratiques utilisés dans le texte.

A.1 Représentation spectrale

Nous avons utilisé abondamment le formalisme de Matsubara dans le corps de la thèse, qui introduit des fonctions de Green en temps imaginaire, de type fermionique et bosonique, que l'on note respectivement $G_f(\tau)$ et $G_b(\tau)$ dans cette section. Ces fonctions sont respectivement β -antipériodiques et β -périodiques, et se développent donc en série de Fourier sur les fréquences de Matsubara impaires $\omega_n = (2n+1)\pi/\beta$ et paires $\nu_n = 2n\pi/\beta$ respectivement. Nous utiliserons la convention suivante pour ces transformées de Fourier :

$$G(i\xi_n) \equiv \int_0^\beta d\tau G(\tau) e^{i\xi_n \tau} \quad (\text{A.1})$$

$$G(\tau) = \frac{1}{\beta} \sum_n G(i\xi_n) e^{-i\xi_n \tau} \quad (\text{A.2})$$

avec $\xi_n = \omega_n$ pour une fonction de Green fermionique et $\xi_n = \nu_n$ pour une fonction de Green bosonique. On peut considérer le prolongement analytique de la fonction $G(i\xi_n)$ sur tout le plan complexe, et si l'on admet qu'elle possède ses pôles sur l'axe réel uniquement (et décroît suffisamment vite à l'infini), on peut écrire une représentation spectrale :

$$G(z) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\rho(\omega')}{z - \omega'} \quad (\text{A.3})$$

Cela implique que la densité spectrale est donnée par la formule :

$$\rho(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G(\omega + i0^+) = -\frac{1}{\pi} G''(\omega) \quad (\text{A.4})$$

Pour un fermion qui vérifie les relations d'anticommutation, on déduit la propriété suivante :

$$\begin{aligned} f_\sigma f_\sigma^\dagger + f_\sigma^\dagger f_\sigma = 1 &\Leftrightarrow G_f(\tau = 0^+) - G_f(\tau = 0^-) = -1 \\ &\Leftrightarrow \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \rho_f(\omega) = 1 \\ &\Leftrightarrow G_f(i\omega) \sim \frac{1}{i\omega} \quad (\omega \rightarrow \infty) \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

La première de ces égalité doit être traitée avec précaution dans toute approche numérique impliquant des fonctions de Green de Matsubara (pour éviter le phénomène d'oscillation de Gibbs). On a bien sûr des propriétés similaires pour les bosons usuels ¹ :

$$\begin{aligned} bb^\dagger - b^\dagger b &= 1 \Leftrightarrow G_b(\tau = 0^+) - G_b(\tau = 0^-) = -1 \\ &\Leftrightarrow \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \rho_b(\omega) = 1 \\ &\Leftrightarrow G_b(i\nu) \sim \frac{1}{i\nu} \quad (\nu \rightarrow \infty) \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

On peut finalement donner une expression utile qui re-exprime la fonction de Green en temps imaginaire grâce à la fonction spectrale :

$$G_f(\tau) = - \int_{-\infty}^{+\infty} d\epsilon \, n_F(-\epsilon) e^{-\epsilon\tau} \rho_f(\epsilon) \quad 0 \leq \tau \leq \beta \quad (\text{A.7})$$

$$G_X(\tau) = + \int_{-\infty}^{+\infty} d\epsilon \, n_B(-\epsilon) e^{-\epsilon\tau} \rho_X(\epsilon) \quad 0 \leq \tau \leq \beta \quad (\text{A.8})$$

où les facteurs de Bose et de Fermi sont définis par :

$$n_F(\epsilon) = \frac{1}{e^{\beta\epsilon} + 1} \quad (\text{A.9})$$

$$n_B(\epsilon) = \frac{1}{e^{\beta\epsilon} - 1} \quad (\text{A.10})$$

Les expressions précédentes (A.7-A.8) peuvent être établies en inversant les propagateurs libres suivants :

$$(\partial_\tau + \epsilon) G_f^0(\tau - \tau') = -\delta_{\text{antiper}}(\tau - \tau') \quad (\text{A.11})$$

$$(\partial_\tau + \epsilon) G_b^0(\tau - \tau') = -\delta_{\text{per}}(\tau - \tau') \quad (\text{A.12})$$

ce qui donne :

$$G_f^0(\tau) = \frac{1}{e^{-\beta\epsilon} + 1} [-\theta(\tau) e^{-\epsilon\tau} + \theta(-\tau) e^{-\epsilon(\beta+\tau)}] \quad -\beta \leq \tau \leq \beta \quad (\text{A.13})$$

$$G_b^0(\tau) = \frac{1}{e^{-\beta\epsilon} - 1} [\theta(\tau) e^{-\epsilon\tau} + \theta(-\tau) e^{-\epsilon(\beta+\tau)}] \quad -\beta \leq \tau \leq \beta \quad (\text{A.14})$$

Ceci conduit par ailleurs aux formules de sommations bien pratiques :

$$\frac{1}{\beta} \sum_n \frac{e^{i\omega_n 0^+}}{i\omega_n - \epsilon} = n_F(\epsilon) \quad (\text{A.15})$$

$$\frac{1}{\beta} \sum_n \frac{e^{i\nu_n 0^+}}{i\nu_n - \epsilon} = -n_B(\epsilon) \quad (\text{A.16})$$

$$\frac{1}{\beta} \sum_n \frac{1}{(i\omega_n - \epsilon)(i\omega_n - \epsilon')} = \frac{n_F(\epsilon) - n_F(\epsilon')}{\epsilon - \epsilon'} \quad (\text{A.17})$$

$$\frac{1}{\beta} \sum_n \frac{1}{(i\nu_n - \epsilon)(i\nu_n - \epsilon')} = -\frac{n_B(\epsilon) - n_B(\epsilon')}{\epsilon - \epsilon'} \quad (\text{A.18})$$

¹Notons que pour un champ de rotateur quantique, le propagateur décroît plus vite à haute fréquence, et ne présente pas de singularité particulière à court temps.

A.2 Densités d'état diverses

□ Densité plate

La densité d'état plate, de demi-largeur de bande D , est bien sûr donnée par :

$$D(\omega) = \frac{1}{2D} \theta(D^2 - \omega^2) \quad (\text{A.19})$$

De la représentation spectrale (A.3) on tire la fonction de Green (sur l'axe imaginaire et sur l'axe réel) :

$$G(i\omega) = \frac{1}{2D} \log \frac{i\omega + D}{i\omega - D} \quad (\text{A.20})$$

$$G(\omega) = \frac{1}{2D} \log \left| \frac{\omega + D}{\omega - D} \right| - \frac{i\pi}{2D} \theta(D^2 - \omega^2) \quad (\text{A.21})$$

Dans la limite de grande largeur de bande, $D \gg \omega$, on trouve simplement $G(\omega) = -i\pi/(2D)$.

□ Densité semi-circulaire

Celle-ci est utilisée très souvent en pratique car :

- elle correspond à un réseau de Bethe de connectivité infinie
- elle mimique de façon simple une densité à trois dimensions (elle possède le même comportement en bord de bande)
- quand utilisée dans l'autoconsistance DMFT, elle donne lieu à une relation explicite entre le champ de Weiss et la fonction de Green locale.

Cette densité d'état est donnée par la formule (on note toujours D la demi-largeur de bande) :

$$D(\omega) = \frac{2}{\pi D^2} \sqrt{D^2 - \omega^2} \theta(D^2 - \omega^2) \quad (\text{A.22})$$

On en déduit la fonction de Green sur l'axe imaginaire :

$$G(i\omega) = \frac{2}{D^2} \left(i\omega - i \text{Sgn}(\omega) \sqrt{D^2 + \omega^2} \right) \quad (\text{A.23})$$

ainsi que sur l'axe réel :

$$G(\omega) = \frac{2}{D^2} \left(\omega - \text{Sgn}(\omega) \sqrt{-D^2 + \omega^2} \right) \quad D^2 \leq \omega^2 \quad (\text{A.24})$$

$$G(\omega) = \frac{2}{D^2} \left(\omega - i \sqrt{D^2 - \omega^2} \right) \quad \omega^2 \leq D^2 \quad (\text{A.25})$$

□ Densités hypercubiques

Elle correspondent au spectre de l'hamiltonien de liaison fortes sur un réseau hypercubique à d dimensions :

$$H = -t \sum_{\langle ij \rangle, \sigma} d_{i\sigma}^\dagger d_{j\sigma} = \sum_{k, \sigma} \epsilon_k d_{k\sigma}^\dagger d_{k\sigma} \quad (\text{A.26})$$

$$\epsilon_k = -2t \sum_{\alpha=1}^d \cos(k_\alpha) \quad (\text{A.27})$$

La densité d'état sur ce réseau

$$D(\omega) = \int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} \delta(\omega - \epsilon_k) = \int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} \int \frac{ds}{2\pi} e^{i\omega s - is\epsilon_k} \quad (\text{A.28})$$

$$= \int \frac{ds}{2\pi} e^{i\omega s} \left[\int \frac{dk}{2\pi} e^{-is \cos(k)} \right]^d = \int \frac{ds}{2\pi} e^{i\omega s} [J_0(2ts)]^d \quad (\text{A.29})$$

se calcule numériquement en prenant la transformée de Fourier de la fonction de Bessel d'ordre zéro (élevée à la puissance d), comme démontré à la formule précédente. De plus, la formule (A.29) permet de prendre la limite $d \rightarrow \infty$, à condition de poser $t \rightarrow t/\sqrt{2d}$, et l'on trouve :

$$D(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}t^2} e^{-\omega^2/(2t^2)} \quad (\text{A.30})$$

Ces densités d'état sont illustrées à la figure suivante.

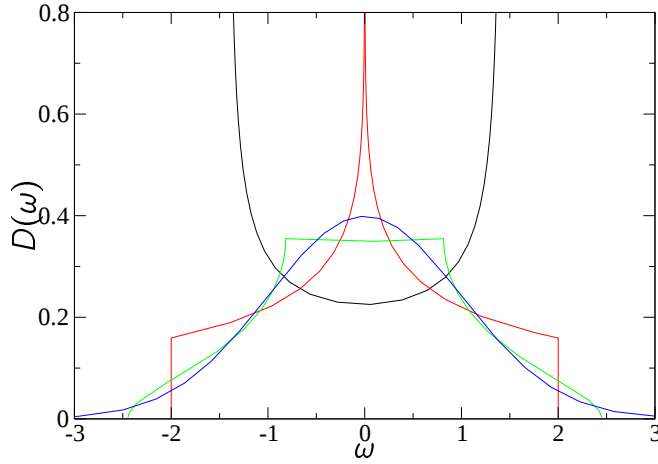


Fig. A.1 – Densités d'état pour le réseau hypercubique en dimensions $d = 1, 2, 3, \infty$, avec $t \propto 1/\sqrt{d}$.

B. Autour de la limite atomique

Nous allons ici illustrer une des raisons pour laquelle les méthodes perturbatives sont mises en échec dans le cas de modèles multi-bande. Il faut rappeler que la théorie de perturbation à l'ordre le plus bas donne des résultats tout à fait satisfaisants pour le modèle d'Anderson à une bande (même si l'échelle Kondo n'est pas convenablement estimée). La raison de ce succès est double. À un degré quantitatif, Yamada a remarqué que les contributions qui apparaissent à l'ordre U^4 se compensent quasi-exactement, étendant ainsi le régime de validité de la troncation à l'ordre U^2 . Plus important encore, on constate que la self-énergie à l'ordre 2 est exacte dans la limite atomique (dans le cas de la symétrie particule-trou). En effet, si l'on considère l'hamiltonien suivant :

$$H_{\text{at}} = \frac{U}{2} \left[\sum_{\sigma} \left(d_{\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} - \frac{1}{2} \right) \right]^2 \quad (\text{B.1})$$

avec $\sigma = \uparrow, \downarrow$, on se retrouve avec un spectre à 4 états :

$$\begin{aligned} |\uparrow\rangle &\leftrightarrow E_{\uparrow} = 0 \\ |\downarrow\rangle &\leftrightarrow E_{\downarrow} = 0 \\ |0\rangle &\leftrightarrow E_0 = \frac{U}{2} \\ |\uparrow\downarrow\rangle &\leftrightarrow E_{\uparrow\downarrow} = \frac{U}{2} \end{aligned}$$

Ceci permet d'évaluer la fonction de Green exactement :

$$G(i\omega) = \left[\sum_{\mu} e^{-E_{\mu}} \right]^{-1} \sum_{\mu\nu} |\langle \mu | d_{\sigma}^{\dagger} | \nu \rangle|^2 \frac{e^{-\beta E_{\mu}} + e^{-\beta E_{\nu}}}{i\omega + E_{\mu} - E_{\nu}} \quad (\text{B.2})$$

$$G(i\omega) = \frac{1/2}{i\omega - U/2} + \frac{1/2}{i\omega + U/2} = \frac{1}{i\omega - U^2/(4i\omega)} \quad (\text{B.3})$$

La self-énergie de ce problème trivial, mais en interaction, s'arrête donc à l'ordre 2.

□ Cas multi-orbital

Si l'on considère maintenant le cas multi-orbital, demi-rempli, et avec symétrie $SU(N)$ (qui revient à étendre $\sigma = 1 \dots N$), on trouve en série de perturbation au second ordre (voir figure B.1) :

$$\Sigma(i\omega) = (N-1) \frac{U^2}{4i\omega} \quad (\text{B.4})$$

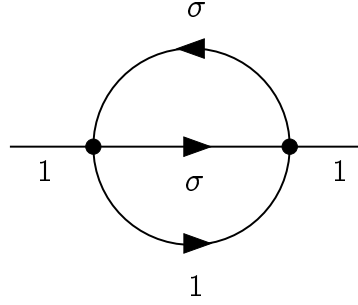


Fig. B.1 – Self-énergie pour un modèle à N indices. On a ici une couleur libre, qui prend $N - 1$ différentes valeurs. Le propagateur est $G_0(i\omega) = 1/(i\omega)$.

Ce résultat est problématique, car à température nulle on s'attend à avoir une self-énergie indépendante de N , puisque l'on peut uniquement transiter entre un état à $N/2$ électrons, vers un état à $N/2 \pm 1$ électrons, avec un gap $U/2$. La raison technique provient du fait que la théorie de perturbation correspond à un développement en βU , et que les limites $U \rightarrow 0$ et $T \rightarrow 0$ ne commutent pas. On peut illustrer cette remarque en calculant la fonction de Green exactement pour $N = 4$. Il y a $2^4 = 8$ états, qui donnent :

$$\Sigma(i\omega) = \frac{U^2}{4i\omega} \frac{(9 - 16n)U^2\omega^2 + 9U^4/4}{\omega^2 + (16n + 1)U^2/4} \quad (\text{B.5})$$

$$n = \frac{3 + 3e^{-\beta U/2}}{6 + 8e^{-\beta U/2} + 2e^{-2\beta U}} \quad (\text{B.6})$$

Ainsi, lorsque U est petit, on trouve $n = 3/8$, ce qui redonne le résultat perturbatif pour $N = 4$, $\Sigma(i\omega) = 3U^2/(4i\omega)$ (équation B.4). Par contre, à température nulle, on a $n = 1/2$, qui produit effectivement la séparation attendue entre les pics atomiques, $\Sigma(i\omega) = U^2/(4i\omega)$.

Ce petit calcul illustre ainsi le coup de chance qui se produit dans le cas à une bande : le nombre d'électrons vaut dans ce cas $n = 1/2$ indépendamment de la température, produisant une self-énergie atomique exacte à toutes températures, ce qui assure le succès de la méthode IPT dans le régime de couplage fort.

□ Avec la méthode de rotateurs esclaves

Pour le modèle (B.1), la limite atomique est correctement donnée par la méthode de rotateurs esclaves *pour tout remplissage et pour un nombre d'orbitales N quelconque*, à condition que l'on traite la phase de manière $O(2)$ (sans prendre la limite de grande composante). On fait l'approximation de champ moyen habituelle pour traiter la contrainte de charge :

$$\langle \hat{L} \rangle = \left\langle \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} \right\rangle - \frac{N}{2} \quad (\text{B.7})$$

Cette équation détermine la valeur du multiplicateur de Lagrange h , après résolution de l'hamiltonien d'essai :

$$H = \frac{U}{2} \hat{L}^2 + \sum_s \epsilon_0 f_s^\dagger f_s + h \left(\hat{L} - \sum_s f_s^\dagger f_s + \frac{N}{2} \right) \quad (\text{B.8})$$

La charge totale des fermions (décalée de $N/2$) est donnée par un facteur de Fermi :

$$Q(h) \equiv \left\langle \sum_\sigma f_\sigma^\dagger f_\sigma \right\rangle - \frac{N}{2} = N n_F(\epsilon_0 - h) - \frac{N}{2} \quad (\text{B.9})$$

alors que $\langle \hat{L} \rangle(h)$ est un escalier infini. Nous pouvons donc résoudre l'équation (B.7) graphiquement, ce qui est fait à la figure B.2. La solution est présentée sur la figure B.3 : c'est l'escalier de Coulomb.

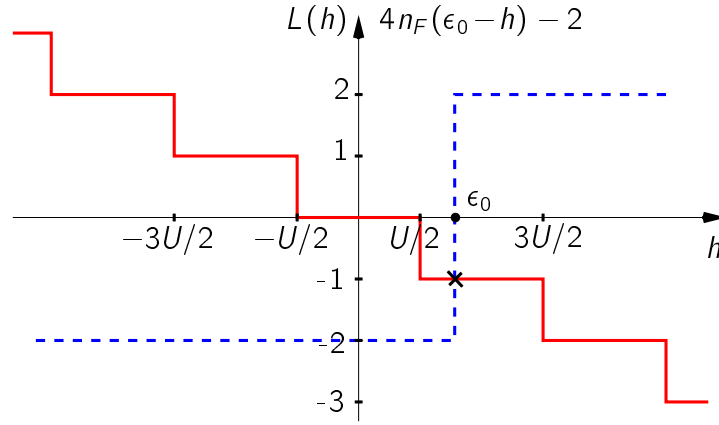


Fig. B.2 – Illustration graphique dans la limite atomique de l'équation de champ-moyen sur h , dans le cas $N = 4$ et $T = 0$.

La fonction de Green à une particule est donnée aussi exactement dans cette approximation. En effet, lorsqu'on calcule l'expression suivante :

$$G_d(\tau) = -\langle f_\sigma(\tau) f_\sigma^\dagger(0) \rangle \langle e^{i\theta(\tau) - i\theta(0)} \rangle \equiv G_f(\tau) G_\chi(\tau) \quad (\text{B.10})$$

on trouve que $G_f(i\omega)$ possède un pôle simple, et que $G_\chi(i\nu)$ présente deux pôles (à température nulle), séparés par U . Ainsi, $G_d(i\omega)$ possède aussi deux pôles asymétriques (par propriété de convolution), qui sont situés à la bonne place et avec le bon poids, puisque l'escalier de Coulomb est correctement reproduit, comme on le déduit à partir de la propriété :

$$\langle d_\sigma^\dagger d_\sigma \rangle = \langle f_\sigma^\dagger f_\sigma \rangle = G_f(\tau = 0^-) \quad (\text{B.11})$$

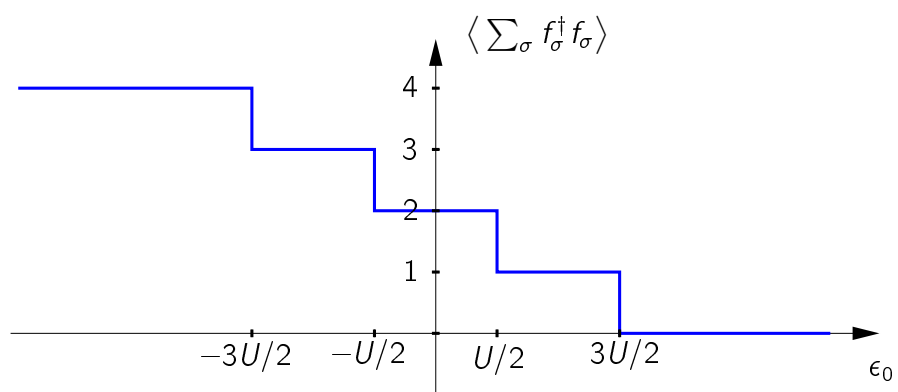


Fig. B.3 – *Escalier de Coulomb : occupation totale à température nulle en fonction de la position du niveau atomique (ici pour $N = 4$).*

C. Résolution numérique des équations intégrales

La résolution des nombreuses équations intégrales considérées dans cette thèse ne pose pas de problème de principe (l'idée est d'itérer ces équations jusqu'à convergence), mais l'implémentation numérique peut poser des problèmes techniques si l'on ne s'y prend de la bonne façon. Je présente ici quelques recettes pratiques (qui ne sont pas infaillibles).

C.1 Sur l'axe imaginaire

Il s'agit là du cas le plus simple car le temps imaginaire est borné dans le formalisme de Matsubara : $\tau \in [0, \beta]$. Les fréquences sont donc discrètes, $\omega_n = (2n + 1)\pi/\beta$ (n entier), et il suffit de les couper pour $|n| < n_{\max}/2$, ce qui revient à prendre $n_{\max}$ tranches de temps : $\tau = \beta k/n_{\max}$ ($k = 0, \dots, n_{\max} - 1$). L'algorithme de transformée de Fourier rapide (FFT) permet de passer alors entre les représentations en temps et en fréquence de manière efficace (il faut adapter la transformée de Fourier pour gérer à la fois des fréquences paires ou impaires). Le choix de $n_{\max}$ dépend uniquement de la température (pour $\beta = 100$, prendre $n_{\max} = 8192$ est raisonnable).

□ Problème de la discontinuité

On rencontre là cependant un premier problème ¹ : les fonctions de Green que l'on considère typiquement ont une décroissance lente en fréquence, en général comme $1/(i\omega_n)$. Cela implique une discontinuité (-1) à $\tau = 0$ qui est inacceptable pour utiliser des transformées de Fourier numériques (à cause du phénomène d'oscillations de Gibbs). La solution est simple et efficace : il suffit de retrancher avant FFT une fonction connue et analytique (par exemple un bout de cosinus) ayant la même discontinuité, et de rajouter sa transformée de Fourier (analytique) après FFT.

□ Problème de la stabilité de l'itération

Il est bien connu que résoudre des équations par itération (même à une variable) n'est pas une bonne idée : en général on peut avoir des comportements oscillant ou divergeant, au lieu de converger vers la solution voulue (si celle-ci est unique). Il est assez remarquable que les équations intégrales envisagées ici se comportent très bien lorsqu'on les itère numériquement.

¹Je remercie Olivier Parcollet de m'avoir fait cette remarque (et pour les codes qui vont avec).

Donnons ici un exemple, celui des équations dynamiques obtenues avec la méthode de rotateur (au demi-remplissage) ² :

$$G_f^{-1}(i\omega_n) = i\omega_n - \Sigma_f(i\omega_n) \quad (C.1)$$

$$G_X^{-1}(i\nu_n) = \nu_n^2/U + \lambda - \Sigma_X(i\nu_n) \quad (C.2)$$

$$\Sigma_X(\tau) = \mathcal{N}\Delta(\tau)G_f(\tau) \quad (C.3)$$

$$\Sigma_f(\tau) = \Delta(\tau)G_X(\tau) \quad (C.4)$$

$$G_X(\tau=0) = 1 \quad (C.5)$$

Pour cela, on réalise la boucle suivante ($\Delta(\tau)$ étant supposé fixé) :

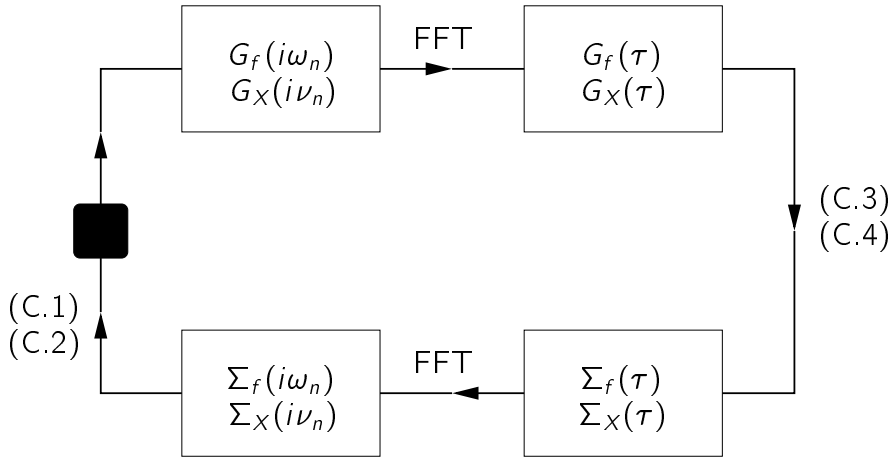


Fig. C.1 –

La boîte noire est la clé du succès. En effet, il ne faut pas recalculer $G_f(i\omega_n)$ et $G_X(i\nu_n)$ directement à partir de (C.1-C.2), mais par :

$$G_f(i\omega_n) = \frac{x}{i\omega_n - \Sigma_f(i\omega_n)} + (1-x)G_f^{old}(i\omega_n) \quad (C.6)$$

$$G_X(i\nu_n) = \frac{x}{\nu_n^2/U + \lambda - \Sigma_X(i\nu_n)} + (1-x)G_X^{old}(i\nu_n) \quad (C.7)$$

où x est un poids pas trop grand, et qui permet d'éviter les instabilités numériques. La boîte contient aussi la façon dont on impose l'équation (C.5).

□ Problème de la dichotomie

En terme de stabilité et d'efficacité, il est important que la procédure de dichotomie, qui tire λ de l'équation (C.5), se trouve à l'intérieur de la boucle d'itération, et non pas à l'extérieur. Cette étape est de plus en plus coûteuse, puisqu'il suffit de résoudre l'équation :

$$\frac{1}{\beta} \sum_n \frac{1}{\nu_n^2/U + \lambda - \Sigma_X(i\nu_n)} = 1 \quad (C.8)$$

²On prendra garde au fait que $\Sigma_f(\tau)$ a aussi une discontinuité à $\tau = 0$.

C.2 Méthode de calcul des fonctions spectrales

On s'intéresse maintenant à la façon de calculer des quantités à fréquence réelle, comme les fonctions spectrales. Il n'y a pas de méthode parfaite, et on choisit en général celle-ci au cas par cas.

□ Continuation analytique

L'approche la plus simple est de réaliser une continuation analytique des résultats obtenus sur l'axe imaginaire. Pour cela on réalise une approximation de Padé des données discrétisées (en fréquence de Matsubara) par une fraction rationnelle ou une fraction continue. La continuation analytique est alors immédiate, mais sa qualité très variable (et incontrôlable). En pratique, cette méthode fonctionne à basse température (il faut suffisamment d'information) et lorsque les équations convergent bien. Si le bruit est limité, le Padé donne des résultats quantitativement corrects (mais échoue dans tous les cas lorsque la fonction de Green a un gap franc).

□ Résolution directe sur l'axe réel

Une autre manière de procéder est de prolonger d'abord les équations intégrales (C.1-C.5) sur l'axe réel, puis de les résoudre numériquement. Les deux premières équations sont simplement :

$$G_f^{-1}(\omega) = \omega - \Sigma_f(\omega) \quad (C.9)$$

$$G_X^{-1}(\omega) = -\frac{\omega^2}{U} + \lambda - \Sigma_X(\omega) \quad (C.10)$$

et les suivantes s'obtiennent en passant par une représentation spectrale :

$$\Sigma_X(\omega) = -\mathcal{N} \int \frac{d\epsilon}{\pi} n_F(\epsilon) G_f''(\epsilon) \Delta(\omega - \epsilon) + \mathcal{N} \int \frac{d\epsilon}{\pi} n_F(-\epsilon) \Delta''(\epsilon) G_f(\omega - \epsilon) \quad (C.11)$$

$$\Sigma_f(\omega) = \int \frac{d\epsilon}{\pi} n_B(\epsilon) G_X''(\epsilon) \Delta(\omega - \epsilon) + \int \frac{d\epsilon}{\pi} n_F(-\epsilon) \Delta''(\epsilon) G_X(\omega - \epsilon) \quad (C.12)$$

$$1 = \int \frac{d\epsilon}{\pi} G_X''(\epsilon) n_B(\epsilon) \quad (C.13)$$

On définit ensuite la transformée de Fourier sur l'axe réel pour une fonction de Green générique :

$$G(t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega t} G(\omega) \quad (C.14)$$

$$G(\omega) = \int dt e^{i\omega t} G(t) \quad (C.15)$$

ce qui permet de réaliser les convolutions. En définissant les fonctions $A(\epsilon) \equiv n_B(\epsilon) G_X''(\epsilon)$, $B(\epsilon) \equiv n_F(-\epsilon) \Delta''(\epsilon)$ et $C(\epsilon) \equiv n_F(\epsilon) G_f''(\epsilon)$, on trouve :

$$\Sigma_X(t) = -2\mathcal{N}C(t)\Delta(t) + 2\mathcal{N}B(t)G_f(t) \quad (C.16)$$

$$\Sigma_f(t) = 2A(t)\Delta(t) + 2B(t)G_X(t) \quad (C.17)$$

On peut donc utiliser à nouveau l'algorithme de FFT, à condition de mettre une borne sur le temps réel t (avec une grille discrète). Cependant, lorsque les fonctions de Green ont à la fois une décroissance lente à long temps et des singularités à $\tau = 0$ (discontinuités), cette méthode est très difficile en pratique. Une solution est d'utiliser une discrétisation adaptative (logarithmique), mais il faut alors abandonner les transformées de Fourier rapides et calculer les convolutions directement.

□ Équations IPT

Par souci de complétude, je donne ici les équations IPT qui ont été utilisées pour calculer le transport dans la section 2.1.2. On a les équations de Dyson :

$$\mathcal{G}_0^{-1}(\omega) = \omega - \Delta(\omega) \quad (\text{C.18})$$

$$G_d^{-1}(\omega) = \omega - \Delta(\omega) - \Sigma_d(\omega) \quad (\text{C.19})$$

$$(\text{C.20})$$

avec la self-énergie en temps imaginaire $\Sigma(\tau) = U^2 \mathcal{G}_0(\tau)^3$, que l'on réécrit $\Sigma(\tau) = U^2 \mathcal{G}_0(\tau) \chi(\tau)$, où $\chi(\tau) = \mathcal{G}_0(\tau)^2$. On trouve comme précédemment :

$$\chi(\omega) = -U^2 \int \frac{d\epsilon}{\pi} n_F(\epsilon) \mathcal{G}_0''(\epsilon) \mathcal{G}_0(\omega - \epsilon) + U^2 \int \frac{d\epsilon}{\pi} n_F(-\epsilon) \mathcal{G}_0''(\epsilon) \mathcal{G}_0(\omega - \epsilon) \quad (\text{C.21})$$

$$\Sigma_d(\omega) = \int \frac{d\epsilon}{\pi} n_B(\epsilon) \chi''(\epsilon) \mathcal{G}_0(\omega - \epsilon) + \int \frac{d\epsilon}{\pi} n_F(-\epsilon) \mathcal{G}_0''(\epsilon) \chi(\omega - \epsilon) \quad (\text{C.22})$$

$$(\text{C.23})$$

La résolution de ces équations dans la phase isolante de Mott est assez difficile car le propagateur $\mathcal{G}_0$ présente des singularités à basse fréquence.

D. Quantités à deux particules avec la méthode de rotateur

□ Principe

La méthode de rotateur est construite autour de l'idée que la charge est une variable simple, un moment angulaire $O(2)$, et permet donc d'évaluer naturellement les corrélations de cet opérateur. Par rapport aux bosons esclaves, on a donc les mêmes difficultés pour calculer la fonction de corrélation spin-spin, qui est une simple factorisation de la fonction de Green de "spinon" :

$$\chi_s(\tau) = G_f(\tau)G_f(\beta - \tau) \quad (\text{D.1})$$

et qui ne permet pas de capturer l'écrantage du spin à la base de l'effet Kondo (les équations intégrales correspondent en fait à un cas sur-écranté). Cependant, dans le formalisme de rotateur, la charge est un opérateur linéaire, $\hat{L}$, contrairement à la méthode de boson esclave (on a $1 - b^\dagger b$). On peut donc calculer naturellement la susceptibilité de charge :

$$\begin{aligned} \chi_c(\tau) &\equiv \left\langle \sum_{\sigma} (n_{\sigma}(\tau) - 1/2) \sum_{\sigma'} (n_{\sigma'}(0) - 1/2) \right\rangle \\ &= \langle \hat{L}(\tau) \hat{L}(0) \rangle \\ &= \frac{1}{U^2} \langle \partial_{\tau} \theta(\tau) \partial_{\tau} \theta(0) \rangle \\ &= \frac{2}{U^2} [G_X(\tau) \partial_{\tau}^2 G_X(\tau) + U \delta(\tau) - (\partial_{\tau} G_X(\tau))^2] \end{aligned} \quad (\text{D.2})$$

Afin de tester ce choix de prescription pour le corrélateur de charge, j'ai effectué une comparaison avec les résultats obtenus par la méthode de diagonalisation exacte (pour DMFT), comme présenté à la figure D.1. On trouve un accord raisonnable à la fois dans le métal et dans l'isolant, qui se dégrade malheureusement pour des valeurs de U petites (dû au traitement en champ moyen de la contrainte (3.10)). Cette méthode pour évaluer la susceptibilité de charge dans le formalisme des rotateurs sera utilisée dans le contexte d'EDMFT à la section 5.2.

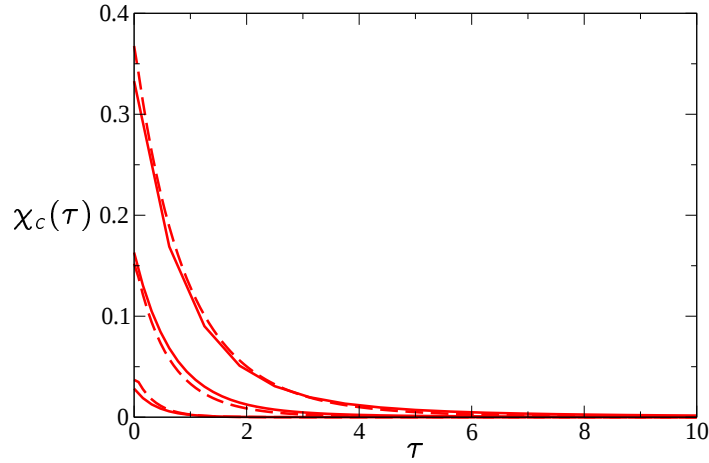


Fig. D.1 – Susceptibilité de charge connexe calculée à $\beta = 80$ pour $U = 1, 2, 3$ (de haut en bas) par une diagonalisation exacte de l'hamiltonien d'Anderson (trait plein) et par la méthode de rotateur (pointillés).

□ Double occupation

Ce désaccord est plus explicite sur la double occupation

$$d_{\uparrow\downarrow} \equiv \langle n_{\uparrow} n_{\downarrow} \rangle = (1/2)\chi_c(\tau = 0) \quad (\text{D.3})$$

tracée à la figure D.2 (on compare là encore aux résultats numériques exacts, ainsi qu'à la méthode IPT).

On peut tirer de ces résultats quelques conclusions supplémentaires sur la physique de la transition de Mott. On voit sur le panneau de gauche de la figure D.2 que la double occupation est une fonction décroissante de U , mais reste non nulle dans la phase isolante à $U \gtrsim 3$. Elle n'est donc pas un bon paramètre d'ordre pour la transition de Mott, même si les effets des corrélations sont très importants sur cette quantité. Le fait que celle-ci soit quand même très petite traduit le fait que l'isolant de Mott décrit par DMFT est caractérisé par une collection de moments locaux (on peut montrer que cette phase possède une entropie macroscopique, d'ordre $N_{\text{site}} \log 2$). Le panneau de droite est aussi instructif, il montre que la double occupation commence par décroître lorsqu'on chauffe le métal corrélé, ce qui traduit une localisation plus importante, due à ces effets d'entropie (analogue de l'effet Pomeranchuk). Cet effet se reflète par ailleurs sur la pente négative des lignes critiques dans le diagramme de phase de la figure 4.5, et est aussi présent dans les systèmes expérimentaux, comme on peut le voir sur le diagramme de phase de V_2O_3 (en pensant que l'effet de la pression est de décroître les corrélations, ce qui retourne ce diagramme par rapport à la figure 4.5).

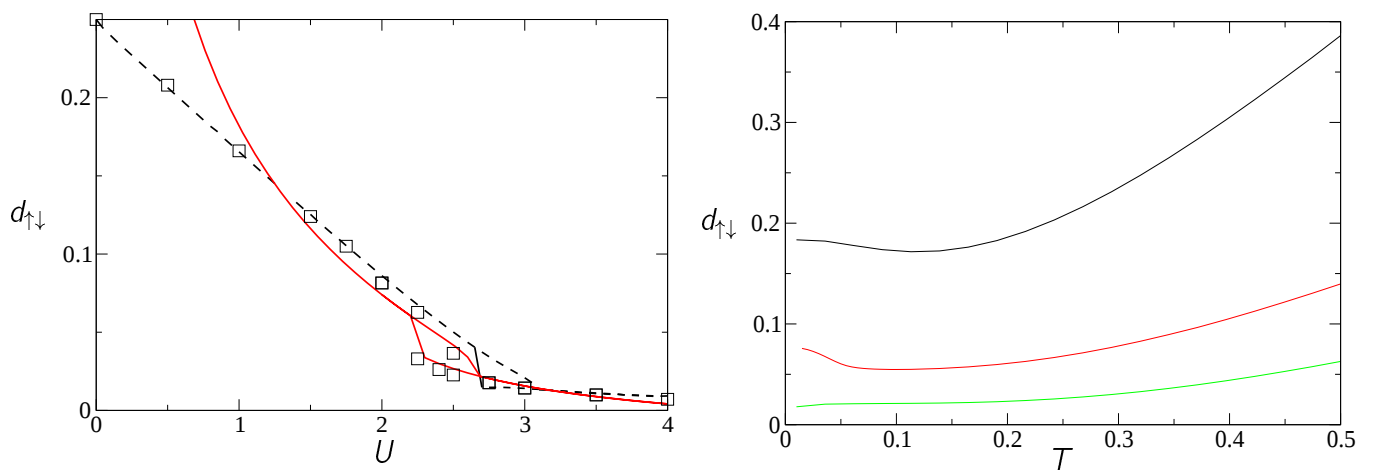


Fig. D.2 – À gauche : double occupation $d_{\uparrow\downarrow}$ à basse température en fonction de l'interaction de Coulomb U obtenue par IPT (traits pointillés), rotateurs (trait continu) et diagonalisation exacte (carrés). À droite : double occupation en fonction de la température pour $U = 1, 2, 3$ (de haut en bas) par la méthode de rotateur.

E. EDMFT : formulations fonctionnelles

E.1 Première formulation

On va présenter ici une dérivation fonctionnelle des équations EDMFT, qui a le mérite d'être très générale et plus transparente physiquement que la présentation donnée dans la section 5.2.2 (la signification d'une self-énergie de "charge" locale n'étant pas très intuitive). Cette formulation est aussi bien pratique lorsqu'on cherche une manière variationnelle d'aborder les systèmes corrélés (par exemple pour combiner des techniques de type DMFT avec des calculs *ab-initio*). Cette manière de procéder est aussi utile pour écrire les équations EDMFT dans le cas où l'on a une brisure spontanée de symétrie (ordre de charge ici). Commençons par découpler l'interaction de Coulomb dans le problème initial, utilisant pour cela des champs bosoniques :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_{ij\sigma} -d_{i\sigma}^\dagger G_0^{-1}(i-j, \tau) d_{j\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{ij} U_{ij}^{-1} \phi_i \phi_j + i \sum_i \alpha \phi_i n_i \quad (\text{E.1})$$

où $-G_0^{-1} \equiv \partial_\tau \delta_{ij} - t_{ij}$ et $U_{ij} \equiv U \delta_{ij} + V_{ij}$. Le paramètre $\alpha \in [0, 1]$ est introduit comme astuce pour construire la fonctionnelle désirée (on posera $\alpha = 1$ à la fin). On définit une fonctionnelle des self-énergies fermioniques Σ_{ij} et bosoniques P_{ij} (Baym-Kadanoff).

$$F[\Sigma, P] \equiv -\log \int \mathcal{D}d \mathcal{D}d^\dagger \mathcal{D}\phi e^{-S-S'[\Sigma, P]} \quad (\text{E.2})$$

$$\begin{aligned} S'[\Sigma, P] &= \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_{ij\sigma} \Sigma_{ij}(\tau - \tau') \left[d_{i\sigma}^\dagger(\tau) d_{j\sigma}(\tau') - G_{ij}(\tau' - \tau) \right] \\ &\quad - \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_{ij} P_{ij}(\tau - \tau') [\phi_i(\tau) \phi_j(\tau') - W_{ij}(\tau' - \tau)] \end{aligned} \quad (\text{E.3})$$

Imposer la stationarité par rapport à cette fonctionnelle implique :

$$G_{ij}(\tau - \tau') = \left\langle d_{i\sigma}^\dagger(\tau') d_{j\sigma}(\tau) \right\rangle_{|\Sigma, P} \quad (\text{E.4})$$

$$W_{ij}(\tau - \tau') = \langle \phi_i(\tau') \phi_j(\tau) \rangle_{|\Sigma, P} \quad (\text{E.5})$$

On peut inverser ces relations, en exprimant Σ et P en fonction de (G, W) pour construire une nouvelle fonctionnelle de G et W seulement : $\Gamma[G, W] = F[\Sigma[G, W], P[G, W]]$. Cette construction peut se réaliser explicitement à $\alpha = 0$, car l'action correspondante est gaussienne :

$$F[\Sigma, P]_{|\alpha=0} = -2\text{Tr} \log(G_0^{-1} - \Sigma) - 2\text{Tr}(\Sigma G) + \frac{1}{2} \text{Tr} \log(U^{-1} - P) + \frac{1}{2} \text{Tr}(PW) \quad (\text{E.6})$$

ce qui implique :

$$\Sigma_{|\alpha=0} = G_0^{-1} - G^{-1} \quad (\text{E.7})$$

$$P_{|\alpha=0} = U^{-1} - W^{-1} \quad (\text{E.8})$$

et l'on trouve ainsi la fonctionnelle à $\alpha = 0$:

$$\Gamma[G, W]_{|\alpha=0} = 2\text{Tr} \log G - 2\text{Tr}(G_0^{-1}G) - \frac{1}{2}\text{Tr} \log W + \frac{1}{2}\text{Tr}(U^{-1}W) \quad (\text{E.9})$$

Pour déterminer cette fonctionnelle à $\alpha = 1$ (en présence des interactions), on considère sa dérivée par rapport à α :

$$\frac{d}{d\alpha} \Gamma[G, W] = \int_0^\beta d\tau \sum_i i \langle \phi_i n_i \rangle \quad (\text{E.10})$$

À cause des conditions (E.4-E.5), les dérivées partielles de Σ et P n'apparaissent pas dans cette expression. On peut alors intégrer pour α entre 0 et 1, ce qui mène à l'expression finale (formelle) :

$$\Gamma[G, W] = 2\text{Tr} \log G - 2\text{Tr}(G_0^{-1}G) - \frac{1}{2}\text{Tr} \log W + \frac{1}{2}\text{Tr}(U^{-1}W) + \Psi[G, W] \quad (\text{E.11})$$

avec :

$$\Psi[G, W] \equiv \int_0^1 d\alpha \int_0^\beta d\tau \sum_i i \langle \phi_i n_i \rangle_{|G, W, \alpha} \quad (\text{E.12})$$

On trouve les équations fonctionnelles en imposant la stationarité :

$$\frac{1}{2} \frac{\delta \Psi}{\delta G} = G_0^{-1} - G^{-1} \equiv \Sigma \quad (\text{E.13})$$

$$-2 \frac{\delta \Psi}{\delta W} = U^{-1} - W^{-1} \equiv P \quad (\text{E.14})$$

Si l'on savait calculer Ψ exactement, résoudre ces équations permettrait d'obtenir les fonctions de Green du problème G et W . L'intérêt de ce type d'approche est que, lorsqu'on remplace cette fonctionnelle compliquée par une forme approximative, la solution des ces équations préserve les lois de conservations du problème.

□ Approximation locale

Jusqu'ici la construction n'a fait intervenir que des relations exactes, mais l'on va simplifier le problème en calculant $\Gamma[G_{ij}, W_{ij}]$ dans (E.11) grâce à l'action effective locale (5.22), que l'on exprime maintenant de la façon suivante :

$$\begin{aligned} S_{\text{imp}} = & \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_\sigma^\dagger \partial_\tau d_\sigma + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Delta(\tau - \tau') \sum_\sigma d_\sigma^\dagger(\tau) d_\sigma(\tau') \\ & + \int_0^\beta d\tau i \phi(\tau) n(\tau) + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \frac{U_{\text{dyn}}^{-1}(\tau - \tau')}{2} \phi(\tau) \phi(\tau') \end{aligned} \quad (\text{E.15})$$

L'approximation que l'on choisit de faire est de remplacer la fonctionnelle exacte mais compliquée, $\Gamma[G, W]$, par :

$$\Gamma_{\text{EDMFT}}[G, W] = 2\text{Tr} \log G - 2\text{Tr}(G_0^{-1}G) - \frac{1}{2}\text{Tr} \log W + \frac{1}{2}\text{Tr}(U^{-1}W) + \Psi_{\text{imp}}[G_{\text{ii}}, W_{\text{ii}}] \quad (\text{E.16})$$

où Ψ_{imp} est construit de la même manière que Ψ , mais à partir de l'action d'impureté (E.15) en contraignant de plus les fonctions de Green du modèle d'impureté à être égales à la partie locale de G_{ij} et W_{ij} respectivement (c'est à dire G_{ii} et W_{ii}). Les équations d'équilibre (E.13-E.14) deviennent donc :

$$G_0^{-1} - G^{-1} = \frac{1}{2}\delta_{\text{ij}} \frac{\delta \Psi_{\text{imp}}}{\delta G} \quad (\text{E.17})$$

$$U^{-1} - W^{-1} = -2\delta_{\text{ij}} \frac{\delta \Psi_{\text{imp}}}{\delta W} \quad (\text{E.18})$$

Cela revient donc à remplacer la polarisation $P(q, i\nu)$ dans (E.14) par la polarisation *locale* $P(i\nu)$ du modèle d'impureté effectif (d'une manière complètement analogue à l'hypothèse de self-énergie locale qui est au coeur de l'approximation de champ moyen dynamique). On trouve effectivement le propagateur bosonique :

$$W^{-1}(q, i\nu) = U^{-1}(q) + \underbrace{W^{-1}(i\nu) - U_{\text{dyn}}^{-1}(i\nu)}_{P(i\nu)} \quad (\text{E.19})$$

en notant $U(q) \equiv U + V(q)$, et $W(\tau) = \langle \phi(\tau)\phi(0) \rangle$ la fonction de corrélation calculée dans le modèle d'impureté. L'équation d'autoconsistance est finalement donnée par :

$$W(i\nu) = \sum_q \frac{1}{U^{-1}(q) + W^{-1}(i\nu) - U_{\text{dyn}}^{-1}(i\nu)} \quad (\text{E.20})$$

L'équation pour G est bien entendu la condition d'autoconsistance habituelle de DMFT sur la fonction de Green locale des fermions.

□ Équivalence des deux schémas

Nous voulons faire le lien entre l'équation d'autoconsistance précédente (E.20) et la formulation directe, de la section 5.2.2, équation (5.25). Pour cela, on commence par absorber W dans la somme sur q dans (E.20) :

$$0 = \sum_q \frac{U_{\text{dyn}}^{-1} - U^{-1}(q)}{U^{-1}(q) + W^{-1} - U_{\text{dyn}}^{-1}} \quad (\text{E.21})$$

On remarque qu'à cause de la transformation de Hubbard-Stratonovitch pour le modèle d'impureté (5.22), on a une relation explicite entre le propagateur bosonique W et la fonction de corrélation de charge χ locale :

$$W(i\nu) = U_{\text{dyn}}(i\nu) - U_{\text{dyn}}^2(i\nu)\chi(i\nu) \quad (\text{E.22})$$

qui permet d'éliminer W^{-1} dans (E.21). On obtient :

$$0 = \sum_q \frac{U(q) - U_{\text{dyn}}}{\chi^{-1} - U_{\text{dyn}} + U(q)} \quad (\text{E.23})$$

En extrayant χ de la sommation précédente, on a finalement l'équation voulue, (5.25) :

$$\chi = \sum_q \frac{1}{\chi^{-1} - U_{\text{dyn}} + U(q)} \quad (\text{E.24})$$

E.2 Seconde formulation

La dérivation précédente illustre clairement quelle approximation est faite dans le schéma EDMFT (localité de la self-énergie fermionique et de la polarisation), mais la raison pour l'introduction du modèle d'impureté effectif (E.15) n'est pas évidente. Pour saisir un peu mieux ce point, je vais présenter un calcul équivalent qui utilise maintenant la fonctionnelle des propagateurs *locaux* $G_{\text{loc}} \equiv G_{ii}$ et $W_{\text{loc}} \equiv W_{ii}$, au lieu des propagateurs complets (méthode de Baym-Kadanoff). On part du problème formulé avec les champs bosoniques, en introduisant une constante de couplage fictive α sur les termes non locaux :

$$S = \int_0^\beta d\tau \sum_\sigma d_{i\sigma}^\dagger \partial_\tau d_{i\sigma} + i \sum_i \phi_i n_i + \alpha \sum_{ij} \left[\frac{1}{2} U_{ij}^{-1} \phi_i \phi_j - \sum_\sigma t_{ij} d_{i\sigma}^\dagger d_{j\sigma} \right] \quad (\text{E.25})$$

et l'on construit la fonctionnelle d'énergie libre en contraignant cette fois les propagateurs fermionique et bosonique à points coïncidents :

$$F[\Delta, U_{\text{dyn}}] \equiv -\log \int \mathcal{D}d \mathcal{D}d^\dagger \mathcal{D}\phi e^{-S-S'[\Delta, U_{\text{dyn}}]} \quad (\text{E.26})$$

$$\begin{aligned} S'[\Delta, U_{\text{dyn}}] &= \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_{i\sigma} \Delta(\tau - \tau') \left[d_{i\sigma}^\dagger(\tau) d_{i\sigma}(\tau') - G_{\text{loc}}(\tau' - \tau) \right] \\ &\quad - \frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_i U_{\text{dyn}}(\tau - \tau') [\phi_i(\tau) \phi_i(\tau') - W_{\text{loc}}(\tau' - \tau)] \end{aligned} \quad (\text{E.27})$$

donnant les équations d'équilibre :

$$G_{\text{loc}}(\tau - \tau') = \left\langle d_{i\sigma}^\dagger(\tau') d_{i\sigma}(\tau) \right\rangle_{|\Delta, U_{\text{dyn}}} \quad (\text{E.28})$$

$$W_{\text{loc}}(\tau - \tau') = \left\langle \phi_i(\tau') \phi_i(\tau) \right\rangle_{|\Delta, U_{\text{dyn}}} \quad (\text{E.29})$$

que l'on peut inverser pour tirer $\Delta = \Delta[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}]$ et $U_{\text{dyn}} = U_{\text{dyn}}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}]$. On obtient ainsi la fonctionnelle recherchée :

$$\Gamma[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] = F\left[\Delta[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}], U_{\text{dyn}}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}]\right] \quad (\text{E.30})$$

E.2. SECONDE FORMULATION

Essayons d'évaluer tout d'abord cette fonctionnelle à $\alpha = 0$ (voir l'équation (E.25)). Dans ce cas, le problème reste compliqué, puisqu'il se réduit justement ¹ à l'action EDMFT (E.15) ! L'apparition du modèle d'impureté (5.22) est donc très naturelle puisqu'il s'agit tout simplement d'une manière commode de représenter les fonctions de corrélation locales du problème. On a donc :

$$\begin{aligned} \Gamma_{|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] &= F_{\text{imp}} \left[\Delta_{|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}], U_{\text{dyn}|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] \right] \\ &\quad - 2\text{Tr} \left(G_{\text{loc}} \Delta_{|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] \right) + \frac{1}{2} \text{Tr} \left(W_{\text{loc}} U_{\text{dyn}|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] \right) \end{aligned} \quad (\text{E.31})$$

avec F_{imp} l'énergie libre du modèle d'impureté (E.15), et où on a inversé les relations (E.28-E.29) entre $(G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}})$ et (Δ, U_{dyn}) à $\alpha = 0$ (dans le modèle d'impureté).

On aboutit à la fonctionnelle complète en considérant comme précédemment sa dérivée par rapport à α :

$$\frac{d\Gamma}{d\alpha} = \sum_{ij} \frac{1}{2} U_{ij}^{-1} \langle \phi_i \phi_j \rangle - \sum_{ij\sigma} t_{ij} \langle d_{i\sigma}^\dagger d_{j\sigma} \rangle \quad (\text{E.32})$$

de manière que :

$$\Gamma[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] = \Gamma_{|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] + \text{Tr} \int_0^1 d\alpha \, 2 \sum_k \epsilon_k G(k) + \frac{1}{2} \sum_k U_k^{-1} W(k) \quad (\text{E.33})$$

□ Approximation EDMFT

Pour construire la fonctionnelle de manière approchée, on choisit d'introduire une self-énergie et polarisation locales :

$$G^{-1}(k, i\omega) = i\omega - \Delta_{|\alpha} - \alpha \epsilon_k - \Sigma[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] \quad (\text{E.34})$$

$$W^{-1}(k, i\omega) = U_{\text{dyn}|\alpha}^{-1} + \alpha U_k^{-1} - P[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] \quad (\text{E.35})$$

$$(\text{E.36})$$

avec :

$$\Sigma[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] = i\omega - \Delta_{|\alpha=0} - G_{\text{loc}}^{-1} \quad (\text{E.37})$$

$$P[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] = U_{\text{dyn}|\alpha=0}^{-1} - W_{\text{loc}}^{-1} \quad (\text{E.38})$$

Ceci donne une relation explicite entre $(G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}})$ et $(\Delta_{|\alpha}, U_{\text{dyn}|\alpha})$ pour α quelconque, par les équations :

$$G_{\text{loc}} = \sum_k \frac{1}{G_{\text{loc}}^{-1} + \Delta_{|\alpha=0} - \Delta_{|\alpha} - \alpha \epsilon_k} \quad (\text{E.39})$$

$$W_{\text{loc}} = \sum_k \frac{1}{W_{\text{loc}}^{-1} - U_{\text{dyn}|\alpha=0} + U_{\text{dyn}|\alpha} + \alpha U_k^{-1}} \quad (\text{E.40})$$

¹Les notations Δ et U_{dyn} ont été évidemment introduites dans ce but.

que l'on inverse en :

$$\Delta_{|\alpha} = \Delta_{|\alpha=0} + G_{\text{loc}}^{-1} - \alpha R_{\epsilon}[\alpha G_{\text{loc}}] \quad (\text{E.41})$$

$$U_{\text{dyn}|\alpha} = U_{\text{dyn}|\alpha=0} - W_{\text{loc}}^{-1} + \alpha R_{U^{-1}}[\alpha W_{\text{loc}}] \quad (\text{E.42})$$

$$(\text{E.43})$$

où R_{ϵ} (resp. $R_{U^{-1}}$) est la réciproque de la transformée de Hilbert de la densité d'états associée à ϵ_k (resp. U_k^{-1}). En injectant ceci dans (E.33) et en réduisant l'expression obtenue, on trouve :

$$\begin{aligned} \Gamma_{\text{EMDFT}}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] &= F_{\text{imp}} \left[\Delta_{|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}], U_{\text{dyn}|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] \right] \\ &\quad - 2\text{Tr} \left(G_{\text{loc}} \Delta_{|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] \right) + \frac{1}{2} \text{Tr} \left(W_{\text{loc}} U_{\text{dyn}|\alpha=0}[G_{\text{loc}}, W_{\text{loc}}] \right) \\ &\quad + \int d\alpha G_{\text{loc}} R_{\epsilon}[\alpha G_{\text{loc}}] + \frac{1}{2} W_{\text{loc}} R_{U^{-1}}[\alpha W_{\text{loc}}] \end{aligned} \quad (\text{E.44})$$

On a donc une expression complètement explicite de la fonctionnelle des propagateurs locaux (dans une approximation de self-énergie et polarisation locales). En minimisant cette fonctionnelle par rapport à G_{loc} et W_{loc} , on arrive directement aux équations EDMFT :

$$G_{\text{loc}} = \sum_k \frac{1}{G_{\text{loc}}^{-1} + \Delta_{|\alpha=0} - \epsilon_k} \quad (\text{E.45})$$

$$W_{\text{loc}} = \sum_k \frac{1}{W_{\text{loc}}^{-1} - U_{\text{dyn}|\alpha=0} + U_k^{-1}} \quad (\text{E.46})$$

en remarquant que $\Delta_{|\alpha=0}$ et $U_{\text{dyn}|\alpha=0}$ sont calculés par définition dans le problème d'impureté.

Liste de publications

1. A. Georges, R. Siddharthan et S. Florens, “Dynamical mean-field theory of resonating valence bond antiferromagnets”, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 277203 (2001).
2. S. Florens et A. Georges, “Quantum impurity solvers using a slave rotor representation”, *Phys. Rev. B* **66**, 165111 (2002).
3. S. Florens, A. Georges, G. Kotliar et O. Parcollet, “Mott transition at large orbital degeneracy : dynamical mean-field theory”, *Phys. Rev. B* **66**, 205102 (2002).
4. L. Perfetti, A. Georges, S. Florens, S. Biermann, S. Mitrovic, Y. Tomm, H. Höchst et M. Grioni, “Spectroscopic signatures of a bandwidth-controlled Mott transition at the surface of 1T-TaSe₂”, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 166401 (2003).
5. P. Limelette, P. Wzietek, S. Florens, A. Georges, T. A. Costi, C. Pasquier, D. Jérôme, C. Mezière, P. Batail, “Mott transition and transport crossovers in the organic compound κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl”, *Phys. Rev. Lett.* **91** 16401 (2003).
6. S. Pankov, S. Florens, A. Georges, G. Kotliar, S. Sachdev, “Non-Fermi liquid behavior from two-dimensional antiferromagnetic fluctuations : a renormalization-group and large- N analysis”, *Phys. Rev. B* **69**, 054426 (2004).
7. S. Florens, P. San José, F. Guinea et A. Georges, “Coherence and Coulomb blockade in quantum dots : a unified perspective”, *Phys. Rev. B* **68**, 245311 (2003)
8. S. Florens, L. de' Medici et A. Georges, “Frequency-dependant Hubbard interaction and screening in the extended dynamical mean-field theory”, en préparation.
9. S. Florens et A. Georges, “Slave-rotor mean field theories for strongly correlated systems and the Mott transition in finite dimension”, en préparation.