



HAL
open science

Théories de champ moyen pour les systèmes d'électrons à fortes corrélations

Sébastien Burdin

► **To cite this version:**

Sébastien Burdin. Théories de champ moyen pour les systèmes d'électrons à fortes corrélations. Electrons fortement corrélés [cond-mat.str-el]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2012. tel-00711167

HAL Id: tel-00711167

<https://theses.hal.science/tel-00711167>

Submitted on 22 Jun 2012

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 Bordeaux 1

Théories de champ moyen pour les systèmes d'électrons à fortes corrélations

Mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches

Sébastien BURDIN

soutenu le 1^{er} Juin 2012

Jury composé de :

Alexandre BOUZDINE

Jean-Pascal BRISON - Président de soutenance

Christoph GEIBEL - Rapporteur

Claudine LACROIX

Marcelo ROZENBERG - Rapporteur

Tim ZIMAN - Rapporteur

Laboratoire Ondes Matière d'Aquitaine, UMR 5798

Table des matières

1	Systèmes, modèles et mécanismes standards d'impuretés quantiques	1
1.1	Impuretés artificielles	1
1.2	Matériaux à électrons corrélés	1
1.2.1	Exemple : la chimie des composés de fermions lourds	2
1.2.2	Quelques mécanismes et modèles standards	2
1.2.3	Exemple de compétition entre liquide de Fermi, transition de Mott, et magnétisme	3
	Motivation	4
	Méthode : bosons esclaves rotationnellement invariants	5
	Résultats	6
1.3	Conclusion	7
2	Echelles d'énergie des réseaux Kondo : perspective champ moyen	9
2.1	Introduction	9
2.2	Formalisme champ moyen	13
2.3	Variations contrôlables de T_0 et de T_K	15
2.3.1	Effets d'une variation du remplissage électronique	15
2.3.2	Effets liés à la forme de la densité d'états	17
2.3.3	Effets de la substitution d'ions magnétiques	18
2.4	Destruction de la phase Kondo	20
2.4.1	Effet d'un champ magnétique	20
2.4.2	Effet de l'interaction RKKY	21
	Diagramme de phase général d'un système Kondo	24
2.5	Conclusions	25
3	Phases (non-)magnétiques quantiques non conventionnelles	29
3.1	Système métallique frustré LiV_2O_4 : exemple de liquide de spin	30
3.1.1	Description du composé LiV_2O_4	30
3.1.2	Modèle phénoménologique, prédictions du champ moyen	31
3.1.3	Diagonalisation exacte d'un petit cluster frustré	32
3.1.4	Conclusion	32
3.2	Ordre caché dans URu_2Si_2 : le liquide de spin modulé	33
3.2.1	Apperçu de l'état de l'art sur URu_2Si_2	33
3.2.2	Criticalité quantique et émergence du liquide de spin modulé	34
	Contexte général	34

	Compétition entre Kondo et RKKY : QCP et liquide de spin	35
	Connection entre QCP Kondo, et URu_2Si_2	36
	Le liquide de spin modulé et URu_2Si_2	37
3.2.3	Liquide de spin modulé : un modèle simplifié sur réseau carré	37
3.2.4	Liquide de spin modulé : réseau 3D réaliste, tétragonal centré	39
3.2.5	Conclusion	42
3.3	Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin	42
3.3.1	Modèle et méthode des opérateurs de liens	44
3.3.2	Modèles de dimères, interaction cubique, et criticalité quantique	45
3.3.3	Description de la phase ordonnée	47
	Transformation unitaire pour opérateurs de liens	47
	Comparaison avec les méthodes d'ondes de spin	49
3.3.4	Conclusion et perspectives	50
4	Désordre, alliages, ou fluctuations mésoscopiques	51
4.1	Eléments préliminaires	51
4.1.1	Méthode DMFT	51
	Introduction à la méthode DMFT	52
	Exemple simplifié d'implémentation de la méthode DMFT	52
4.1.2	Désordre, alliages, et fluctuations mésoscopiques : le point de vue des impuretés	56
4.2	DMFT et désordre : verre, ondes, et liquides de spin	57
4.2.1	Modèle étudié et méthode développée	57
	Désordre et méthode des répliques	58
	Développement DMFT pour le système désordonné	60
	Relations DMFT auto-consistantes obtenues pour le système moyenné	62
	Critères d'instabilités magnétiques de cette solution paramagnétique	62
	Commentaires	63
4.2.2	Résultats obtenus	63
	Diagramme de phase général et analyse dimensionnelle	63
	Etude numérique pour deux réalisations particulières : $D=2$ et $D=3$	65
4.2.3	Conclusion, perspectives	67
4.3	DMFT/CPA matricielle (alliages Kondo)	67
4.3.1	Le modèle d'alliage Kondo aléatoire étudié	68
4.3.2	Méthode DMFT matricielle développée	69
	Relations auto-consistantes obtenues pour le système moyenné	71
	Self-énergie locale et corrélations spatiales	71
4.3.3	Résultats obtenus	72
	Aléatoirité non diagonale	72
	Aléatoirité diagonale	72
	Deux effets aléatoires simultanés	74
4.3.4	Conclusion, perspectives	75
4.4	Bosons esclaves et théorie des Matrices Aléatoires (systèmes chaotiques)	76
4.4.1	Système, modèle : boîte Kondo mésoscopique (chaotique ou non)	76
4.4.2	Modèle et méthode	77

4.4.3	Système mésoscopique idéalisé (<i>i.e.</i> , non-chaotique)	78
4.4.4	Système mésoscopique chaotique : résultats obtenus	80
	Température de Kondo	80
	Susceptibilité magnétique et nombre de Wilson	81
	Conductance	81
	Connexion entre les régimes de liquides de Fermi $T > T_K$ et $T \ll T_K$	82
4.4.5	Conclusion de la section boîte Kondo chaotique	84
4.5	Conclusion, perspectives	84

5 Perspectives 85

Avant-propos

Ce mémoire d'habilitation à diriger les recherches présente des théories de champ moyen que j'ai appliquées à l'étude de systèmes d'électrons à fortes corrélations. Il s'appuie sur des travaux que j'ai effectués, pour certains dans la continuité de ma thèse, pour d'autres dans des directions nouvelles. L'une des problématiques centrales est celle des transitions de phases quantiques, et les systèmes considérés ont le point commun de décrire des impuretés quantiques, réelles ou artificielles. Les différentes méthodes de champ moyen utilisées sont présentées par des exemples dans le cadre de problèmes physiques particuliers. Après un premier chapitre introductif fortement focalisé sur l'exemple des composés d'électrons f , ce mémoire est structuré en trois chapitres principaux connectés respectivement aux trois thématiques suivantes : les composés Kondo, les liquides de spin, et les systèmes désordonnés.

Différentes contraintes m'ont conduit à l'utilisation de notations pouvant varier d'une section à l'autre. De même, certains symboles peuvent avoir des significations différentes selon le contexte. Par ailleurs, pour ne pas perdre en clarté, quelques anglicismes inévitables, tels que *crossover* ou *scaling*, n'ont volontairement pas été traduits par des périphrases.

Les travaux présentés ici s'appuient sur les publications suivantes (afin de préserver la cohérence thématique, certaines de mes publications ne sont pas discutées dans ce mémoire) :

Chapitre 1 : Systèmes, modèles et mécanismes standards d'impuretés quantiques

[1] *Local, non-local duality of $5f$ electrons in actinide compounds*,
A. Le Duc, S. Burdin, G. Zwirgmaier, and P. Fulde, en préparation.

Chapitre 2 : Echelles d'énergie des réseaux Kondo : perspective champ moyen

Ce chapitre est une traduction actualisée et complétée, issue de l'article de revue :

[2] *Low energy scales of Kondo lattices : mean-field perspective*,
S. Burdin, in *Properties and Applications of Thermoelectric Materials*, edited by V. Zlatic and A. Hewson (NATO Science for Peace and Security Series B (9), 2009) p. 325, (arXiv :0903.1942).

Les autres articles auxquels il se réfère sont :

[3] *Coherence scale of the Kondo lattice*,
S. Burdin, A. Georges, and D.R. Grempel, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1048 (2000).

[4] *Heavy-fermion and spin-liquid behavior in a Kondo lattice with magnetic frustration*,
S. Burdin, D.R. Grempel, and A. Georges, *Phys. Rev. B* **66**, 045111 (2002).

[5] *A large- N analysis of the local quantum critical point and the spin-liquid phase*, S. Burdin, M. Grilli, and D.R. Grempel, Phys. Rev. B **67**, 121104 (2003).

[6] *Random Kondo alloys*, S. Burdin and P. Fulde, Phys. Rev. B **76**, 104425 (2007).

[7] *Multiple temperature scales of the periodic Anderson model : the slave bosons approach*, S. Burdin and V. Zlatiç, Phys. Rev. B **79**, 115139 (2009).

Chapitre 3 : Phases (non-)magnétiques quantiques non conventionnelles

Références [4] et [5], en lien avec le chapitre 2.

[8] *Electronic states and magnetic excitations in LiV_2O_4 : exact diagonalization study*, S. Burdin, N. Perkins, and C. Lacroix, J. Phys. : Condens. Matter **16**, S621 (2004).

[9] *Modulated Spin Liquid : A New Paradigm for URu_2Si_2* , C. Pépin, M.R. Norman, S. Burdin, and A. Ferraz, Phys. Rev. Lett. **106**, 106601 (2011).

[10] *Hidden Order in URu_2Si_2 and Three-dimensional Modulated Spin Liquid*, C. Thomas, S. Burdin, A. Ferraz, and C. Pépin, en préparation.

[11] *Cubic interactions and quantum criticality in dimerized antiferromagnets*, L. Fritz, R.L. Doretto, S. Wessel, S. Wenzel, S. Burdin, and M. Vojta, Phys. Rev. B **83**, 174416 (2011).

Chapitre 4 : Désordre, alliages, ou fluctuations mésoscopiques

Références [4] et [6], en lien avec le chapitre 2.

[12] *Disorder effect in the quantum Heisenberg model : An Extended Dynamical mean-field theory analysis*,

S. Burdin, M. Grilli, and D.R. Grempel, Phys. Rev. B **75**, 224423 (2007).

[13] *Mesoscopic Kondo box : A mean-field approach*, R. Bedrich, S. Burdin, and M. Hentschel, Phys. Rev. B **81**, 174406 (2010).

[14] *Kondo effect and mesoscopic fluctuations*, D. Ullmo, S. Burdin, D.E. Liu, and H.U. Baranger, Pramana Journal of Physics **77**, 769 (2011).

[15] *From Weak- to Strong-Coupling Mesoscopic Fermi Liquids*, D. Liu, S. Burdin, H.U. Barranger, and D. Ullmo, Eur. Phys. Lett. **97**, 17006 (2012).

[16] *Mesoscopic Anderson Box : Connecting Weak to Strong Coupling*, D. Liu, S. Burdin, D. Ullmo, and H.U. Barranger, Phys. Rev. B **85**, 155455 (2012).

Chapitre 1

Systemes, modèles et mécanismes standards d'impuretés quantiques

Ce chapitre introductif passe brièvement en revue quelques modèles généraux et mécanismes communs aux deux familles de systèmes physiques, matériaux massifs et nano-structures, décrits dans ce mémoire.

1.1 Impuretés artificielles

Un bon nombre de phénomènes et mécanismes apparaissant dans les matériaux massifs, tels que ceux décrits dans la section suivante, possèdent des analogues dans d'autres familles de systèmes corrélés. Ainsi, les modèles d'impuretés quantiques développés et étudiés initialement pour des systèmes macroscopiques d'électrons corrélés peuvent s'adapter pour décrire d'autres systèmes d'impuretés artificielles. Parmi les exemples les plus fascinants, les boîtes quantiques, étudiées dans la section 4.4 sous l'angle du chaos et de l'effet Kondo, offrent des applications technologiques dans le domaine de la nano-électronique. Un autre champ d'application des modèles d'impuretés artificielles s'est aussi ouvert plus récemment, par les systèmes d'atomes froids ; les études présentées dans ce mémoire pourraient d'ici peu devenir pertinentes pour ce domaine de recherche en pleine évolution.

1.2 Matériaux à électrons corrélés

Les matériaux à électrons corrélés incluent tous les composés solides, éventuellement cristallins, alliages désordonnés ou réseaux périodiques, tous les systèmes macroscopiques d'électrons dont la fonction d'onde quantique ne peut être décrite que collectivement. Microscopiquement, l'apparition d'états quantiques d'électrons corrélés résulte du concept de spin et du principe d'exclusion introduits par Pauli, et de l'interaction de Coulomb, qui empêche les électrons d'être spatialement trop rapprochés. Cette répulsion entre électrons, en compétition avec l'attraction, coulombienne elle aussi, par les noyaux atomiques, génère la formation de moments magnétiques locaux. Ce phénomène très général est observé dans de nombreux matériaux à électrons d , contenant par exemple des métaux de transition tels que le vanadium, le chrome ou le cuivre, ou à électrons f , à base de lanthanides comme l'ytterbium et le

1.2 Matériaux à électrons corrélés

cérium, ou d'actinides comme l'uranium et le plutonium. A basse température, en vertu du principe thermodynamique de Nernst, ces composés écrantent leurs moments magnétiques locaux, en formant un état quantique macroscopique corrélé.

1.2.1 Exemple : la chimie des composés de fermions lourds

Les composés de fermions lourds rassemblent presque exclusivement l'ensemble des systèmes à électrons f corrélés¹. Leur nom générique, fermions lourds, provient des propriétés de liquide de Fermi qui leur sont souvent caractéristiques, associées à une masse effective de l'ordre d'une centaine de fois la masse de l'électron. Mais dans bien des cas, les fermions lourds ne sont des liquides de Fermi que dans certaines parties de leur diagramme de phase, qui présentent une grande diversité de phases. Chimiquement, les électrons f possèdent une grande dégénérescence, orbitale ($l = 3$) et de spin ($s = 1/2$). Au niveau de chaque atome, plusieurs mécanismes permettent de réduire ce nombre de degrés de liberté. D'une part, le grand couplage spin-orbite, combiné avec une énergie locale coulombienne et de Hund relativement plus faible (comparativement au cas des lanthanides), peut séparer les niveaux $5f$ des actinides en deux sous secteurs, le moment total $j = 5/2$ étant énergétiquement plus favorable que $j = 7/2$. Le champ électrique cristallin lève aussi une bonne partie de la dégénérescence orbitale, à des températures typiques de l'ordre de la centaine de Kelvin. Dans des lanthanides, l'unique électron $4f^1$ ou l'unique trou $4f^{13}$ des atomes tels que Ce ou Yb, se comporte à basse température plus ou moins comme un moment magnétique de spin quantique $1/2$. Dans d'autres composés, comportant plusieurs électrons f , comme par exemple les composés à base d'uranium, le couplage de Hund entre les électrons intervient aussi pour former éventuellement des moments effectifs supérieurs à $1/2$.

1.2.2 Quelques mécanismes et modèles standards

Nous listons ici, sans prétendre à l'exhaustivité, quelques phénomènes standards présents dans les systèmes d'électrons corrélés et pertinents pour la suite de ce mémoire.

Le gel de l'entropie à basse température nécessite d'écranter les moments magnétiques locaux formés généralement par les orbitales f ou d . Pour cela, plusieurs mécanismes microscopiques peuvent entrer en compétition : d'une part, le spin ou le pseudo-spin électronique porté par chaque atome magnétique peut former un état singulet avec les électrons de conduction du système si celui-ci est métallique, on parle alors d'effet Kondo². D'autre part, les moments magnétiques peuvent s'écranter entre eux, à distance, par une interaction médiée par les électrons de conduction via le mécanisme de Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) [18–20], ou médiée par les orbitales des autres atomes via le mécanisme de super-échange. Les interactions magnétiques à distance peuvent aussi émerger plus subtilement des fluctuations de charges dans des composés à forte répulsion coulombienne, par le mécanisme de Mott-Hubbard [21–26]. Par ailleurs, le gel de l'entropie magnétique dans les systèmes d'électrons corrélés peut s'accompagner de la formation d'un état supraconducteur, comme décrit par Anderson [27].

1. voir cependant la section 3.1 pour un contre exemple

2. voir notamment le chapitre 2 de ce mémoire, et Réf. [17]

Parallèlement aux mécanismes d'écran des moments magnétiques qu'elle peut générer, la transition de Mott (-Hubbard) a la particularité de n'être associée à aucune brisure de symétrie standard. Dans un composé multi-orbital comme les fermions-lourds, la transition de Mott peut devenir partielle, et ne concerner qu'une partie des degrés de liberté de charge, l'autre partie restant conductrice. Cette question est abordée dans la section 1.2.3, ainsi que, sous des angles variés, dans les différents chapitres de ce mémoire.

1.2.3 Exemple de compétition entre liquide de Fermi, transition de Mott, et magnétisme

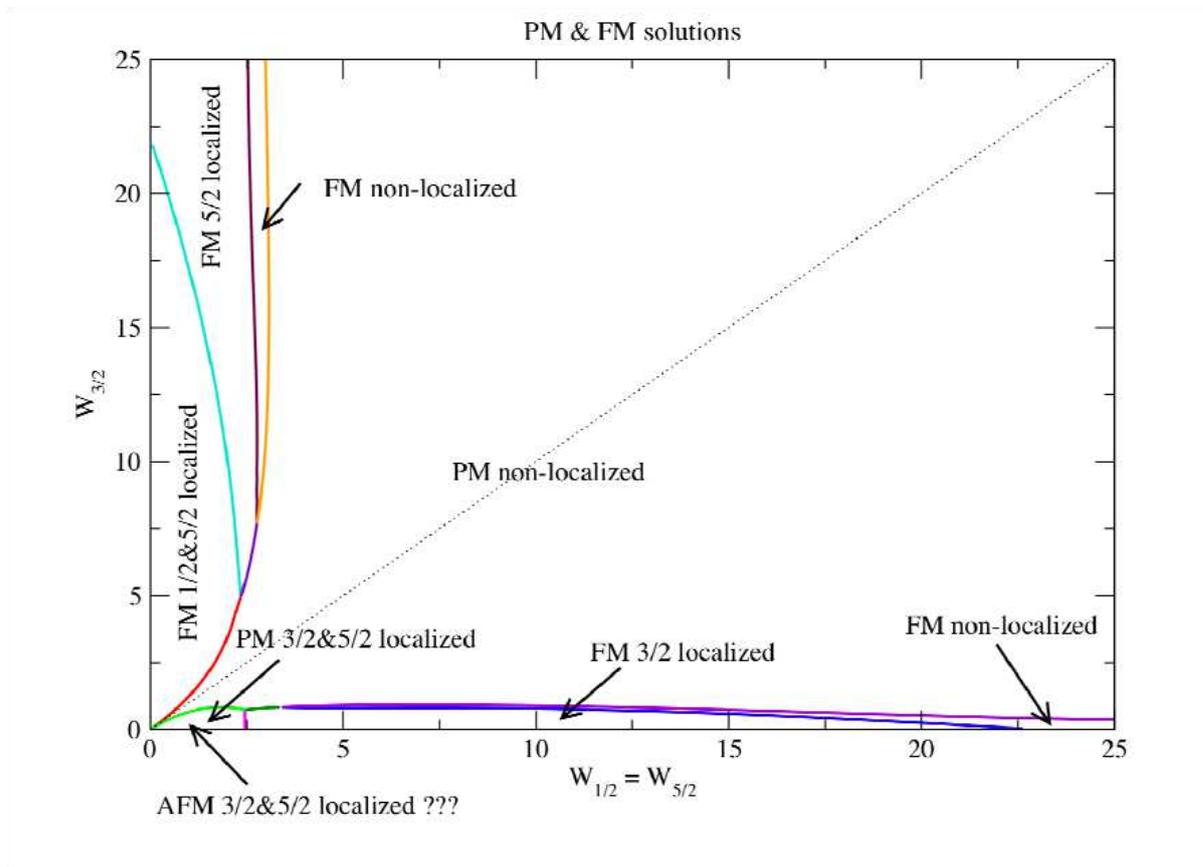


FIGURE 1.1 – Diagramme de phase du modèle dual obtenu par la méthode des bosons esclaves rotationnellement invariants. PM et FM dénotent respectivement des phases paramagnétiques et ferromagnétiques. Pour chaque phase, la valeur du moment j_z des orbitales localisées est spécifiée. W_{j_z} indique la valeur du terme d'échange électronique (en eV) inter-site caractérisant les orbitales $\pm j_z$. Pour les valeurs numériques, les énergies d'interaction locales correspondent aux valeurs obtenues par un calcul *ab initio* LDA [28]. La ligne pointillée indique la situation d'un modèle qui serait parfaitement isotrope. Figure d'après [1, 29].

Afin d'illustrer la compétition entre les différents mécanismes microscopiques de gel d'entropie mis en jeu dans les systèmes d'électrons corrélés, cette section présente une étude,

1.2 Matériaux à électrons corrélés

par une approche champ moyen, de la dualité locales/non-locales des orbitales f dans des composés d'actinides.

Motivation

Les matériaux composés d'atomes d'actinides peuvent présenter des propriétés non triviales à basse température, telles que supraconductivité non conventionnelle [30–33] (ex : UPt₃, PuCoGa₅, UGe₂, URhGe, UCoGe) et/ou ordre magnétique, en lien avec un comportement de type fermion lourd. Ces systèmes sont caractérisés par une occupation électronique partielle des orbitales $5f$. Expérimentalement, pour la plupart de ces composés, on distingue deux caractéristiques bien définies : pour les composés d'actinides les plus légers, les électrons des orbitales $5f$ sont délocalisés, alors que pour les composés plus lourds, les électrons $5f$ demeurent localisés. La frontière entre ces deux régimes est formée par le plutonium, les électrons $5f$ de ce composé pouvant présenter soit un caractère localisé, soit un caractère délocalisé. En principe, les composés d'uranium font partie des actinides légers, ou plutôt, faiblement occupés en électrons $5f$, et on devrait s'attendre à ce que ces derniers soient bien délocalisés. Cependant, certains alliages constitués d'atomes d'uranium présentent un caractère dual, c'est-à-dire à la fois local et non local.

Le caractère local (ex : UPd₃), non local (ex : UPt₃), ou dual (ex : UPd₂Al₃) des électrons des orbitales $5f$ est un élément crucial pour comprendre les propriétés non conventionnelles de ces matériaux à basse température. Il peut changer sous l'effet de la pression, et être caractérisé par exemple par des expériences de diffusion de neutrons. Plus récemment, des expériences de diffusion inélastiques de rayons X ont permis d'obtenir, pour différents composés d'actinides, des spectres d'excitation électronique orbitalement sélectifs, et d'étudier la localisation (ou délocalisation) des orbitales $5f$ sous l'effet de la pression [34]. Pour des composés tels que UPd₂Al₃, le lien entre la dualité des orbitales $5f$ et la structure électronique peut aussi être étudié par photo-émission [35].

Parmi ces systèmes, le composé UPt₃ a fait l'objet de nombreuses expériences. Par exemple, des mesures de chaleur spécifique, de susceptibilité magnétique, ou de Haas van Alphen montrent que ce système se comporte comme un fermion lourd, caractérisé par une très forte masse effective. Cependant, des calculs *ab initio* basés sur la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT) prédisent une masse effective inférieure d'un facteur 20 à celle mesurée expérimentalement [28]. Cette grande différence illustre l'impossibilité des approximations de type DFT à prendre en compte l'effet des corrélations électroniques, fortes dans ces composés. Des approches théoriques alternatives ou complémentaires doivent être adoptées, afin d'expliquer quantitativement cette augmentation de masse effective. Un autre système, UPd₂Al₃, présente des propriétés de type fermion lourd similaires [36]. Aussi, pour ce composé, des expériences de diffusion inélastique de neutrons ont mis en évidence l'existence de moments magnétiques locaux non nuls, mais de valeur inférieure à celle qui serait obtenue par le seul effet du couplage de Hund. Ce résultat suggère que pour UPd₂Al₃, les orbitales $5f$ présentent simultanément un caractère local, puisque des moments magnétiques sont mesurés, et un caractère non local, puisque la valeur de ces moments n'est pas maximale. Notons que U(C₈H₈)₂ semblerait aussi présenter des propriétés de dualité [37], mais peu d'expériences ont encore été réalisées pour ces composés. Par ailleurs, la question de la dualité pourrait être abordée pour les composés de la famille UGe₂, ainsi que pour URu₂Si₂, étudié

au chapitre 3.

G. Zwicknagl et P. Fulde ont proposé un mécanisme microscopique pour UPt_3 , en supposant que deux parmi les trois électrons $5f$ sont localisés. Dans ce scénario, l'augmentation de la masse effective résulte de la répulsion coulombienne locale entre les électrons f délocalisés et les électrons f localisés [38]. Microscopiquement, la localisation de certaines orbitales est liée aux corrélations électroniques locales. Ce mécanisme est décrit par un modèle, appelé modèle dual, qui constitue une généralisation multi-orbitale du modèle de Hubbard [38] ; les électrons f sont caractérisés simultanément par une énergie d'échange entre sites voisins, une répulsion coulombienne et un couplage de Hund locaux. En supposant que le couplage spin-orbite est grand, la dégénérescence orbitale des électrons $5f$ peut être réduite à 6 degrés de liberté au lieu de 14. En étudiant le modèle dual par diagonalisation exacte d'un système de taille finie [28], G. Zwicknagl et P. Fulde ont montré qu'une légère asymétrie orbitale de l'énergie d'échange électronique entre voisins peut provoquer une localisation partielle des électrons, dans un état ne correspondant pas à celui qui serait favorisé par le seul couplage de Hund. Ce mécanisme est à l'origine des propriétés des alliages d'uranium décrites précédemment. Dans le cadre de la thèse de Anh Duc Le, co-encadrée par P. Fulde, nous avons testé la validité de ce résultat dans la limite thermodynamique en utilisant une approche numérique basée sur une généralisation de l'approximation des bosons esclaves [1, 29] : la méthode des bosons esclaves rotationnellement invariants [39].

Avant de décrire les résultats obtenus sur le problème de la dualité, nous présentons, dans ce chapitre introductif, l'état de l'art sur les méthodes de bosons esclaves. En effet, celles-ci constituent un pilier important des théories de champ moyen utilisées pour étudier les systèmes d'électrons corrélés. La version rotationnellement invariante en étant, comme nous allons le voir, l'adaptation la plus générale de l'approximation des bosons esclaves.

Méthode : bosons esclaves rotationnellement invariants

Initialement, la méthode des bosons esclaves avait été introduite pour le modèle de Anderson, avec une dégénérescence égale à deux (*i.e.*, dégénérescence de spin) [40]. Par la suite, cette méthode a été améliorée et adaptée au modèle de Hubbard [41]. Pour ce modèle, l'interaction locale se limite au terme *densité-densité* : $Un_{f\uparrow}n_{f\downarrow}$. L'approche par les bosons esclaves fournit une bonne description des propriétés de basse température, dans le régime de liquide de Fermi : les excitations sont décrites comme des excitations effectives de fermions sans interaction ayant une masse effective renormalisée. Les interactions sont simplement prises en compte par une renormalisation du terme d'échange électronique, $t \mapsto Zt$, où Z est le résidu de quasi-particule. Plusieurs travaux ultérieurs ont tenté de généraliser cette approche à des modèles de Hubbard ayant une dégénérescence $N > 2$. La généralisation la plus naturelle peut être obtenue de la manière suivante [42, 43] : l'espace de Hilbert local décrivant des électrons f pouvant avoir N couleurs (*i.e.*, degrés de liberté de spin et d'orbite) est projeté sur un espace de Hilbert décrivant des fermions auxiliaires (avec N couleurs), et $2N$ bosons auxiliaires (aussi appelés bosons esclaves). Chacun de ces bosons auxiliaires est associé à un état de Fock, formé par les électrons f . L'espace de Hilbert auxiliaire ainsi construit comporte des états non physiques qui sont éliminés en introduisant une contrainte, qui impose que chaque site est occupé par un boson unique. Les bosons sont alors considérés par une approximation de champ moyen, et les opérateurs de résidus de quasiparticules sont rempla-

1.2 Matériaux à électrons corrélés

cés par leurs valeurs moyennes. Cette approche fournit une bonne description qualitative et quantitative de l'effet des corrélations lorsque l'interaction locale est de type densité-densité. Par contre, elle ne permet pas de tenir compte, au niveau champ moyen, des termes locaux de type couplage de Hund. Une méthode de bosons esclaves alternative a été proposée : N fermions auxiliaires et $2N$ bosons sont introduits, mais les bosons sont désormais associés aux états multiplets locaux, qui, contrairement aux états de Fock, sont des états propres de l'interaction locale. Ainsi, le traitement des bosons auxiliaires par l'approximation du champ moyen est exact dans la limite atomique. Les deux approches bosons esclaves fournissent des résultats différents lorsque les bosons sont approximés par des champs moyens. Celle utilisant la base des états de Fock est plus appropriée à la description d'une phase dans laquelle les électrons sont délocalisés ; celle utilisant la base des états multiplets est plus appropriée pour décrire la localisation de certaines orbitales. Afin de tenir compte du caractère dual des électrons f , une méthode de bosons esclaves doit pouvoir généraliser simultanément les approches utilisant les bases des états de Fock et multiplets. Une telle méthode a été développée récemment, pour laquelle le résultat de l'approximation de champ moyen ne dépend pas du choix de la base de départ : les bosons esclaves rotationnellement invariants. Cette méthode nécessite d'introduire un boson, non plus pour chaque état, mais pour chaque paire d'états. Des considérations de symétrie permettent par la suite d'annuler certains de ces bosons sans perdre en généralité.

Résultats

Nous avons étudié le modèle dual par la méthode des bosons esclaves rotationnellement invariants, en considérant un remplissage électronique moyen de 2,5 électrons par site, caractéristique des composés d'uranium. Sous l'hypothèse d'un couplage spin-orbite infini, la dégénérescence orbitale est indexée par la valeur du moment orbital $j_z = -5/2, 5/2$. Le diagramme de phase est présenté figure 1.1. Nous l'avons obtenu numériquement en tenant compte de 118 paramètres de champs moyen. Une difficulté technique importante a consisté à résoudre un système d'équations non linéaires à 118 inconnues. Pour cela, nous sommes placés dans un premier temps dans des régimes de paramètres pour lesquels une solution physique simple pouvait servir d'Ansatz de départ.

Cette étude permet d'illustrer le fait que les interactions de Hund renforcent considérablement les anisotropies des énergies d'échange électronique inter-site. Pour certaines régimes de paramètres de largeur de bande $5f$, cet effet peut renormaliser très fortement la masse effective d'une partie des orbitales, jusqu'à la faire diverger. Une partie des composantes de l'orbitale $5f$ est alors localisée, pouvant former éventuellement un ordre magnétique. On parle alors de localisation de Mott orbitalement sélective. C'est le cas, par exemple des composantes $j_z = 1/2$ et $j_z = 5/2$, qui se localisent dans un état ferromagnétique lorsque l'anisotropie favorise la largeur de la troisième bande, $j_z = \pm 3/2$. Plus subtilement, lorsque l'anisotropie est au contraire défavorable à cette même bande $j_z = \pm 3/2$, celle-ci se localise avec les orbitales $j_z = \pm 5/2$, afin de satisfaire au mieux l'énergie de Hund.

1.3 Conclusion

L'exemple précédent permet d'illustrer l'efficacité des méthodes de champ moyen pour décrire des mécanismes non perturbatifs tels que la localisation (de Mott) partielle des électrons. Il montre aussi que le nombre de paramètres de champ moyen caractérisant un système peut facilement devenir relativement élevé. Il devient alors très important de bien identifier les champs pertinents pour la description d'un phénomène physique ou d'un mécanisme microscopique particulier. Ce mémoire présente, par des exemples variés, plusieurs théories de champs moyens appropriées à chacun des divers systèmes étudiés.

Chapitre 2

Echelles d'énergie des réseaux Kondo : perspective champ moyen

Ce chapitre passe en revue les propriétés à basse température des alliages Kondo, obtenues dans l'approximation du champ moyen, en se concentrant sur une étude des différentes échelles d'énergie. Notamment, les dépendances de la température de Kondo, T_K , et de l'énergie de cohérence du liquide de Fermi, T_0 , sont analysées en fonction du remplissage électronique, de la forme de la densité d'états des électrons de conduction libres, ainsi que de la concentration en moments magnétiques. Ces deux échelles peuvent s'annuler, donnant lieu à une rupture de l'effet Kondo, lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué. Une rupture de l'effet Kondo peut aussi être obtenue en incluant au modèle un terme de super-échange, qui décrit l'effet des corrélations magnétiques inter-sites, négligées au niveau du champ moyen.

2.1 Introduction

Les alliages constitués d'atomes de terres rares ou d'actinides possèdent généralement un diagramme de phase extrêmement riche à basse température, présentant des signatures de comportements de type fermions lourds, des phases magnétiques non-conventionnelles, au voisinage, bien souvent, de transitions supraconductrices elles aussi non-conventionnelles [44, 45]. A haute température, les principales propriétés physiques de ces systèmes sont bien reproduites par des modèles à une seule impureté, qui décrivent le couplage entre les électrons de conduction et un ion $4f$ ou $5f$. Pour des systèmes denses, les modèles à impureté unique ne permettent pas de décrire les propriétés de basse température, qui résultent de la formation d'un état cohérent non local. Dans ce(s) régime(s), les modèles avec réseau périodique d'ions f s'avèrent plus appropriés.

Ici, nous considérons plus spécifiquement des composés denses, pour lesquels l'orbitale f est décrite par un doublet de Kramers. Par exemple, cette situation est réalisée assez naturellement à basse température lorsque l'orbitale $4f$ est occupée par un électron (électrons $4f^1$ des alliages de Cérium), ou un trou (électrons $4f^{13}$ des alliages d'Ytterbium). La dégénérescence orbitale est dans ce cas levée par le champ cristallin. Plus généralement, cette situation peut aussi se produire pour d'autres occupations du niveau f , après avoir tenu compte du

2.1 Introduction

couplage spin-orbite (électrons $5f^5$ des alliages de Plutonium). Les orbitales f de ces impuretés sont modélisées par des spins locaux $S_i = 1/2$. Le système est ainsi décrit par le Hamiltonien du réseau Kondo,

$$H = \sum_{\mathbf{k}\sigma} (\epsilon_{\mathbf{k}} - \mu) c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} + J_K \sum_i \mathbf{s}_i \mathbf{S}_i, \quad (2.1)$$

où $c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$ ($c_{\mathbf{k}\sigma}$) décrit l'opérateur de création (annihilation) d'un électron de conduction de spin $\sigma = \uparrow, \downarrow$ et de moment \mathbf{k} . L'interaction Kondo résulte d'un couplage anti-ferromagnétique local J_K entre la densité de spin des électrons de conduction au site i , \mathbf{s}_i , et les impuretés Kondo, \mathbf{S}_i . Le potentiel chimique μ fixe le remplissage électronique à n_c électrons de conduction par site.

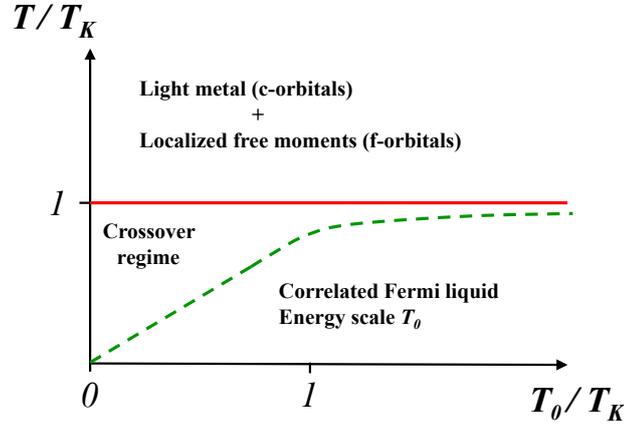


FIGURE 2.1 – Diagramme de phase schématique, en coordonnées température (T/T_K) - énergie de cohérence du liquide de Fermi (T_0/T_K). Figure d'après [7].

Le modèle Kondo a été étudié en détail depuis les dernières dizaines d'années [17]. A haute température, l'interaction Kondo peut être considérée comme une petite perturbation : les électrons de conduction et les ions Kondo sont faiblement couplés. Les propriétés de transport, déterminées par la bande de conduction, sont caractéristiques d'un métal normal. La susceptibilité magnétique du système, essentiellement déterminée par les moments Kondo presque libres, suit une loi de Curie-Weiss (*i.e.*, proportionnelle à l'inverse de la température, $\chi(T) \sim 1/T$). L'entropie est élevée, de l'ordre de $R \ln 2$ par site. La température de Kondo, T_K , caractérise un *crossover*, en dessous de laquelle l'interaction Kondo ne peut plus être traitée par des méthodes perturbatives. Les signatures expérimentales de ce *crossover* incluent, par exemple, une augmentation logarithmique de la résistivité lorsque la température décroît, une saturation de la susceptibilité magnétique statique, et une diminution significative de l'entropie. A basse température, si l'on néglige l'effet des instabilités magnétiques et supraconductrices, les propriétés physiques sont universelles et caractéristiques d'un liquide de Fermi lourd : la chaleur spécifique s'annule linéairement avec la température, $C_V(T) \approx \gamma T$; la susceptibilité magnétique locale, $\chi(T)$, ainsi que la résistivité varient

quadratiquement (*i.e.*, en T^2). Ce régime de basse température, liquide de Fermi, est caractérisé par une échelle d'énergie, la température de cohérence, T_0 , qui peut être déterminée de manière équivalente par une mesure de chaleur spécifique, via le coefficient de Sommerfeld, $T_0 \equiv 1/\gamma$, ou par la susceptibilité magnétique, $T_0 = \lim_{T \rightarrow 0} 1/\chi(T)$. La figure 2.1 décrit schématiquement le diagramme de phase du modèle, le réseau Kondo, en fonction de T_0/T_K . Ce rapport est considéré ici comme un paramètre ajustable, qui peut varier avec le remplissage électronique, la concentration en impuretés, le champ magnétique, ou la forme de la densité d'états des électrons de conduction.

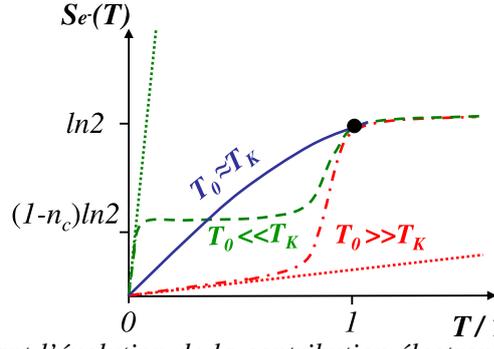


FIGURE 2.2 – Schéma illustrant l'évolution de la contribution électronique de l'entropie, S_{e^-} , en fonction de la température, T/T_K , pour trois situations : $T_0 \gg T_K$ (courbe rouge en tirets pointillés), $T_0 \approx T_K$ (courbe pleine bleue), et $T_0 \ll T_K$ (courbe verte en tirets). Les courbes pointillées indiquent le régime, linéaire, de liquide de Fermi, $S_{e^-}(T) = T/T_0$, avec une pente T_K/T_0 . Les trois situations différentes donnent une unique courbe pour $T > T_K$, reflétant la contribution linéaire de la bande de conduction $S_{e^-}(T) = \ln 2 + T/D$. Figure d'après [7]. Notons que l'évolution presque verticale de S_{e^-} en dessous de T/T_K n'est attendue que dans des cas très particuliers tels que ceux liés aux effets de la forme de la densité d'états (voir section 2.3.2), pour lesquels la signature du crossover Kondo peut évoquer une sorte de transition.

La détermination de T_0 et de T_K à partir de l'entropie est illustrée par la figure 2.2. Sur ce schéma illustratif, le point noir fait référence à une détermination expérimentale de T_K habituelle à partir de l'entropie : $S_{e^-}(T_K) = p \ln 2$. Le paramètre p choisi arbitrairement vaut ici $p = 1$, ce qui, dans une approche champ moyen, coïncide avec l'annulation de l'hybridation effective $r = 0$ définissant la température de transition T_K . Expérimentalement, ou au delà du champ moyen, T_K est un *crossover* et l'on peut choisir, par exemple, $p = 1/2$. Soulignons qu'une mesure thermodynamique permet de déterminer T_0 sans ambiguïté alors qu'elle ne fournit d'information sur T_K que lorsque l'effet Kondo est clairement prédominant devant les autres processus de gel d'entropie. En général, cela suppose que le système étudié soit suffisamment éloigné d'une phase ordonnée magnétiquement. La détermination expérimentale de T_K nécessite donc de confronter plusieurs quantités mesurées, thermodynamiques, mais aussi magnétiques, et de transport. Par ailleurs, la connexion entre T_0 et les propriétés de transport thermique et électrique ont été analysées par Zlatič *et al.* [46, 47]. Notons que les auteurs de Réf. [48] ont discuté à partir de données expérimentales le lien et les différences entre deux échelles d'énergie : l'une d'elles correspond à notre définition de la température de Kondo d'un réseau d'impuretés, T_K . La seconde est la température de Kondo d'une unique impureté diluée, qui, dans le cadre d'une approche champ moyen, est

2.1 Introduction

identique à celle du réseau dense d'impuretés. La température de cohérence T_0 que nous analysons ici n'est pas considérée dans Réf. [48].

Les propriétés physiques d'un système faiblement concentré en ions magnétiques sont universelles et caractérisées par une unique échelle d'énergie, $T_0 = T_K$. Cette identité entre les températures de cohérence et de Kondo est consistante avec la solution exacte du modèle Kondo à impureté unique. La situation est différente dans des systèmes denses, pour lesquels plusieurs échelles d'énergies différentes émergent. Par exemple, l'interaction magnétique entre impuretés, de Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY), peut s'opposer à l'effet Kondo. Lorsque son énergie caractéristique J_{RKKY} devient supérieure à T_K , le système Kondo dense peut préférer former un état magnétique ordonné et non plus un liquide de Fermi (lourd) [49].

Pendant longtemps on a pensé que la phase Kondo (liquide de Fermi) d'un système dense demeurerait universelle et caractérisée par une unique échelle d'énergie ; cela signifierait que l'énergie de cohérence du liquide de Fermi T_0 serait égale à la température de *crossover* Kondo T_K (modulo un facteur proportionnel à la constante de Boltzmann). Dans ce contexte, lorsque des expériences de photo-émission sur des composés de Cérium ont fait apparaître un désaccord avec l'universalité supposée être prédite par la théorie, des scénarii impliquant des phonons ont été proposés [50]. Par la suite, une controverse est apparue, remettant en question la capacité d'un modèle Kondo à décrire des expériences de spectroscopie de photo-émission réalisées sur le composé YbAl_3 [51–53]. Le mystère a désormais été élucidé [3, 54], puisque nous savons aujourd'hui que, pour un réseau Kondo, ou plus généralement pour un système Kondo dense en impuretés, T_0 diffère de T_K . Il peut ainsi en résulter un régime de températures intermédiaires dans lequel les propriétés du système ne sont plus universelles. Cette particularité du réseau Kondo a permis d'expliquer les expériences de photo-émission. Elle a par ailleurs été confirmée par d'autres résultats de mesures de susceptibilité magnétique, de constante de Hall, et de spectroscopie d'absorption de rayons X, effectuées sur plusieurs composés de cérium, $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ir}_2\text{Ge}_2$, $\text{CeIr}_{2-x}(\text{Rh,Pt})_x\text{Ge}_2$, $\text{CeIr}_2\text{Ge}_{2-x}(\text{Si,Sn})_x$ [55], CeNiSi_2 [56], et d'ytterbium, YbXCu_4 ($X=\text{Ag, Cd, In, Mg, Tl, Zn}$) [57], $\text{Yb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{Al}_3$ [58]. Le fait que T_0 puisse être significativement plus faible que T_K a été suggéré pour la première fois par Nozières, dans le contexte du problème de l'épuisement électronique [59, 60]. La première estimation de Nozières, bien que prédisant un résultat quantitativement faux [3, 54], a eu l'intérêt de susciter des études théoriques complémentaires pertinentes pour le(s) réseau(x) Kondo, basés sur des approximations incluant une approche couplage fort [61], des calculs en champ moyen [3, 62–64], et des simulations numériques [65–70] utilisant la théorie du champ dynamique moyen (DMFT) [71, 72]. Tous ces calculs théoriques ont convergé vers la même conclusion qualitative : dans un réseau Kondo, T_0 peut être différente de T_K , et le rapport entre ces deux échelles d'énergie peut changer en fonction, par exemple, du remplissage électronique du système. En outre, ces résultats théoriques ont permis d'analyser sous un nouvel angle les expériences de photo-émission initialement controversées.

Dans ce chapitre, sont tout d'abord décrites différentes possibilités de faire varier les deux échelles d'énergie T_0 et T_K de manière contrôlable, en changeant les paramètres physiques suivant : le remplissage électronique, la forme de la densité d'états, et la concentration en ions magnétiques.

Ensuite, la déstabilisation de la phase Kondo est discutée, induite soit par l'application d'un champ magnétique, soit par les interactions magnétiques entre impuretés. Les types de points

critiques quantiques pouvant en résulter sont analysés.

L'ensemble des résultats présentés dans ce chapitre sont obtenus dans l'approximation du champ moyen.

2.2 Formalisme champ moyen

L'approximation du champ moyen a été appliquée pour la première fois à un réseau Kondo en 1979 par Lacroix et Cyrot [73]. Elle fut reformulée en 1983 par Coleman [74] ainsi que par Read, Newns et Doniach [75], sous la forme d'une approximation N -grand du modèle de Coqblin-Schrieffer [76] de dégénérescence N . Il fut alors montré que les instabilités magnétiques nécessitent un développement perturbatif incluant l'ordre $1/N$, *i.e.*, incluant les fluctuations autour du champ moyen. Cependant, la phase de liquide de Fermi lourd (*i.e.*, fermion lourd) est bien décrite dans la limite $N = \infty$. L'analyse de T_0 et de T_K peut ainsi s'effectuer en se limitant au niveau champ moyen. Ici, nous décrivons les étapes principales de l'application de cette approximation au hamiltonien du réseau Kondo (2.1).

Les impuretés Kondo sont représentées par des fermions auxiliaires locaux (fermions d'Abrikov) comme suit : $S_i^z = \frac{1}{2}(f_{i\uparrow}^\dagger f_{i\uparrow} - f_{i\downarrow}^\dagger f_{i\downarrow})$, $S_i^+ = f_{i\uparrow}^\dagger f_{i\downarrow}$, et $S_i^- = f_{i\downarrow}^\dagger f_{i\uparrow}$. L'interaction Kondo est ensuite réécrite comme une interaction à deux particules, $J_K \mathbf{s}_i \mathbf{S}_i \mapsto \frac{J_K}{2} \sum_{\sigma\sigma'} c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma'} f_{i\sigma'}^\dagger f_{i\sigma}$, qui décrit les processus d'échange de spin local entre les électrons de conduction et les moments Kondo. Cette description est exacte à condition de restreindre l'espace de Hilbert au secteur dans lequel chaque site ne contient qu'un seul fermion auxiliaire, $f_{i\uparrow}^\dagger f_{i\uparrow} + f_{i\downarrow}^\dagger f_{i\downarrow} = 1$. La solution champ moyen est obtenue en effectuant les deux approximations suivantes :

(i) L'occupation locale est d'un fermion par site uniquement en moyenne. Cela revient à décrire les spins Kondo comme un niveau f effectif demi-rempli. Ce demi-remplissage du niveau effectif est assuré par l'introduction d'un second potentiel chimique, λ .

(ii) L'interaction Kondo à deux particules est remplacée par un terme effectif à une particule, résultant d'un découplage effectif des composantes de spins \uparrow et \downarrow .

Ainsi, dans l'approximation de champ moyen, le hamiltonien du réseau Kondo (2.1) devient

$$H = \sum_{\mathbf{k}\sigma} (\epsilon_{\mathbf{k}} - \mu) c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} + r \sum_{i\sigma} [c_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma} + f_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}] - \lambda \sum_{i\sigma} f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma}, \quad (2.2)$$

où l'hybridation effective est déterminée par la relation auto-consistante

$$r = \frac{J_K}{2\mathcal{N}} \sum_{i\sigma} \langle f_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle. \quad (2.3)$$

Ici, \mathcal{N} dénote le nombre de sites du réseau. Les potentiels chimiques μ pour les électrons c , et λ pour les fermions f , sont déterminés par les contraintes $n_c = \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{i\sigma} \langle c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle$ et $1 = \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{i\sigma} \langle f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma} \rangle$. Le hamiltonien de champ moyen (2.2) décrit un système effectif dans lequel les électrons de conduction sont hybridés à des niveaux f locaux. Les effets de corrélations sont renormalisés sous la forme d'une énergie d'hybridation auto-consistante r . Cette approximation a l'avantage de donner une description relativement simple du système, tout en conservant deux propriétés importantes des réseaux Kondo : à haute température, on trouve $r = 0$, et le système est décrit comme un métal paramagnétique constitué d'électrons

2.2 Formalisme champ moyen

c légers découplés de moments locaux libres (les fermions f). Cette image, bien que très simplifiée, permet de caractériser la situation expérimentale dans laquelle, au dessus de la température de Kondo, les électrons de conduction sont faiblement couplés aux moments locaux. Par l'approche champ moyen, la température de Kondo est alors définie comme la température à laquelle une hybridation $r \neq 0$ apparaît. A très basse température, les propriétés physiques correspondent à un liquide de Fermi et les excitations du système sont des quasiparticules fermioniques libres mais lourdes. Ces dernières sont une combinaison linéaire d'électrons c légers, et de fermions f lourds. Le régime de liquide de Fermi est caractérisé par une échelle d'énergie, T_0 , qui peut être définie de plusieurs manières équivalentes à partir des propriétés de l'état fondamental : la densité d'états de quasiparticules, $\rho = 1/T_0$, le coefficient de Sommerfeld, $\Gamma = \lim_{T \rightarrow 0} C_V(T)/T = 1/T_0$, ou la susceptibilité magnétique statique locale des impuretés, $\chi_{loc}(T = 0) = 1/T_0$. En résolvant les équations de champ moyen de manière générale, nous avons obtenu des expressions explicites de T_K et T_0 dans la limite de J_K faible [3, 7] :

$$T_K = F_K[n_c, \rho_0] e^{-1/J_K \rho_0(\mu_0)}, \quad (2.4)$$

et

$$T_0 = F_0[n_c, \rho_0] e^{-1/J_K \rho_0(\mu_0)}, \quad (2.5)$$

qui dépendent du couplage Kondo J_K uniquement par le facteur exponentiel non analytique $e^{-1/J_K \rho_0(\mu_0)}$. Les préfacteurs F_K et F_0 sont des fonctions du remplissage électronique n_c , et de la densité d'états électroniques libres (DOS), $\rho_0(\omega) \equiv \sum_{\mathbf{k}} \delta(\omega - \epsilon_{\mathbf{k}})$. Par soucis de clarté, F_K et F_0 ne sont pas donnés explicitement ici, et leurs expressions peuvent être obtenues dans les Refs. [3, 7]. A cause du facteur exponentiel commun à ces deux échelles d'énergie, les variations de T_0 et T_K sont très sensibles à des changements dans le système, comme par exemple des variations de pression ou du dopage, même faibles. Par contre, puisque T_0/T_K ne dépend pas de J_K , on peut espérer qu'une analyse expérimentale de ce rapport sans dimension fasse apparaître certaines propriétés universelles. La solution champ moyen donne [7]

$$\frac{T_0}{T_K} = \left(\frac{D + \mu_0}{D - \mu_0} \right)^{1/2} \frac{F_{shape}}{\alpha \rho_0(\mu_L) \Delta\mu}. \quad (2.6)$$

Ici, D dénote la demi largeur de bande de la DOS sans interaction. μ_0 est le potentiel chimique sans interaction, correspondant à un remplissage électronique $n_c = \int_{-D}^{\mu_0} \rho_0(\omega) d\omega$. Le potentiel chimique du système avec l'interaction, μ_L , correspond à un remplissage $n_c + 1$, et le décalage en énergies, $\Delta\mu \equiv \mu_L - \mu_0$, traduit l'élargissement de la surface de Fermi. $\alpha = 1.13$ est un nombre. F_{shape} est une fonction dépendant explicitement de la forme de la DOS, ρ_0 , comme suit :

$$F_{shape} \equiv \exp \left[\left(\int_{-(D+\mu_0)}^{\Delta\mu} - \frac{1}{2} \int_{-(D+\mu_0)}^{D-\mu_0} \right) \frac{\rho_0(\mu_0 + \omega) - \rho_0(\mu_0)}{|\omega| \rho_0(\mu_0)} d\omega \right]. \quad (2.7)$$

2.3 Variations contrôlables de T_0 et de T_K

2.3.1 Effets d'une variation du remplissage électronique

L'effet du remplissage électronique sur les échelles de température d'un réseau Kondo a été discuté par Nozières, qui avait initialement suggéré la possibilité d'un problème d'épuisement [59, 60]. Son approche s'appuie sur l'analyse suivante : considérant N_S spins Kondo couplés à $N_c \leq N_S$ électrons de conduction, l'entropie pouvant être gelée à la température $T \approx T_K$ par la seule formation de singulets Kondo locaux est $\Delta S = N_c \ln 2$. Cependant, la formation d'un état cohérent de liquide de Fermi implique (ou nécessite) une annulation l'entropie linéaire avec la température, $S(T) \approx T/T_0$. Le gel de l'entropie résiduelle, $S(T_K) \approx (N_S - N_c) \ln 2$, nécessite alors un mécanisme collectif, et pourrait conduire (selon l'estimation initiale de Nozières) à $T_0 \ll T_K$ lorsque $N_c \ll N_S$.

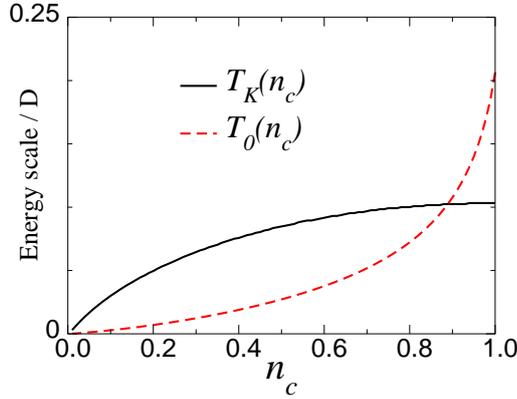


FIGURE 2.3 – T_K/D (courbe pleine noire) et T_0/D (courbe rouge en tirets) versus remplissage électronique, pour le réseau Kondo. Résultat numérique obtenu dans l'approximation du champ moyen, pour une DOS semi-elliptique et $J_K/D = 0.75$ [3].

Le problème de l'épuisement électronique est resté une question ouverte pendant plusieurs années, et nous en avons obtenu la première résolution par une approche de champ moyen [3, 54], qui a produit une description quantitative de l'effet du remplissage électronique. Tout d'abord, les expressions (2.4-2.5) montrent que T_K et T_0 dépendent de J_K de la même manière non-analytique, via le facteur $e^{-1/J_K \rho_0(\mu_0)}$, ce qui implique que le rapport T_K/T_0 ne dépend pas du couplage Kondo. Ce résultat est en contradiction avec celui de Nozières, qui avait prédit un rapport $T_0/T_K \approx T_K/D \approx e^{-1/J_K \rho_0(\mu_0)}$ [59, 60]. Le résultat obtenu par le champ moyen, T_0/T_K indépendant de J_K , fut par la suite confirmé par des calculs DMFT [77], et finalement accepté par Nozières [54].

Cependant, T_0 et T_K définissent deux échelles d'énergie dépendant du remplissage électronique de manières différentes, comme illustré sur la figure 2.3, lorsque $T_0 \ll T_K$ dans la limite $n_c \rightarrow 0$. Le résultat présenté sur cette figure et obtenu par le champ moyen est remarquablement similaire à celui obtenu en combinant DMFT et des simulations Monte Carlo Quantique (voir figure 1 dans Ref. [67]). Les effets de remplissage peuvent aussi être analysés à partir de l'expression (2.6). En négligeant les effets liés à la forme de la DOS, discutés

2.3 Variations contrôlables de T_0 et de T_K

dans la section 2.3.2, on trouve $T_0/T_K \approx \left(\frac{D+\mu_0}{D-\mu_0}\right)^{1/2}$, qui s'annule lorsque μ_0 approche le bord de la bande, $-D$, *i.e.*, lorsque $n_c \rightarrow 0$.

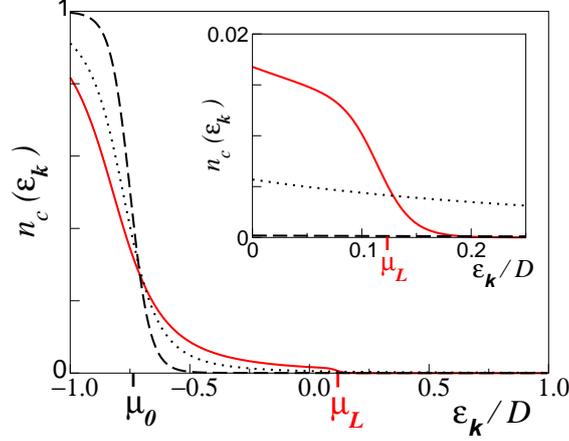


FIGURE 2.4 – Occupation électronique $n_c(\epsilon_{\mathbf{k}})$ pour $T/T_K = 1.0$ (courbe noire en tirets), $T/T_K = 0.5$ (courbe noire en pointillés), et $T/T_K = 0.005$ (courbe pleine rouge). Résultat numérique obtenu par l'approximation du champ moyen pour une DOS semi-elliptique, $n_c = 0.15$, et $J_K/D = 0.75$. μ_0 et μ_L indiquent les potentiels chimiques correspondant respectivement à une petite et à une grande surface de Fermi. L'incrustation est une focalisation autour de μ_L . Figure d'après [3].

L'analyse complémentaire de l'occupation électronique, $n_c(\epsilon_{\mathbf{k}}) \equiv \langle c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \rangle$, fournit une information importante pour comprendre le mécanisme physique conduisant à deux échelles d'énergie différentes. Pour $T \approx T_K$, le résultat de champ moyen, illustré par la figure 2.4, ressemble à une distribution de Fermi avec une fenêtre thermique autour du potentiel chimique du système sans interaction, μ_0 , qui correspond à n_c électrons (petite surface de Fermi). Pour $T \ll T_K$, dans le régime de liquide de Fermi, étonnamment, cette distribution s'étale et forme une marche autour de μ_L (grande surface de Fermi). La figure 2.4 décrit uniquement l'occupation des états d'électrons c , dont le remplissage est fixé à n_c . A température nulle, de nombreux états, caractérisés chacun par un moment \mathbf{k} , ne sont que partiellement occupés par des électrons c . Toutefois, la description du système en terme de liquide de Fermi reste appropriée dans la mesure où les quasiparticules ne sont plus de purs états c mais plutôt des combinaisons linéaires d'états c et f . L'occupation des quasiparticules est complète, *i.e.*, égale à un, pour chacun des états ayant une énergie $\epsilon_{\mathbf{k}} < \mu_L$, et elle est nulle pour les états de plus haute énergie. Ce comportement est cohérent avec le théorème de Luttinger, qui prédit que, à $T = 0$, la surface de Fermi contient à la fois les électrons c et les fermions f . Notons qu'il n'est vraiment pas surprenant que le réseau Kondo satisfasse le théorème de Luttinger sous l'approximation du champ moyen. En effet, le modèle effectif obtenu, caractérisé par le Hamiltonien (2.2) ne contient aucun terme explicite d'interaction à plusieurs particules susceptible de violer le théorème de Luttinger. Dans la phase liquide de Fermi on s'attend à ce que ce résultat continue de s'appliquer au delà du champ moyen. L'élargissement de la surface de Fermi pourrait être un élément crucial pour expliquer l'origine de la différence entre T_0 et T_K : la température de Kondo est associée à la diffusion incohérente des électrons de conduction situés dans une fenêtre thermique de largeur T_K autour de μ_0 (voir figure 2.5).

Bien que liée aussi à l'effet Kondo, la température de cohérence, T_0 , contrairement à T_K , caractérise un liquide de Fermi avec une grande surface de Fermi.

2.3.2 Effets liés à la forme de la densité d'états

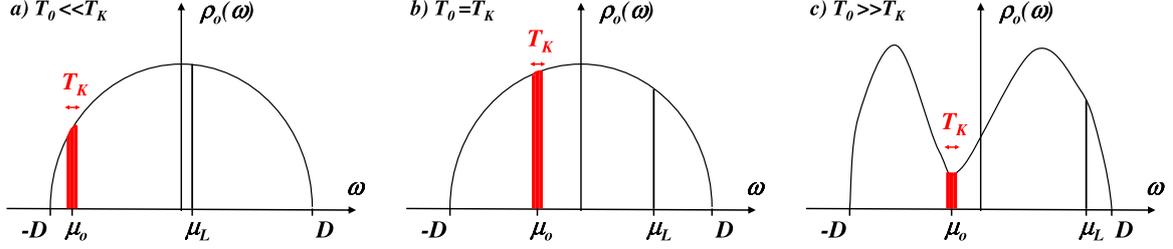


FIGURE 2.5 – Représentation schématique de la densité d'états électroniques sans interaction (DOS). (a) DOS régulière avec un potentiel chimique proche du bord de bande : $T_0 \ll T_K$. (b) et (c) Loin du bord de bande, i.e., près du demi-remplissage, le rapport T_0/T_K dépend fortement de la forme de la DOS autour du niveau de μ : (b) $\rho_0(\omega)$ est presque constante autour de $\omega = \mu$, on obtient $T_0 \sim T_K$. (c) μ est proche d'un minimum de ρ_0 , on trouve $T_0 \gg T_K$. Ici, $\mu_0 \approx \mu$ indique la position du potentiel chimique correspondant à n_c électrons c sans interaction (petite surface de Fermi). μ_L est le potentiel chimique qui correspondrait à $n_c + 1$ électrons c sans interaction (grande surface de Fermi). Figure d'après [7].

Dans cette partie, nous considérons les effets dus à la forme de la densité d'états sans interaction, $\rho_0(\omega)$ [7]. Afin de découpler cet effet de celui lié au remplissage électronique, étudié dans la partie précédente, nous supposons ici que n_c est relativement proche de 1, sans pour autant être exactement au demi-remplissage, de sorte que le système reste métallique. Les relations (2.6) et (2.7) peuvent ainsi être simplifiées en

$$\frac{T_0}{T_K} \approx F_{shape} \approx \exp \left[\int_{-(D+\mu_0)}^{D-\mu_0} \frac{\rho_0(\mu_0 + \omega) - \rho_0(\mu_0)}{2|\omega|\rho_0(\mu_0)} d\omega \right]. \quad (2.8)$$

Pour une densité d'état ρ_0 constante, nous retrouvons $T_0 \sim T_K$, ce qui permet d'expliquer l'observation pour plusieurs composés Kondo denses de propriétés de *scaling* en T/T_K . Pour une DOS non constante, si μ_0 est proche d'un maximum local de $\rho_0(\omega)$, l'intégrande, dans Eq. (2.8), est négatif sur l'essentiel du domaine d'intégration, impliquant $T_0 \ll T_K$. Dans la situation opposée, lorsque μ_0 est proche d'un minimum local (voir figure 2.5 (c)), on trouve $T_0 \gg T_K$, ce qui peut s'expliquer par l'argument suivant. L'écrantage Kondo incohérent qui commence à s'établir à $T \approx T_K$ implique un petit nombre d'électrons de conduction, compris dans la fenêtre thermique de largeur T_K , autour de μ_0 . A plus basse température, $T < T_K$, un liquide de Fermi se forme progressivement, caractérisé par une surface de Fermi élargie par la contribution des fermions f (voir figure 2.4). Cet élargissement résulte de l'hybridation $r \neq 0$, qui apparaît dans la phase Kondo. La formation d'un état fondamental cohérent de liquide de Fermi implique alors le remplissage d'une mer de Fermi contenant tous les états de la grande surface de Fermi. Dans la situation décrite par la figure 2.5 (c), où μ_0 est proche d'un minimum local de la DOS, plus on s'éloigne de μ_0 , plus on dispose d'états pour remplir la nouvelle mer de Fermi qui est en train de se constituer. Dans ce cas, la

2.3 Variations contrôlables de T_0 et de T_K

formation progressive de l'état cohérent de liquide de Fermi est d'une certaine manière auto-amplifiée, et donne lieu à une échelle d'énergie $T_0 \gg T_K$. En contrepartie, cette situation, puisqu'elle se produit pour une valeur relativement faible de la DOS, correspond en principe à une valeur de T_K elle aussi relativement faible. Par cette description, l'écrantage magnétique des impuretés Kondo implique non seulement les électrons c de la bande de conduction, mais aussi, de manière dynamique, toutes les quasi-particules en formation, qui contiennent une composante f . Les effets liés à la forme de la DOS analysés dans cette section ont permis d'expliquer des expériences de spectroscopie de photo-émission et d'absorption de rayons X réalisées sur le composé YbInCu_4 [78].

2.3.3 Effets de la substitution d'ions magnétiques

Ici, notre analyse se focalise sur la concentration x en impuretés Kondo. Dans les systèmes Kondo constitués d'atomes de terres rares, celle-ci peut être variée très directement par substitution, par exemple, de type Ce-La, ou Yb-Lu. Afin de prendre en compte certains effets de substitution, nous avons introduit un modèle d'alliage Kondo, généralisation du Hamiltonien (2.1) dans laquelle chaque site du réseau peut contenir aléatoirement une impureté Kondo, avec une probabilité x [6, 79]. L'interaction Kondo est alors traitée par l'approximation du champ moyen, et les différentes configurations de distributions en impuretés sont moyennées en utilisant une généralisation de l'approximation du potentiel cohérent (CPA, d'après l'anglais *Coherent Potential Approximation*) [80], décrite dans la section 4.3. Les résultats obtenus restent cependant valables au delà de l'approximation CPA [79].

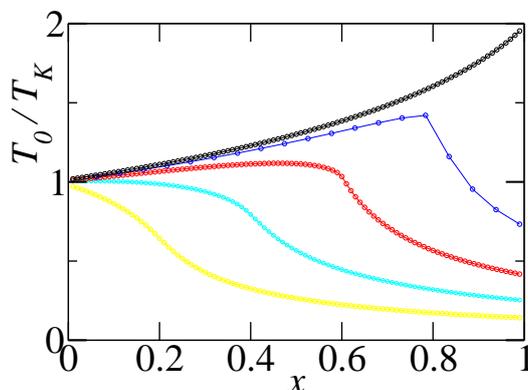


FIGURE 2.6 – Rapport T_0/T_K en fonction de la concentration en impuretés Kondo, x . De haut en bas, $n_c = 1; 0.8; 0.6; 0.4; 0.2$. Les lignes pleines sont uniquement illustratives. Chaque petit cercle représente un résultat numérique obtenu pour une DOS semi-elliptique et $J_K/D = 0.75$. D'après [6].

La figure 2.6 illustre l'évolution de T_0/T_K en fonction de la concentration en impuretés, x , pour différentes valeurs de remplissage électronique, n_c . La limite diluée du modèle, $x \ll 1$, reproduit le comportement universel du modèle à impureté Kondo unique, pour lequel $T_0 = T_K$. Le *crossover* vers le régime de réseau Kondo dense, avec $T_0 \neq T_K$, apparaît pour $x \approx n_c$. Les données présentées sur la figure 2.7 sont identiques à celles de la figure 2.6, avec une abscisse renormalisée $x \rightarrow n_c/x$. Cela permet de faire apparaître un régime d'épuisement

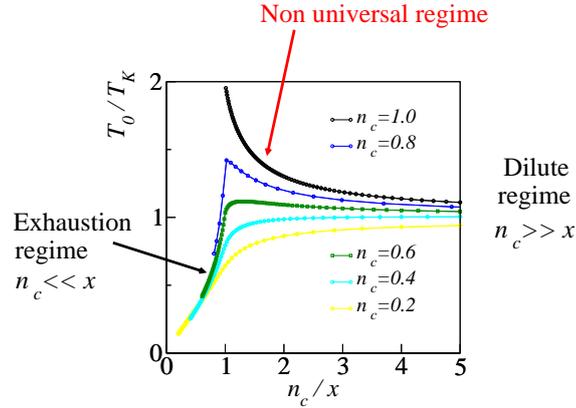


FIGURE 2.7 – Données identiques à celles de la figure 2.6, avec une abscisse renormalisée, n_c/x . Chacune de ces courbes correspond à un remplissage électronique donné, n_c , comme indiqué sur la légende. Le paramètre n_c/x est varié en changeant x , ce qui implique que chaque courbe commence à une abscisse minimale spécifique finie $n_c/x = n_c$.

électronique, pour $n_c < x$, dans lequel le rapport T_0/T_K semble être une fonction universelle de n_c/x . Notons que ce résultat numérique est obtenu ici pour une DOS semi-elliptique, qui décrit à faible n_c le bord de bande d'un système tri-dimensionnel. On s'attend à ce que l'universalité de ce régime d'épuisement dépende de la dimension par l'intermédiaire de l'exposant caractérisant l'annulation de la DOS en bord de bande. Il serait très intéressant, d'une part, de tester ce résultat théorique en utilisant d'autres approximations, et d'autre part d'analyser l'universalité du régime d'épuisement à partir de données expérimentales. Cependant, outre le problème de l'ordre magnétique négligé ici, le régime d'épuisement électronique peut s'avérer difficile à atteindre expérimentalement pour la raison suivante : la concentration maximale en impuretés Kondo est $x = 1$. Par conséquent, une condition nécessaire pour obtenir $n_c \ll x$ est de considérer un faible remplissage électronique. Or, dans les alliages de terres rares, les électrons de conduction proviennent généralement de plusieurs bandes. Bien qu'en présence de plusieurs bandes de conduction, l'effet Kondo à une impureté (appelé dans ce cas multi-canal) se réalise par le canal électronique le plus fort, l'effet Kondo d'un système dense peut faire appel aux électrons de plusieurs canaux de conduction, évitant alors d'épuiser le canal dominant. Il est ainsi très probable, dans ce cas assez courant, que le régime d'épuisement ne soit pas accessible ; mais le modèle de réseau Kondo à une seule bande devrait alors être généralisé en un modèle à plusieurs bandes, plus approprié. Cependant, il est raisonnable d'imaginer que des systèmes Kondo denses puissent être réalisés expérimentalement, pour lesquels le régime $n_c \ll x$ serait observable, en utilisant par exemple des systèmes d'impuretés artificielles. Enfin, notons aussi que pour la plupart des systèmes Kondo denses, $x \approx 1$, le remplissage électronique est de l'ordre de 1, ce qui correspond finalement à $n_c \approx x$. Il s'agit précisément du régime non universel, ni épuisé, ni dilué, pour lequel toute la structure de réseau (et de bandes électroniques) devient pertinente. Cela permet de comprendre la richesse et la diversité des réseaux Kondo et de leurs réalisations expérimentales.

2.4 Destruction de la phase Kondo

Microscopiquement, l'effet Kondo est caractérisé par la formation de singulets Kondo locaux. Il s'agit d'un phénomène non perturbatif, donnant lieu à un élargissement de la surface de Fermi, qui résulte de la contribution des degrés de liberté des impuretés magnétiques. La phase Kondo peut être déstabilisée, voire détruite, par l'application d'un champ magnétique extérieur, ou par l'effet des fluctuations du champ de Weiss interne résultant des interactions RKKY. Dans cette partie, ces deux situations sont analysées dans le cadre de l'approximation du champ moyen : la brisure de l'effet Kondo est identifiée par une annulation continue de l'hybridation $f - c$ effective, r , lorsque $T = 0$.

2.4.1 Effet d'un champ magnétique

Nous considérons un champ magnétique, h , cherchant à polariser les spins Kondo dans la direction z . Cette situation est réalisée par l'application d'un champ magnétique extérieur, agissant sur les ions magnétiques¹. Le Hamiltonien du système peut s'obtenir à partir de celui du réseau Kondo (2.1), en rajoutant une contribution provenant du champ, $H \mapsto H - h \sum_i S_i^z$. L'approximation de champ moyen décrite dans la partie 2.2 de ce document a été généralisée [7], générant un Hamiltonien effectif de champ moyen formellement similaire à Eq. (2.2), mais où les énergies potentielles des niveaux f dépendent du spin, $\lambda \mapsto \lambda + \sigma h$. L'hybridation effective r reste quant à elle indépendante du spin.

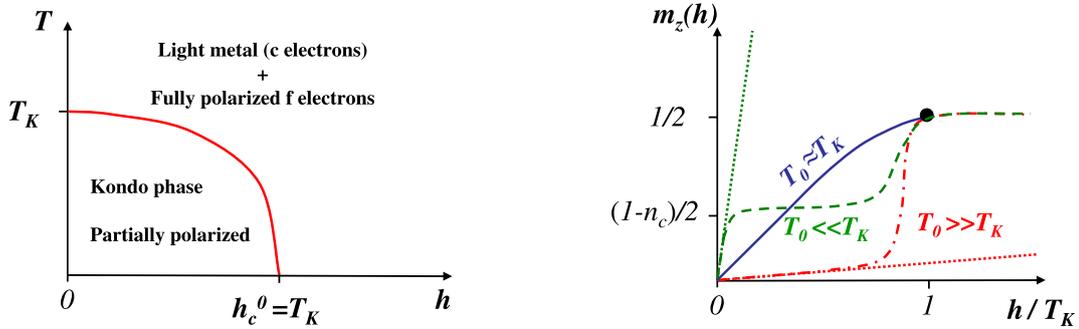


FIGURE 2.8 – Schémas illustrant l'effet d'un champ magnétique h sur un réseau Kondo. A gauche : diagramme de phase. La courbe pleine rouge indique $h_c(T)$. A droite : courbe d'aimantation normalisée $m_z(h/T_K)$ pour $T_0 \gg T_K$ (ligne rouge en tirets pointillés), $T_0 \approx T_K$ (ligne pleine bleue), et $T_0 \ll T_K$ (ligne verte pointillée). La ligne pointillée indique le régime linéaire $m_z(h) = h/T_0$. Le point noir indique l'aimantation complète des spins Kondo, $m_z = 1/2$, qui apparaît au champ critique $h_c^0 = T_K$. Figures d'après [7].

Pour un champ magnétique et une température suffisamment faibles, les équations de champ moyen possèdent une solution $r \neq 0$. Cette situation, illustrée par la figure 2.8, caractérise une phase où l'effet Kondo coexiste avec une aimantation partielle des moments Kondo et des

1. On pourrait aussi tenir compte dans le modèle de l'effet direct du champ magnétique sur les électrons c . On s'attendrait dans ce cas à obtenir un résultat peu différent de celui décrit ici, car les quasiparticules lourdes possèdent en général un très fort caractère f .

électrons c . Au delà d'un champ critique $h_c(T)$, les électrons c se découplent des moments locaux, entièrement polarisés ; l'effet Kondo, vu comme la formation de singulets locaux, est détruit. Pour $T = 0$, dans la limite d'un couplage faible, $J_K \ll D$, l'approximation de champ moyen permet d'établir la relation universelle $h_c^0 \equiv h_c(T = 0) = T_K/\alpha$. Puisque $\alpha = 1.13$, on trouve $h_c^0 \approx T_K$. Ce résultat, indépendant de la DOS et du remplissage électronique, n'est pas surprenant si l'on considère que la température de Kondo est l'échelle d'énergie caractéristique de la formation de singulets locaux : ces singulets sont détruits lorsque l'énergie de Zeeman devient supérieure à T_K . Par ailleurs, à température finie, et en supposant que la DOS est constante, on obtient la ligne critique $[h_c(T)/h_c^0]^2 + [T/T_K]^2 = 1$.

L'aimantation $m_z(h) \equiv \frac{1}{2N} \sum_i (\langle f_{i\uparrow}^\dagger f_{i\uparrow} \rangle - \langle f_{i\downarrow}^\dagger f_{i\downarrow} \rangle)$ obtenue à $T = 0$ à partir de l'approximation de champ moyen est tracée schématiquement sur la figure 2.8 en fonction du champ magnétique normalisé h/T_K . Le comportement à faible champ est donné par la réponse linéaire caractéristique d'un liquide de Fermi, $m_z(h) = h\chi_{loc}(T = 0)$, c'est à dire, par définition, $m_z(h) = h/T_0$. Puisque le champ critique caractérisant la saturation de l'aimantation est de l'ordre de la température de Kondo, $h_c^0 \approx T_K$, il est possible de distinguer trois situations typiques. La première, standard, obtenue pour $T_0 \approx T_K$, correspond à une augmentation de m_z linéaire avec h jusqu'à saturation. La situation est différente lorsque $T_0 \gg T_K$, le régime linéaire ne permettant qu'une faible aimantation lorsque $h < h_c^0$. Dans ce cas, lorsque $h \approx h_c^0$, le système est caractérisé par une transition méta-magnétique, passant d'un état de liquide de Fermi lourd très faiblement aimanté à un état d'aimantation complète des spins Kondo. Enfin, dans la situation opposée, $T_0 \ll T_K$, le régime linéaire conduit à une quasi-saturation de l'aimantation pour $h \sim T_0 \ll h_c^0$. On s'attend alors à ce que le régime intermédiaire $T_0 < h < T_K$ soit non-universel. Eventuellement, un plateau d'aimantation pourrait apparaître, à la valeur $m_z \approx (1 - n_c)/2$, de manière similaire à celui obtenu pour l'entropie (voir figure 2.2).

Nous savons bien que la transition $r = 0$, utilisée pour définir T_K dans le cadre de l'approximation de champ moyen, décrit en réalité un *crossover*. Cependant, il existe plusieurs exemples de systèmes pour lesquels une ligne de températures de *crossover* se termine en un point critique quantique, *i.e.*, une transition à température nulle, sous l'effet d'une variation de certains paramètres physiques. On peut alors se demander si la transition prédite ici pour un champ critique h_c^0 resterait une transition ou au contraire deviendrait un *crossover* si les fluctuations au delà du champ moyen étaient considérées. Mais, quelle que soit la réponse, l'essentiel des résultats obtenus au niveau champ moyen devraient rester inchangés.

2.4.2 Effet de l'interaction RKKY

La possibilité de détruire une phase Kondo en faveur d'une phase ordonnée magnétiquement a été discutée initialement par Doniach [49], qui a comparé la température de Kondo $T_K \sim De^{-1/J_K\rho_0(\mu_0)}$ avec l'énergie RKKY $J_{RKKY} \sim \rho_0(\mu_0)J_K^2$. Malgré l'apparente simplicité de l'argument de Doniach, il est assez difficile de décrire correctement à partir du Hamiltonien (2.1) la transition entre une phase Kondo et une phase ordonnée magnétiquement. En particulier, si l'on utilise une approximation de champ moyen, cette difficulté se manifeste des deux manières suivantes :

(i) *Difficulté de conduire le système vers une transition magnétique du deuxième ordre* : cela nécessiterait en effet un mécanisme conduisant à une annulation continue de l'hybridation

2.4 Destruction de la phase Kondo

effective à température nulle, $r(T = 0)$. Or, à partir du Hamiltonien du réseau Kondo (2.1), la seule possibilité d'annuler $r(T = 0)$ impliquerait d'annuler la DOS libre au niveau de Fermi, $\rho_0(\mu_0) = 0$, ce qui ne correspondrait pas à la réalité physique décrite par l'argument de Doniach.

(ii) *Difficulté de décrire la criticalité des propriétés physiques* : en effet, par l'approche champ moyen, l'état fondamental du système est soit en régime couplage fort, caractérisé par des propriétés de liquide de Fermi lourd avec $r \neq 0$, soit en régime complètement dé-couplé avec $r = 0$.

Ces deux difficultés peuvent être analysées à partir de la formulation N -grand de l'approximation de champ moyen : Coleman [74], ainsi que Read, Newns et Doniach [75] ont montré que l'ordre magnétique implique des processus d'ordre au moins $1/N$, *i.e.*, les fluctuations autour du champ moyen. Nous ne décrivons pas ici la criticalité obtenue par un calcul de ces fluctuations, ni les théories de jauge compactes qui émergent de ces développements. Nous mentionnons simplement les travaux de Senthil, Sachdev, et Vojta [81, 82], qui ont analysé la possibilité d'obtenir une transition de phase quantique entre un liquide de Fermi avec une grande surface de Fermi et une phase de liquide de Fermi partiellement fractionnalisée. Un point critique Quantique appelé *Kondo breakdown* a aussi été identifié par C. Pépin [83, 84], qui a obtenu, par exemple, une divergence logarithmique de la chaleur spécifique avec la température, comme observé dans un grand nombre de composés de fermions lourds.

Alors que la *difficulté* (ii) ne peut pas être traitée simplement sans prendre en compte les fluctuations, nous allons voir ici comment la *difficulté* (i) peut être résolue au niveau du champ moyen. Pour cela, le Hamiltonien du réseau Kondo (2.1) est tout d'abord généralisé à ce que l'on appelle le réseau de Kondo-Heisenberg, en lui ajoutant un terme de super-échange, comme suit : $H \mapsto H + \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j$. Ce modèle généralisé a été initialement introduit par Sengupta et Georges [85], et plusieurs réalisations en ont été étudiées par la suite dans le cadre de diverses approximations. En introduisant les fermions auxiliaires, tels que décrits dans la section 2.2, le terme de super-échange peut se réécrire comme $J_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j = \frac{J_{ij}}{2} \sum_{\sigma\sigma'} f_{i\sigma}^\dagger f_{i\sigma'} f_{j\sigma'}^\dagger f_{j\sigma}$, ce qui décrit les processus d'échanges de spins entre deux impuretés Kondo situées sur les sites i et j . Jusque là, cette description reste très générale et concerne tous les types de modèles de couplage magnétique J_{ij} , qui peut être périodique (ferromagnétique, ou antiferromagnétique) ou distribué aléatoirement (cas désordonné).

Dans la suite de cette section nous allons décrire deux approches de champ moyen complémentaires pour le traitement de ce terme de super-échange.

La première a été introduite par B. Coqblin *et al.* [86] pour un modèle Kondo-Heisenberg avec interaction antiferromagnétique entre proches voisins, $J_{ij} = J_{AF} < 0$. Dans la phase paramagnétique Kondo, l'interaction d'échange inter-site est approximée par un découplage de type *liaison de valence résonante* (RVB²) : $J_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \mapsto \Gamma_{ij} \sum_{\sigma} f_{i\sigma}^\dagger f_{j\sigma}$,

avec $\Gamma_{ij} = \frac{J_{AF}}{2} \sum_{\sigma} \langle f_{i\sigma} f_{j\sigma}^\dagger \rangle$.

Le terme d'interaction magnétique, de type Heisenberg, génère une dispersion effective auto-consistante pour les fermions f . En utilisant cette méthode, Coqblin *et al.* ont montré que l'effet Kondo disparaît abruptement pour des faibles remplissages de la bande de conduction (électrons c), et/ou pour un fort couplage inter-site [63, 64].

Nous avons développé une méthode de champ moyen alternative [4], basée sur la DMFT,

2. voir le chapitre 3

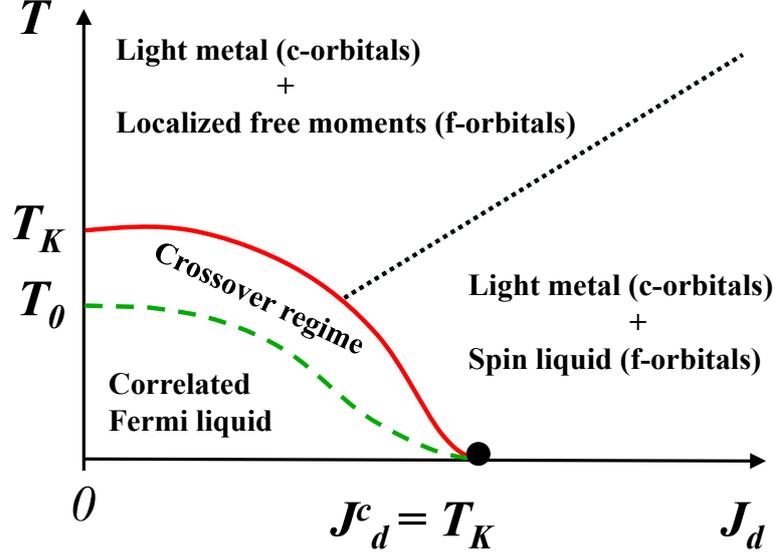


FIGURE 2.9 – Diagramme de phase schématisé du modèle de Kondo-Heisenberg, en coordonnées interaction RKKY (J_d), température (T), en ne tenant pas compte des éventuelles instabilités d'ordre magnétique. La température de Kondo (ligne pleine rouge) et la température de cohérence du liquide de Fermi (ligne verte en tirets) sont tracées en fonction de J_d pour des valeurs de J_K et n_c fixées, et dans le cas $T_0 < T_K$. Le système est un liquide de Fermi lourd pour des températures inférieures à $T_0(J_d)$. Au-dessus de la ligne $T_K(J_d)$, les moments localisés sont essentiellement libres, tandis qu'ils forment un liquide de spin fortement corrélé pour $J_d > T$. Toutes les lignes représentent (en principe) des crossovers. Le point à $J_d^c = T_K$ indique la transition quantique de brisure d'effet Kondo. Figure issue des analyses décrites dans [4, 5].

que nous avons dans un premier temps appliquée à un système désordonné pour lequel les couplages J_{ij} sont donnés aléatoirement par une distribution gaussienne, avec une valeur moyenne $[J_{ij}] = 0$, et une variance $[J_{ij}^2] \equiv J_d^2$. Dans ce cas, le terme d'interaction de Heisenberg génère une self-énergie locale pour les fermions f , qui est déterminée par des relations auto-consistantes similaires à celles obtenues précédemment par Sachdev et Ye pour un modèle de spin désordonné [87]. Nous avons aussi généralisé et appliqué cette méthode à un modèle décrivant une interaction antiferromagnétique constante entre proches voisins [5], pour lequel la relation d'auto-consistance pour la self-énergie des fermions f est locale mais dépend de la structure du réseau considéré. Dans ce second cas, J_d est l'interaction RKKY périodique. Dans les deux types de modèles, désordonné ou périodique, nous avons mis en évidence un point critique quantique correspondant à la brisure de l'effet Kondo et caractérisé par une annulation de l'hybridation effective, $r(T = 0) = 0$. La figure 2.9 illustre le diagramme de phase obtenu par cette méthode de champ moyen dynamique pour le modèle de Kondo-Heisenberg désordonné [4]. Nous avons obtenu un diagramme de phase très similaire pour le cas du modèle périodique [5].

2.4 Destruction de la phase Kondo

Diagramme de phase général d'un système Kondo

Il est important de noter que le point critique quantique de brisure de l'effet Kondo, émergent de l'approche champ moyen décrite précédemment (voir figure 2.9), ne correspond pas nécessairement à l'apparition d'un ordre magnétique. Un tel point critique quantique peut s'interpréter en termes de transition topologique, caractérisée non pas par une brisure de symétrie, mais par une violation du théorème de Luttinger, comme discuté dans Refs. [81, 82]. Cette transition possède de grandes similarités avec une transition de Mott, avec cependant une subtilité : pour la transition de brisure d'effet Kondo, la transition de Mott (sélective) concerne une localisation des degrés de liberté magnétiques (fermions auxiliaires f), puisque, rigoureusement, la charge électrique des spins Kondo reste toujours localisée, même dans la phase Kondo. Au-delà de la limite champ moyen $N = \infty$, la prise en compte des fluctuations en $1/N$ permet de révéler une instabilité magnétique pour une valeur du couplage J_d inférieure (ou égale, selon les cas) à la valeur critique de la brisure d'effet Kondo $J_d^c = T_K$. Dans ce cas, on s'attend à ce qu'une brisure de symétrie magnétique apparaisse. Par ailleurs, au voisinage du ou des points critiques³, il est envisageable d'obtenir une instabilité supraconductrice, qui n'a pas été considérée ici. Le champ moyen permet de mettre en évidence un diagramme de phase général pour les systèmes Kondo, et d'identifier un régime probablement moins universel, ou pour lequel plusieurs classes d'universalités pourraient apparaître, selon le système Kondo considéré. Certaines questions restent ouvertes, comme par exemple, celle de savoir si la criticalité des composés de fermions lourds est contrôlée par un point critique quantique de brisure d'effet Kondo, par la transition magnétique, ou par le liquide de spin sous-jacent. On peut aussi s'interroger sur la nature de la phase non-Kondo, et en particulier sur celle dénommée ici très génériquement *liquide de spin*, mais qui, éventuellement, pourrait correspondre à un véritable nouvel état quantique de la matière⁴. La réponse à ces questions dépend très probablement du système particulier considéré. Cette question est abordée de manière plus détaillée dans le chapitre 3, où un scénario de liquide de spin modulé est par exemple présenté pour expliquer le mystérieux ordre caché observé dans le composé URu₂Si₂.

La transition quantique de brisure d'effet Kondo résulte de la contribution non-Kondo, c'est à dire RKKY, des fluctuations des fermions f . Notons que ces fluctuations, générées par le terme d'interaction de type Heisenberg, constituent précisément le mécanisme microscopique nécessaire pour résoudre la *difficulté (i)* mentionnée plus haut, *i.e.*, la difficulté de décrire par une approche champ moyen la destruction de la phase Kondo en partant uniquement d'un modèle Kondo sans le terme de Heisenberg. Dans l'approche DMFT que nous avons suivie, les fluctuations des fermions f sont décrites par une self-énergie locale. L'approche alternative suivie par Coqblin *et al.* considère des fluctuations générées par la dispersion effective des fermions f , obtenue par le découplage RVB du terme de Heisenberg. Par ces deux méthodes, self-énergie locale ou dispersion, les fluctuations sont caractérisées par une énergie $J_{RKKY} = J_{AF}$ ou J_d , et il apparaît que l'effet Kondo est détruit lorsque cette énergie dépasse la valeur critique $J_{RKKY}^c \approx T_K$.

De manière très générale, si l'on tient compte des différentes instabilités magnétiques du système, le diagramme de phase d'un modèle Kondo-Heisenberg est schématisé par la fi-

3. de brisure de Kondo et d'apparition d'un ordre magnétique

4. caractérisé, pourquoi pas, par une transition et non plus un *crossover*

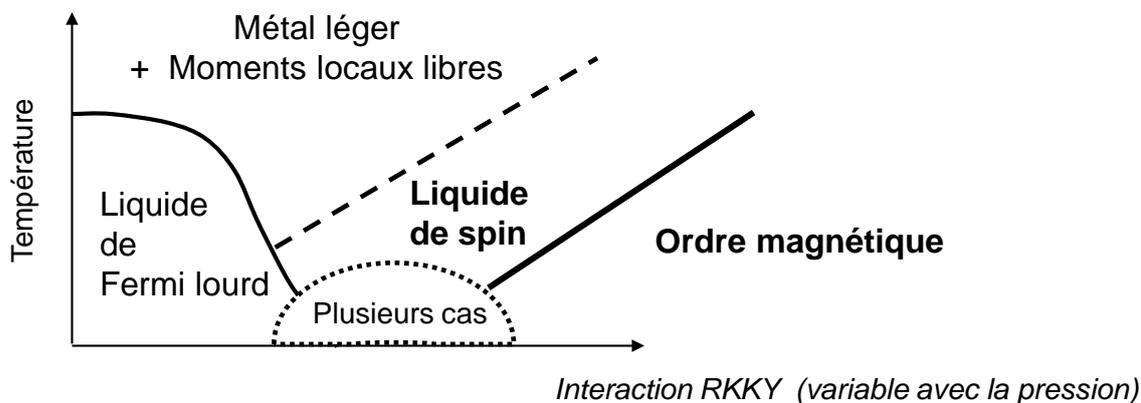


FIGURE 2.10 – Diagramme de phase schématisé général du modèle de Kondo-Heisenberg en fonction de la température et de l'interaction RKKY (qui varie avec la pression mécanique ou chimique). La zone indiquée en pointillés rassemble plusieurs cas, pour lesquels la destruction de la phase Kondo de fermion lourd peut coïncider ou non avec l'apparition de l'ordre magnétique. Des instabilités supraconductrices peuvent aussi apparaître dans ce régime où fluctuations de charge et de spin deviennent critiques.

Figure 2.10, dans laquelle les variations de l'énergie RKKY peuvent correspondre à des variations de pression mécanique ou chimique. Lorsque l'énergie RKKY est faible, le système est dans une phase de fermion lourd Kondo pour laquelle les degrés de liberté des spins Kondo sont délocalisés, *i.e.*, participent à la surface de Fermi. Lorsque RKKY domine, les spins Kondo se localisent, et peuvent faire émerger différents types d'états corrélés, ordonnés magnétiquement, ou de liquide de spin. La phase ordonnée magnétiquement peut l'être à longue portée (par exemple antiferromagnétique), ou uniquement localement (de type verre de spin). La courbe d'apparition du liquide de spin (en tirets) peut indiquer un *crossover* ou une transition si le liquide de spin brise une symétrie du réseau. Ces différents cas sont l'objet d'une étude plus approfondie dans l'ensemble du chapitre 3 pour le liquide de spin, ainsi que dans la section 4.2 pour l'effet du désordre. Entre ces deux familles de phases, itinérantes, et localisées, différents cas intermédiaires peuvent apparaître, comme illustré par l'exemple de la figure 1.1, avec du magnétisme et de la localisation partielle. Des instabilités supraconductrices peuvent aussi apparaître dans cette région, comme observé expérimentalement dans de nombreux composés de fermions lourds.

2.5 Conclusions

Les principales propriétés des systèmes Kondo peuvent être obtenues à partir de l'approximation de champ moyen. Certaines d'entre elles n'ont pas été présentées ici, par exemple l'effet d'un pseudo-gap [88, 89]. Aussi, par souci de clarté, la description présentée dans ce chapitre a été limitée au modèle Kondo *standard*. Bien sur, l'approximation de champ moyen peut être généralisée et appliquée à des modèles plus réalistes, en considérant par exemple une hybridation non locale entre les électrons de conduction et les ions f [90].

Ici, nous nous sommes focalisés sur une analyse des échelles de basse énergie : la température

2.5 Conclusions

de Kondo, T_K , caractérisant la température de *crossover* en dessous de laquelle les électrons de conduction et les moments locaux se couplent fortement ; l'énergie de cohérence, T_0 , caractérisant l'état fondamental de liquide de Fermi ; et J_{RKKY} , l'énergie de corrélation magnétique inter-site. Au niveau du champ moyen, J_{RKKY} est négligeable ou négligée, et tout étude de la criticalité liée au magnétisme requiert d'aller au delà du champ moyen, en prenant par exemple en compte les fluctuations dites en $1/N$. Cependant, l'effet Kondo peut être brisé au niveau champ moyen lorsque l'interaction RKKY est ajoutée "à la main", en généralisant le modèle Kondo en un modèle Kondo-Heisenberg. Le diagramme de phase général obtenu permet de décrire la grande diversité des phases quantiques observées dans les composés Kondo.

Pour le *pur* réseau Kondo, l'approximation du champ moyen permet d'établir des expressions explicites de T_0 et de T_K . Ces deux quantités dépendent du couplage Kondo par l'intermédiaire du même facteur $e^{-1/J_K \rho_0(\mu_0)}$. Cette dépendance explique la très forte sensibilité de ces deux échelles d'énergie par rapport à des petites variations du système (par exemple, dopage, ou pression). Par contre, le rapport T_0/T_K , puisqu'il ne dépend pas de J_K , semble être une quantité très prometteuse pour rechercher des propriétés universelles de composés de fermions lourds. Tandis qu'il est égal à un dans des systèmes dilués, T_0/T_K dépend en réalité du remplissage électronique n_c , de la structure de la bande d'électrons de conduction, et de la concentration en impuretés, x . Un régime universel avec $T_0 \ll T_K$ est prédit dans la limite de l'épuisement électronique $n_c \ll x$, qui pourrait cependant être difficile à atteindre expérimentalement. Il serait pourtant intéressant d'effectuer des expériences accédant à ce régime et d'en explorer l'universalité. Cependant, les situations plus habituelles expérimentalement correspondent soit au régime universel dilué, $n_c \gg x$, soit au régime non-universel dense $x \sim n_c$. Dans ce dernier cas, la forme de la structure de bande des électrons légers devient importante et peut conduire à $T_0 \gg T_K$ lorsque le potentiel chimique μ_0 est proche d'un minimum local de la DOS.

La détermination expérimentale de T_0 et T_K est assez directe pour des systèmes situés *profondément* à l'intérieur de la phase liquide de Fermi : par exemple, on peut dans ce cas déterminer T_0 à partir du coefficient de Sommerfeld de la chaleur spécifique, et T_K à partir de la dépendance en température de l'entropie. Alors que l'énergie de cohérence T_0 est en principe toujours assez simple à mesurer, la détermination de T_K peut s'avérer plus subtile pour des systèmes proches d'une transition magnétique. En effet, dans ce cas, le gel de l'entropie n'est plus la conséquence de la formation de singulets Kondo, et résulte des corrélations RKKY inter-sites. Il faut alors analyser les résultats de mesures d'autres observables physiques, telles que par exemple les propriétés de transport, et/ou celles liées à la charge, afin de déterminer T_K sans ambiguïté et de distinguer cette quantité de J_{RKKY} . Des mesures de spectroscopie de photo-émission résolue en angle (ARPES) pourraient permettre d'identifier T_K comme la température d'apparition d'un gap d'hybridation entre les orbitales c et f . De manière complémentaire à l'étude effectuée par les auteurs de Réf. [48], nous suggérons d'analyser systématiquement le rapport T_0/T_K à partir de données expérimentales, dans le but de révéler de nouvelles propriétés universelles des composés de fermions lourds.

Certains des résultats obtenus par l'approximation du champ moyen ont été confirmés par des méthodes numériques exactes. Ainsi, par exemple, des calculs utilisant la DMFT ont confirmé que T_0/T_K ne dépend pas du couplage Kondo. Une limitation bien connue du champ moyen reste cependant son incapacité à décrire correctement les excitations du sys-

tème au voisinage d'une transition, lorsque les fluctuations deviennent critiques. Plusieurs prédictions du champ moyen restent cependant raisonnables, comme par exemple les effets liés à la forme de la DOS, et pourraient être testés par des méthodes alternatives ou complémentaires (DMFT ou corrections en $1/N$).

Chapitre 3

Phases (non-)magnétiques quantiques non conventionnelles

Un des problèmes fondamentaux particulièrement étudiés dans le cadre de la matière condensée est le phénomène des transitions de phase quantiques, dans lequel l'état d'un système à température nulle change radicalement sous l'effet d'une variation d'un paramètre physique [91]. Ce chapitre est consacré à ces transitions, et plus particulièrement à certaines phases caractérisées par un état de spin macroscopique quantique et non conventionnel. Beaucoup de ces états (mais pas tous) sont classés sous l'appellation générique de liquide de spin.

L'état de liquide de liens de valence résonnant (RVB¹) fut suggéré en 1973 par Anderson et Fazekas comme état quantique possible pour des spins $1/2$ couplés à basse dimension [92, 93]. Le terme de liquide de spin fut ensuite introduit en 1976 en contraste avec le verre de spin, à partir d'une étude de propriétés dynamiques d'un système désordonné [94]. Plus tard, le concept de liquide de spin a été utilisé pour comprendre la physique des cuprates supraconducteurs à haute température critique [95–99], puis pour décrire certains états quantiques dans les matériaux géométriquement frustrés [100], sur réseaux bi-dimensionnels, carré [101], triangulaire [102, 103], Kagomé [104], et tri-dimensionnel, pyrochlore [105]. Le liquide de spin a aussi émergé dans le contexte des points critiques quantiques dans les fermions lourds [4, 5, 82–84, 106], comme nous l'avons évoqué dans le chapitre précédent. Il peut parfois désigner de manière assez précise une classe d'états de systèmes généralement isolants, présentant un gap de spin et ne brisant pas de symétrie par renversement du temps. Ce nouvel état quantique de la matière peut ainsi être caractérisé par un ordre topologique [107, 108].

Dans ce chapitre, nous pouvons dénommer plus largement liquides de spin des états potentiellement métalliques, n'ayant pas forcément de gap de spin, et pouvant éventuellement briser une symétrie. Le terme liquide de spin ainsi généralisé désigne des états non-triviaux ne présentant pas d'ordre magnétique et pour lesquels la susceptibilité de spin, dynamique et locale, dévie significativement de la loi de Curie caractéristique d'un spin libre.

La pertinence expérimentale du concept de liquide de spin couvre un spectre extrêmement large de composés, de structures cristallographiques, ou de modèles. Nous l'abordons dans ce rapport sous l'angle des méthodes de champ moyen.

1. pour l'anglais Resonating Valence Bond

3.1 Système métallique frustré LiV_2O_4 : exemple de liquide de spin

Dans la première section de ce chapitre, nous verrons comment les fortes corrélations caractéristiques d'un liquide de spin ont permis d'expliquer la grande masse effective mesurée à basse température dans le très étudié composé métallique géométriquement frustré LiV_2O_4 . La deuxième section, dédiée à un autre composé très mystérieux, URu_2Si_2 , décrit l'émergence de liquides de spin brisant spontanément la symétrie du réseau cristallin. La troisième section se consacre à la description par le champ moyen des excitations bosoniques de dimères de spins dans des systèmes de basse dimension.

3.1 Système métallique frustré LiV_2O_4 : exemple de liquide de spin de spin

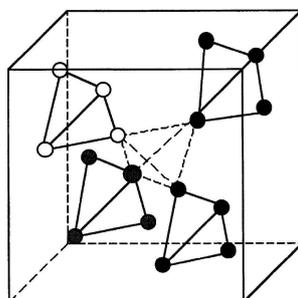


FIGURE 3.1 – Structure cristalline pyrochlore, formée de tétraèdres. Figure d'après [105].

3.1.1 Description du composé LiV_2O_4

Le composé LiV_2O_4 est un métal dont la masse effective très élevée le rend comparable aux composés de type fermions lourds, bien qu'il ne soit constitué d'aucun atome de terre rare [109, 110]. La formation d'un état cohérent de liquide de Fermi, avec des quasiparticules de grande masse effective, en dessous d'une température caractéristique de 20 K est suggérée par un coefficient de Sommerfeld très élevé ($\gamma \approx 420 \text{ mJ/molK}^2$), ainsi que par d'autres propriétés très similaires à celles observées dans de nombreux composés d'électrons f . Depuis plus d'une décennie, de nombreux scénarii ont été proposés pour expliquer l'origine de ce comportement de fermion lourd, unique pour un composé d'électrons d . Les calculs de structure électronique ont fait apparaître que la valeur élevée de la masse effective de LiV_2O_4 résulte des corrélations électroniques fortes et de la géométrie frustrée [111–117]. Divers modèles microscopiques ont été proposés, de réseau Kondo [111], de double échange² [118, 119], de chaîne de spins [120], $t - J$ [121], de Hubbard à deux bandes [122, 123] ou à trois bandes [124], ou des mécanismes de fluctuations de spin [125–127]. Toutes ces approches, bien que mettant en jeu des modèles différents, semblent désormais converger vers un consensus : la frustration géométrique joue un rôle crucial. Nous avons apporté des contributions pionnières à ces études, sous l'angle de la criticalité quantique liée à la frustration, en proposant un scénario de liquide de spin pour ce composé [4],

2. issus de la physique des manganites

3.1 Système métallique frustré LiV_2O_4 : exemple de liquide de spin

ainsi que par la diagonalisation exacte d'un système de taille finie [8]. Les deux sections suivantes présentent un aperçu de ces travaux.

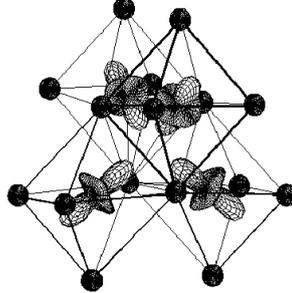


FIGURE 3.2 – Densité d'électrons $3d$ de quatre atomes V , entourés d'octaèdres formés par les atomes O . Dans le composé LiV_2O_4 de structure cristalline spinelle, les atomes de vanadium sont placés sur un réseau pyrochlore formé de tétraèdres. Figure d'après [111].

La structure cristalline du composé LiV_2O_4 est celle d'un spinelle (voir figures 3.1 et 3.2). Les propriétés physiques à basse température sont déterminées par les électrons $3d$ provenant des atomes de Vanadium, dont les positions forment un réseau pyrochlore. La valeur du spin sur chaque site fluctue entre $S = 1$ (orbitale $3d^2$) et $S = 1/2$ (orbitale $3d^1$), avec une valence moyenne de 1.5 électron d par atome V . Plusieurs études, expérimentales ou théoriques, montrent que la frustration magnétique, liée à la structure locale en forme de tétraèdre, est à l'origine de l'augmentation de la masse effective de ce composé. Aussi, puisque le système est métallique, il est important de pouvoir tenir compte des fluctuations de charge.

3.1.2 Modèle phénoménologique, prédictions du champ moyen

Les premiers modèles microscopiques introduits pour décrire le composé LiV_2O_4 furent basés sur l'effet Kondo, mécanisme généralement à l'origine du comportement fermion lourd dans les systèmes d'électrons f . Ainsi, par exemple, dans [111] fut évoqué le possible phénomène d'épuisement électronique du réseau Kondo³. Cependant, nous avons montré que le seul effet Kondo, même en tenant compte des effets de cohérence du réseau Kondo, ne suffit pas à expliquer la valeur élevée de la masse effective. Le modèle phénoménologique minimal que nous avons proposé est un modèle Kondo-Heisenberg [4], qui complète explicitement le modèle Kondo d'un terme d'interaction RKKY. Ce modèle et ses propriétés étudiées par des méthodes de champ moyen sont décrits dans la section 2.4.2 de ce rapport. La méthode de champ moyen DMFT utilisée pour le traitement du terme de Heisenberg, *i.e.*, RKKY, est décrite dans la section 4.2. Le diagramme de phase du modèle Kondo-Heisenberg est illustré par la figure 2.9, faisant apparaître un point critique quantique (QCP) séparant une phase liquide de Fermi Kondo d'une phase dominée par les corrélations de liquide de spin. Nous avons montré que, si l'effet Kondo peut phénoménologiquement expliquer le couplage entre les degrés de liberté de spin et de charge dans ce système métallique, alors l'interaction RKKY et la frustration géométrique, fortes, placent LiV_2O_4 au voisinage d'un tel QCP. Ce

3. voir section 2.3.1

3.1 Système métallique frustré LiV_2O_4 : exemple de liquide de spin

résultat confirme l'importance de la frustration pour expliquer la grande masse effective de ce composé.

Par ailleurs, la règle de Hund, qui régie les interactions microscopiques locales des électrons d de ce matériau, suggère que le couplage entre les degrés de liberté de spin et de charge ne soit pas de type Kondo, mais de type double-échange, similairement à ce qui est utilisé généralement pour décrire les manganites. Le modèle introduit par C. Lacroix [119] est ainsi formellement identique au modèle Kondo-Heisenberg, mais avec une interaction "Kondo ferromagnétique", c'est à dire de double échange. Les résultats obtenus par des approximations de champ moyen pour ce modèle microscopiquement plus correct qu'un modèle Kondo confirment que l'interaction magnétique et la frustration géométrique sont les ingrédients les plus pertinents pour expliquer la forte masse effective du composé LiV_2O_4 .

3.1.3 Diagonalisation exacte d'un petit cluster frustré

Afin d'analyser plus précisément les corrélations magnétiques microscopiques, nous avons effectué un calcul par diagonalisation exacte d'un petit *cluster* constitué de deux tétraèdres déconnectés [8]. Chaque site comporte un électron localisé agissant comme un spin effectif $S = 1/2$, et deux orbitales dont la charge moyenne est de 0.5 électron. Les niveaux énergétiques des électrons itinérants sont donnés par l'interaction d'échange, et les moments locaux sont couplés antiferromagnétiquement. Un couplage de Hund (interaction ferromagnétique) corrèle localement les moments locaux et les électrons itinérants. Nous avons trouvé que pour des valeurs réalistes des interactions, l'état fondamental correspond à des corrélations proche-voisins antiferromagnétiques, alors que des corrélations ferromagnétiques apparaissent lorsque la température augmente. Ce modèle permet ainsi de reproduire qualitativement les résultats expérimentaux obtenus par diffusion inélastique de neutron [128]. En effet, ces expériences ont montré que les corrélations à courte portée sont antiferromagnétiques à basse température et deviennent ferromagnétiques lorsque la température augmente. Ce changement s'accompagne d'une augmentation importante de la valeur du moment effectif résiduel.

3.1.4 Conclusion

Objet de nombreuses études expérimentales et théoriques, le composé LiV_2O_4 est désormais devenu un exemple presque classique de système métallique frustré. Les méthodes de champ moyen se sont avérées efficaces pour tenir compte simultanément de la frustration et des mécanismes de couplage entre charge et magnétisme. L'étude par diagonalisation exacte d'un petit *cluster* fait cependant apparaître la pertinence des corrélations magnétiques entre proches voisins pour expliquer le nombre important d'états de basse énergie. Ces résultats suggèrent que les méthodes de champ moyen sont appropriées pour étudier qualitativement et quantitativement des systèmes métalliques géométriquement frustrés, à condition toutefois de prendre en compte la spécificité de la cellule pertinente, qui est ici un tétraèdre.

3.2 Ordre caché dans URu₂Si₂ : le liquide de spin modulé

Le composé de fermion (modérément) lourd URu₂Si₂ constitue l'une des grandes énigmes de la physique des systèmes d'électrons corrélés. Depuis sa découverte en 1985 [129], il intrigue théoriciens et expérimentateurs, qui cherchent à comprendre la nature de la mystérieuse phase d'ordre caché (HO⁴) qui apparaît en dessous de 17.8 Kelvin. En effet, la chaleur spécifique de ce composé présente un saut important reflétant incontestablement une transition vers une phase ordonnée, bien qu'aucun paramètre d'ordre microscopique n'ait pu encore lui être clairement associé. Seulement récemment, des expériences de diffusion inélastique de neutron (INS) ont montré que la phase HO est caractérisée par des excitations magnétiques indiquant une modulation spatiale commensurable de l'état de spin du système, malgré une absence d'ordre magnétique.

Dans cette section, sont tout d'abord présentés les principaux résultats connus sur URu₂Si₂, sous la perspective des expériences d'INS. Le modèle de liquide de spin modulé, que nous avons introduit, est ensuite analysé comme scénario plausible décrivant la phase HO.

3.2.1 Aperçu de l'état de l'art sur URu₂Si₂

Par soucis de clarté et de concision, cette section est volontairement focalisée sur les résultats expérimentaux directement pertinents pour le modèle de liquide de spin modulé (présenté dans la section suivante). Une description beaucoup plus exhaustive, récente et détaillée des nombreuses études existantes sur URu₂Si₂ et l'ordre caché est disponible dans la revue de J. Mydosch *et al.* [130], ainsi que dans le mémoire de thèse de E. Hassinger [131].

L'ordre caché est très facilement détecté par des mesures sur le composé URu₂Si₂ massif, telles que la chaleur spécifique et la résistivité. Il apparaît que la transition est du deuxième ordre, mais la variation d'entropie, très abrupte, est de l'ordre de $0.3R \ln 2$ par atome U; une telle diminution d'entropie pourrait suggérer qu'il s'agit d'une transition vers un état ordonné magnétiquement, mais cette hypothèse a rapidement été exclue par des mesures de diffusion de neutron. Celles-ci montrent en effet que le moment effectif local dans la phase HO est inférieur à 0.03 magnétons de Bohr (μ_B) par atome U, ce qui est incompatible avec la valeur du saut d'entropie. Par ailleurs, en appliquant une pression hydrostatique ou uni-axiale supérieure à environ 0.5 GPa, l'état ordre caché est remplacé par une phase antiferromagnétique, caractérisée par un vecteur d'onde commensurable $\mathbf{Q}_{AF} = (1, 0, 0)$ et un moment local relativement important de $0.3 \mu_B/U$. Le diagramme de phase mesuré pour URu₂Si₂ est représenté sur la figure 3.3 en coordonnées (pression, température). Notons que bien en dessous de la température de transition d'ordre caché, un état supraconducteur apparaît, à $T_{SC} = 1.2$ K. Très récemment, des expériences de diffusion inélastique de neutrons ont permis de caractériser la phase HO. Comme illustré sur la figure 3.5, le spectre des excitations par neutrons révèle une modulation spatiale commensurable de l'état de spin du système, malgré l'absence d'ordre magnétique. Cette modulation se caractérise par un pic inélastique observé autour du vecteur d'onde commensurable $\mathbf{Q}_0 = (1, 0, 0)$, qui n'est pas présent dans la phase AF obtenue à plus haute pression. Il est remarquable que le vecteur d'onde de cette modulation de la phase HO, \mathbf{Q}_0 , coïncide avec le vecteur d'onde commensurable \mathbf{Q}_{AF} caractérisant l'ordre de la phase AF. Par ailleurs, la présence commune à ces deux phases d'un

4. pour l'anglais "Hidden Order"

3.2 Ordre caché dans URu_2Si_2 : le liquide de spin modulé

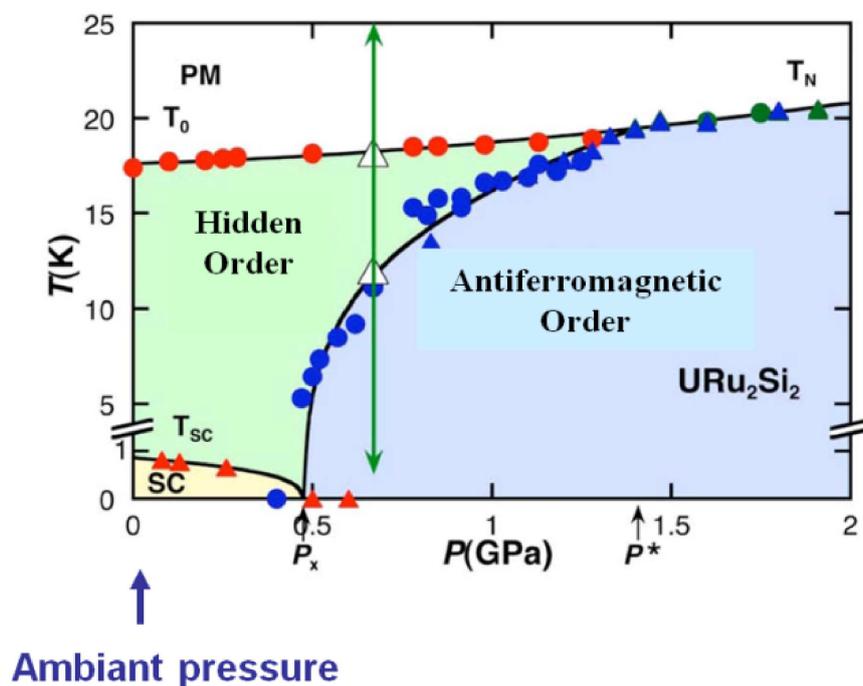


FIGURE 3.3 – Diagramme de phase (Pression appliquée, Température) du composé URu_2Si_2 , obtenu expérimentalement. SC dénote une phase supraconductrice. La ligne verticale indique la pression utilisée pour les expériences de INS décrites par la figure 3.5. Figure d’après [132].

autre pic inélastique, au vecteur incommensurable $\mathbf{Q}^* = (1.4, 0, 0)$, renforce l’idée que les états HO (non magnétique) et AF (magnétique), bien que différents, pourraient briser de la même manière la symétrie de translation du réseau cristallin, *i.e.*, la symétrie tétragonale centrée.

Avant que les mesures de diffusion INS apportent cette remarquable signature, diverses théories avaient été proposées, introduisant des types d’ordres de plus en plus sophistiqués, incluant des ordres orbitaux, quadropolaire [133, 134], octupolaire [135, 136], ou plus récemment hexa-décapolaire [137], ainsi que des théories impliquant des électrons itinérants, impliquant par exemple des ondes de densité de charge [138] : aucune n’a pu proposer un mécanisme qui soit à la fois simple et vérifié (ou vérifiable) expérimentalement. Très récemment, motivé par les expériences d’INS, nous avons proposé un scénario simple, dans lequel l’ordre caché est identifié à ce que nous appelons un « liquide de spin modulé » [9].

3.2.2 Criticalité quantique et émergence du liquide de spin modulé

Contexte général

Les composés de fermions lourds, alliages constitués d’atomes de terres rares ou d’actinides, offrent une multitude de réalisations expérimentales du phénomène de transition de phase quantique [91] (TPQ). Dans ces systèmes, des transitions entre des phases quantiques non magnétiques et magnétiques sont observées sous l’effet de variations de pression mécanique

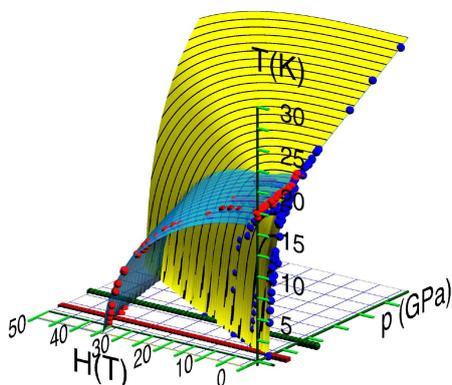


FIGURE 3.4 – Diagramme de phase expérimental du composé URu_2Si_2 (Champ magnétique, Pression appliquée, Température). Pour simplifier, la phase SC n'est pas représentée. Figure d'après [139].

ou chimique, de dopage chimique, de l'application d'un champ magnétique⁵. Au voisinage de ces TPQ, les propriétés thermodynamiques, magnétiques, et de transport de ces métaux présentent des dépendances très inattendues en température et en énergie [45], qui ne peuvent être expliquées par la théorie standard de Landau des liquides de Fermi [140–142]. Ces propriétés sont dénommées "non liquide de Fermi".

Compétition entre Kondo et RKKY : QCP et liquide de spin

Avant toute analyse, rappelons que le composé URu_2Si_2 est un fermion lourd. Le prototype des fermions lourds est un alliage cristallin contenant des gros atomes tels que Ce, U, ou Yb, et dont les propriétés métalliques inhabituelles proviennent presque systématiquement des orbitales électroniques $4f$ ou $5f$. Le principal mécanisme physico-chimique mis en jeu dans ces systèmes est globalement bien compris depuis quelques décennies : à basse température⁶, la dégénérescence de la couche d'électrons f est partiellement levée, sous l'effet du couplage spin-orbite, du champ cristallin, et éventuellement du couplage de Hund. Le processus de gel d'entropie, à plus basse température, peut alors être décrit par un modèle de type réseau Kondo, dans lequel les pseudo-spin Kondo $1/2$ représentent les degrés de liberté orbitaux des électrons f , en interaction Kondo avec les degrés de liberté de charge des électrons de conduction (voir chapitre 2). Le diagramme de Doniach, introduit en 1976, permet de décrire la compétition entre l'effet Kondo et l'interaction RKKY⁷ [49]. Lorsque l'effet Kondo domine, une phase de liquide de fermions lourds se forme à très basse température. Dans le cas inverse où les interactions RKKY dominent, un ordre magnétique peut apparaître, et le diagramme de phase peut présenter plusieurs types d'ordre magnétique. Notons qu'une prise en compte plus précise de la chimie des orbitales f peut aussi faire apparaître

5. voir section 2.4

6. typiquement, en dessous de 100 K

7. voir section 2.4.2

3.2 Ordre caché dans URu_2Si_2 : le liquide de spin modulé

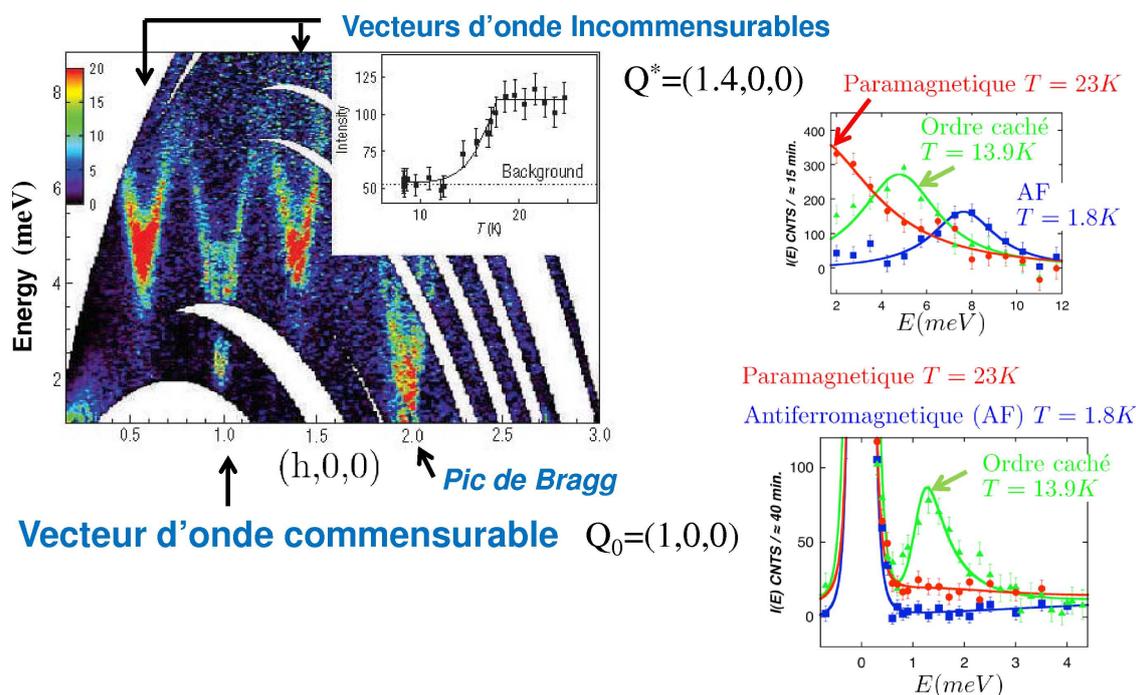


FIGURE 3.5 – Résultats expérimentaux obtenus par diffusion inélastique de neutrons (INS) sur le composé URu_2Si_2 . A gauche, intensité du signal diffusé en coordonnées (moment-énergie), mesuré à pression ambiante, et pour $T = 1.5\text{ K}$. Figure d'après [144]. A droite : intensité du signal en fonction de l'énergie, en haut pour le vecteur d'onde incommensurable $Q^* = (1.4, 0, 0)$, et en bas pour le vecteur commensurable $Q_0 = (1, 0, 0)$. Mesures effectuées sous pression $P = 0.67\text{ GPa}$ (voir la ligne indicative verticale sur le diagramme de la figure 3.4), pour trois valeurs de températures, correspondant aux phases paramagnétique ($T = 23\text{ K}$), ordre caché ($T = 13.9\text{ K}$), et antiferromagnétique ($T = 1.8\text{ K}$). Le signal mesuré pour le vecteur d'onde commensurable $Q_0 = (1, 0, 0)$ fait apparaître une différence cruciale entre les phases ordre caché et antiferromagnétique ; en effet, pour ce vecteur, un pic d'excitations inélastiques à environ 2 meV caractérise la phase d'ordre caché. Figures d'après [132].

une grande richesses de phases, dans lesquelles un écrantage Kondo partiel [86, 143] peut coexister avec différentes phases magnétiques [1, 29, 38] (voir par exemple la figure 1.1). En présence de frustration, une interaction RKKY relativement importante peut aussi détruire l'effet Kondo (ou le rendre partiel), en faveur d'une phase non magnétique, de liquide de spin [4, 5, 82–84, 106] (voir figure 2.9). Un point critique quantique (QCP) peut ainsi séparer deux phases non magnétiques, par une transition topologique purement quantique caractérisée par une discontinuité du volume de la surface de Fermi. Cette discontinuité correspond à une localisation partielle des électrons f , similaire à une transition de Mott.

Connexion entre QCP Kondo, et URu_2Si_2

La question de la criticalité quantique dans les composés de fermions lourds a beaucoup été étudiée, principalement sous l'angle d'une instabilité de la phase de liquide de Fermi. Les phases localisées de ces systèmes, quant à elles, ont été peu étudiées puisqu'elles sont habi-

tuellement conventionnelles, comme par exemple, ordonnées antiferromagnétiquement, ou de type verre de spin. URu₂Si₂ offre un parfait exemple de phase ordonnée non conventionnelle.

Le liquide de spin modulé et URu₂Si₂

Nous avons introduit le concept de liquide de spin modulé (LSM), afin d'expliquer la mystérieuse phase "ordre caché" de (HO) URu₂Si₂ [9]. L'état quantique que nous décrivons, le liquide de spin modulé (LSM), a été construit pour prendre en compte la très forte analogie entre la phase HO et la phase AF, qui semblent briser la symétrie de réseau tétragonale centrée de la même manière (voir figure 3.5). Le LSM peut s'interpréter comme une superposition inhomogène de singulets formés entre les pseudo-spins des états f de sites voisins, caractérisée par une modulation dans l'espace dual du réseau cristallin. Il apparaît que cette modulation est commensurable avec celle du paramètre d'ordre de la phase AF, et brise ainsi la symétrie de réseau de manière analogue.

3.2.3 Liquide de spin modulé : un modèle simplifié sur réseau carré

Conscient que la prise en compte simultanée des propriétés métalliques et magnétiques du composé URu₂Si₂ nécessite, au minimum, l'introduction d'un modèle de type $t - J$ ou Kondo-Heisenberg, nous choisissons dans une première approche de ne nous intéresser qu'aux propriétés magnétiques [9]. Le modèle introduit pour décrire le liquide de spin modulé et étudier sa compétition avec la phase AF se réduit ainsi en un "simple" modèle défini par le Hamiltonien de Heisenberg quantique, $H = \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$, avec interaction antiferromagnétique $J_{ij} < 0$ entre spins 1/2 voisins. Pour simplifier encore un peu plus, tout en préservant intégralement le concept de liquide de spin modulé, nous considérons un réseau carré. Inspirés par les travaux précurseurs de Fazekas et Anderson [93] sur l'état de liens de valence résonnant (RVB), suivis de ceux de Anderson, Baskaran *et al.* [95, 96, 99], le Hamiltonien de Heisenberg est exprimé en utilisant une représentation fermionique des opérateurs de spin,

$$H = J \sum_{\langle i,j \rangle, \alpha\alpha'} f_{i\alpha}^\dagger f_{i\alpha'} f_{j\alpha'}^\dagger f_{j\alpha}, \quad (3.1)$$

où $f_{i\alpha}^{(\dagger)}$ désigne des opérateurs d'annihilation (création) de fermions dénommés "spinons", d'indice de spin $\alpha = \pm$. Afin que les spinons puissent satisfaire les contraintes locales $\sum_{\alpha} f_{i\alpha}^\dagger f_{i\alpha} = 1$, sont introduits des multiplicateurs de Lagrange λ_i . Dans l'approximation du champ moyen, le terme d'interaction dans (3.1) peut être découpé selon différents canaux, introduisant chacun un champ effectif spécifique, incluant le champ RVB de liens de valence, $\sum_{\alpha} \langle f_{i\alpha}^\dagger f_{j\alpha} \rangle$, et le champ AF d'ordre magnétique, $e^{i\mathbf{Q}_{AF} \cdot \mathbf{r}_i} \sum_{\alpha\alpha'} \langle f_{i\alpha}^\dagger \boldsymbol{\sigma}_{\alpha\alpha'} f_{i\alpha'} \rangle$, où $\boldsymbol{\sigma}$ désigne les matrices de spin de SU(2), et $\mathbf{Q}_{AF} \equiv (\pi, \pi)$ le vecteur d'onde AF correspondant à un ordre de Néel. Notons qu'un troisième canal de découplage, supraconducteur, pourrait être envisagé si des fluctuations de charges étaient prises en compte par le modèle.

Avant de procéder à ces découplages de champs-moyens, précisons que notre approche est phénoménologique, motivée par la description et l'étude d'un état de liquide de spin spatialement modulé, c'est à dire pour lequel le champ RVB présente une inhomogénéité périodique.

3.2 Ordre caché dans URu₂Si₂ : le liquide de spin modulé

Cette solution n'a pas prétention à caractériser l'état fondamental du modèle de Heisenberg sur réseau carré *stricto sensu*, dont la fonction d'onde et les corrélations sont bien mieux décrites par l'approche de Liang, Douçot et Anderson [145]. On suppose ici que des phénomènes incluant la frustration et les fluctuations de charge, non pris en compte explicitement par le modèle (3.1), imposent de découpler pour chaque lien ij une partie J_{SL} de l'interaction dans le canal RVB, et une autre partie J_{AF} dans le canal magnétique, avec $J = J_{SL} + J_{AF}$. Le rapport J_{AF}/J_{SL} est ainsi un paramètre phénoménologique du modèle, contrôlé par la pression uni-axiale ou hydrostatique appliquée au système. Les découplages sont effectués par des transformations de Hubbard-Stratonovich pour chaque lien ij et dans chaque canal, conduisant au Lagrangien suivant,

$$\mathcal{L} = \mathcal{E}_0 + \sum_{i\alpha} f_{i\alpha}^\dagger \left(\partial_\tau + \lambda_i + \alpha \sum_z m_{i+z} \right) f_{i\alpha} + \sum_{\langle i,j \rangle, \alpha} \left[\varphi_{ij} f_{i\alpha}^\dagger f_{j\alpha} + c.c. \right], \quad (3.2)$$

où z dénote l'indice de proche voisin, et $\mathcal{E}_0 \equiv -\sum_i \lambda_i + \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{1}{J_{SL}} |\varphi_{ij}|^2 - \frac{1}{2J_{AF}} m_i m_j \right]$. Dans la suite, les champs de Hubbard-Stratonovich des canaux de découplage RVB liquide de spin et AF sont remplacés par leurs valeurs constantes, auto-consistantes, de champ moyen, $\varphi_{ij} = -J_{SL} \sum_\alpha \langle f_{i\alpha}^\dagger f_{j\alpha} \rangle$, et $m_i = J_{AF} \sum_\alpha \alpha \langle f_{i\alpha}^\dagger f_{i\alpha} \rangle$.

Dans la théorie RVB des cuprates supraconducteurs, un paramètre uniforme a été proposé comme ansatz, $\varphi_{ij} = \varphi_0 \sum_z \delta_{\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j+z}$, ainsi que des phases de flux, $\varphi_{ij} = \varphi_0 e^{i\Phi/4n_{ij}}$, où Φ est le flux par plaquette et $n_{ij} = (r_i - r_j)/a = \pm 1$ (où a est le pas du réseau) est un nombre donnant une orientation au lien ij [99]. L'ansatz de liquide de spin modulé est le suivant :

$$\varphi_{ij} = \sum_z \delta_{\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j+z} \left(\phi_0 + \phi_Q e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j)/2} \right). \quad (3.3)$$

Cet état SLM est différent d'une phase de flux car il préserve la symétrie de chaque lien, $\varphi_{ij} = \varphi_{ji}$. Le vecteur d'onde $\mathbf{Q} \equiv (\pi, \pi)$ caractérise une modulation d'amplitude de φ_{ij} , qui oscille de lien en lien, comme illustré par la figure 3.6. Le champ RVB modulé donné

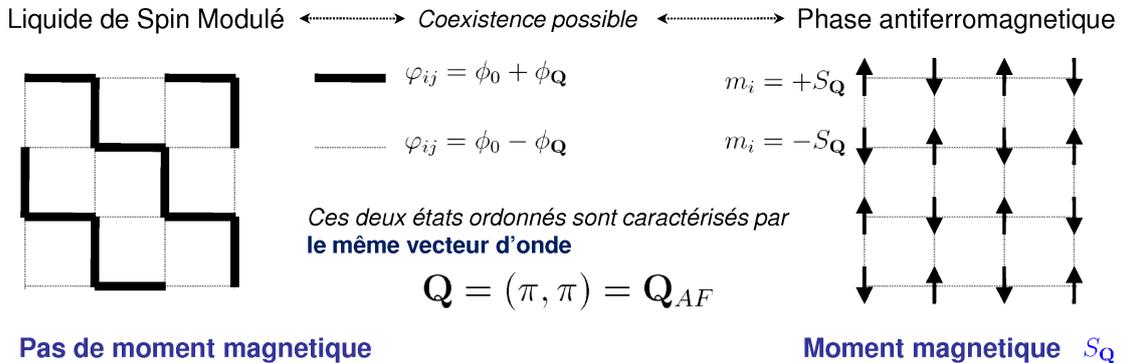


FIGURE 3.6 – Schémas descriptif de l'état de liquide de spin modulé parent de l'état antiferromagnétique de Néel, sur un réseau carré.

par l'ansatz 3.3 est en compétition avec le champ d'aimantation antiferromagnétique $m_i = S_Q e^{i\mathbf{Q}_{AF} \cdot \mathbf{r}_i}$, caractéristique d'un ordre de Néel avec $\mathbf{Q}_{AF} = (\pi, \pi)$. La figure 3.7 présente

3.2 Ordre caché dans URu₂Si₂ : le liquide de spin modulé

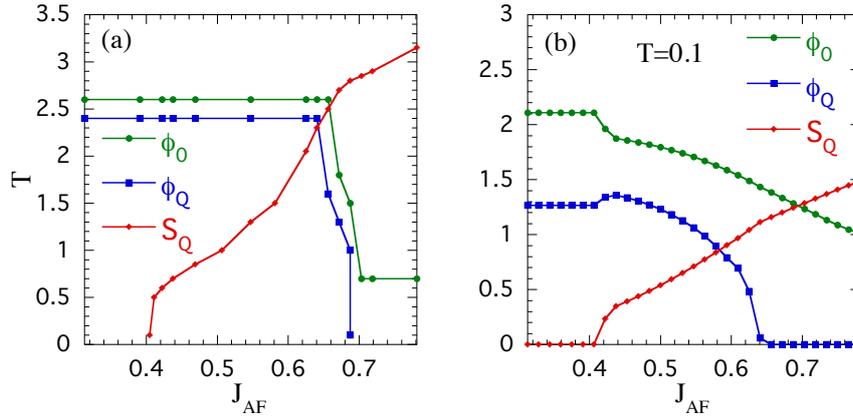


FIGURE 3.7 – (a) Diagramme de phase dans le plan (T, J_{AF}) , obtenu pour $J_{SL} = 5$. Les cercles verts, carrés bleus, et diamants rouges indiquent la température en dessous de laquelle les champs de liquide de spin ϕ_0 , ϕ_Q , et d'aimantation, S_Q , prennent respectivement des valeurs non nulles. (b) Variation de ϕ_0 , ϕ_Q , et S_Q en fonction de J_{AF} pour $T = 0.1$. Figure d'après [9].

le diagramme de phase obtenu en minimisant, de manière auto-consistante, l'énergie libre correspondant au Lagrangien 3.2 Il est remarquable que la solution de liquide de spin la plus stable ne soit pas homogène et corresponde à une modulation avec ϕ_0 et ϕ_Q non nuls. Le diagramme de phase dans le plan (T, J_{AF}) est à rapprocher qualitativement de celui obtenu expérimentalement pour URu₂Si₂ dans le plan (T, p) , présenté figure 3.3.

3.2.4 Liquide de spin modulé : réseau 3D réaliste, tétragonal centré

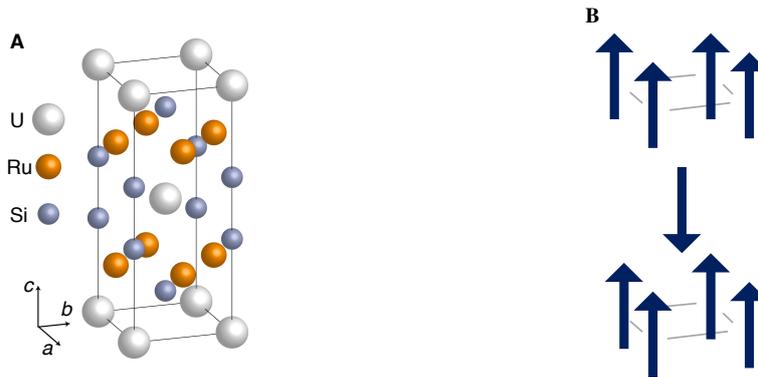


FIGURE 3.8 – **A** : structure cristalline de URu₂Si₂. Les propriétés magnétiques émergent des électrons 5f des atomes U, disposés sur un réseau tétragonal centré (tc). **B** : structure spatiale de l'ordre AF observé pour URu₂Si₂ à haute pression (voir diagramme de phase, figure 3.3), qui brise la symétrie cristalline en un réseau tétragonal [146, 147].

Le liquide de spin modulé a été introduit dans la section précédente sur un réseau carré. Nous voyons ici comment cet état de spin quantique collectif peut apparaître sur un réseau tridimensionnel, proposant ainsi un scénario microscopique plus réaliste pour la phase d'ordre caché [10]. Le point de départ de cette généralisation s'appuie sur la structure cristalline

3.2 Ordre caché dans URu_2Si_2 : le liquide de spin modulé

du composé URu_2Si_2 , dont les atomes U forment un réseau tétragonal centré (tc), comme illustré sur la figure 3.8. Le principal effet de Ru et Si se réduit en une renormalisation de la structure de bande électronique.

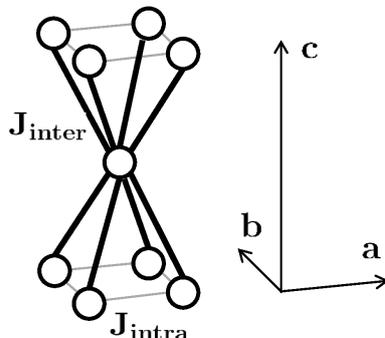


FIGURE 3.9 – Structure tétragonale centrée (tc) des atomes d’uranium dans URu_2Si_2 . Le modèle de Heisenberg le plus simple permettant de reproduire la structure magnétique de la phase AF (voir figure 3.8) implique deux couplages proche-voisins : un échange ferromagnétique, $J_{intra} < 0$, dans les plans (a, b) , et un échange antiferromagnétique, $J_{inter} > 0$, entre les atomes de deux plans voisins.

Suivant la méthode décrite pour un réseau carré dans la section précédente on commence avec un Hamiltonien de Heisenberg quantique, en utilisant pour les opérateurs de spin $1/2$ une représentation fermionique standard, $H = \sum_{\langle i,j \rangle, \alpha\alpha'} J_{ij} f_{i\alpha}^\dagger f_{i\alpha'} f_{j\alpha'}^\dagger f_{j\alpha}$, où les spinons satisfont les contraintes locales $\sum_{\alpha} f_{i\alpha}^\dagger f_{i\alpha} = 1$. Contrairement au réseau carré, ici, nous considérons deux types de couplages. En effet, la structure cristalline tc fait apparaître des liens proche-voisins non équivalents, selon que le lien couple deux atomes U dans un même plan cristallin (a, b) ou entre deux plans voisins, comme indiqué sur la figure 3.9. On choisit le signe de ces deux couplages afin de reproduire le plus simplement la structure magnétique de la phase AF (voir figure 3.8). On obtient ainsi une interaction ferromagnétique, $J_{ij} = J_{intra} < 0$, entre sites i et j appartenant à un même plan (a, b) , et une interaction antiferromagnétique, $J_{ij} = J_{inter} > 0$, entre les sites de deux plans voisins. Phénoménologiquement, l’effet de la pression hydrostatique ou uni-axiale exercée sur le composé URu_2Si_2 se traduit par une variation du rapport J_{inter}/J_{intra} .

Dans la suite, nous étudions ce modèle de Heisenberg par des approximations de champ moyen, issues de découplages par des transformations de Hubbard-Stratonovich dans les canaux magnétique et RVB. En faisant apparaître naturellement deux types de liens différents (inter- et intra-plan), le réseau tc permet de distinguer plusieurs types de découplages. Pour cette étude, l’interaction ferromagnétique intra-plan est découplée intégralement dans le canal magnétique. L’interaction antiferromagnétique inter-plan, quant à elle, pourrait être découplée de manière mixte, dans les deux canaux, AF et RVB. Cependant, au niveau champ moyen, le découplage dans le canal AF ne ferait que renormaliser le champ de Weiss local issu de l’interaction ferromagnétique intra-plan. Par conséquent, sans perdre en généralité, l’interaction inter-plan est découplée exclusivement dans le canal RVB. On obtient un Lagrangien effectif pour les spinons formellement assez proche de celui obtenu pour le réseau carré (Eq. 3.2), impliquant plusieurs champs moyens : un champ RVB éventuellement modulé $\varphi_{ij} = -J_{inter} \sum_{\alpha} \langle f_{i\alpha}^\dagger f_{j\alpha} \rangle$ apparaît sur chaque lien inter-plan et s’oppose au champ

3.2 Ordre caché dans URu₂Si₂ : le liquide de spin modulé

de Weiss local $m_i = J_{intra} \sum_{\alpha} \alpha \langle f_{i\alpha}^{\dagger} f_{i\alpha} \rangle$. La figure 3.10 présente des exemples de modu-

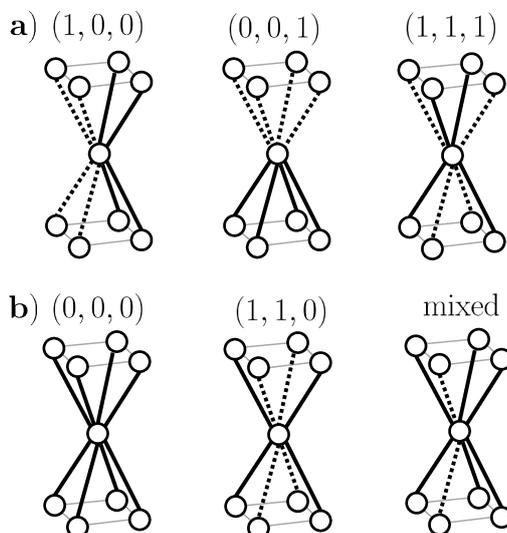


FIGURE 3.10 – Modulations de liquide de spin possibles représentées sur une cellule unitaire du réseau tétragonal. Les lignes pointillées représentent un lien $\varphi_{ij} = \varphi_0 + \varphi_{\mathbf{Q}}$, et les lignes pleines un lien $\varphi_{ij} = \varphi_0 - \varphi_{\mathbf{Q}}$. (a) Trois vecteurs d’ondes différents pertinents car ils correspondent à un nombre impair de modulations. (b) Respectivement, le liquide de spin homogène, un vecteur d’onde exclus avec modulation paire, et une modulation mixte pouvant faire intervenir plusieurs vecteurs d’ondes.

lations pouvant être considérées pour le champ RVB. Parmi la multitude de modulations possibles, sont exclues celles qui sont caractérisées par un nombre paire de directions modulées, comme par exemple la modulation $(1, 1, 0)$. En effet, ces états préservent la symétrie du réseau tc, et ne donnent pas lieu à une transition de phase, mais à un *crossover*. Motivés par la recherche d’un scénario tri-dimensionnel permettant de décrire la transition d’ordre caché observée dans URu₂Si₂, nous nous intéressons aux états LSM dont le nombre de modulations est impair, et nous avons étudié plus particulièrement les trois états correspondant aux vecteurs de modulation $(1, 0, 0)$, $(0, 0, 1)$, et $(1, 1, 1)$. En calculant l’énergie libre du modèle champ-moyen obtenu pour chacune de ces trois modulations [10], nous observons que l’état LSM le plus stable correspond au vecteur d’onde $\mathbf{Q} = (1, 1, 1)$. Notons que ces trois modulations sont équivalentes du point de vu de l’ordre magnétique à longue portée, qui est un ordre défini sur les sites du réseau tc (voir figure 3.8). Cependant, ces trois vecteurs d’onde diffèrent lorsqu’ils décrivent l’état LSM, qui définit un ordre sur les liens du réseau. Le vecteur de modulation obtenu, $\mathbf{Q} = (1, 1, 1)$ permet alors de caractériser à la fois une modulation particulière de l’ordre de liens RVB, et en même temps l’ordre AF. Le scénario bi-dimensionnel illustré sur un réseau carré par la figure 3.6 est ainsi adapté au réseau tri-dimensionnel tétragonal centré : les deux phases, LSM, et AF, diffèrent du point de vue de la présence ou non d’un moment magnétique local, mais elles brisent la symétrie spatiale en formant le même réseau bipartite de symétrie tétragonale, et sont caractérisées par le même vecteur d’onde $\mathbf{Q} = (1, 1, 1) = \mathbf{Q}_{AF}$. Pour prendre en compte phénoménologiquement la pression uni-axiale ou hydrostatique exercée expérimentalement, une relation linéaire a été supposée, entre la valeur des couplages magnétiques du modèle, J_{intra} et J_{inter} , et la varia-

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

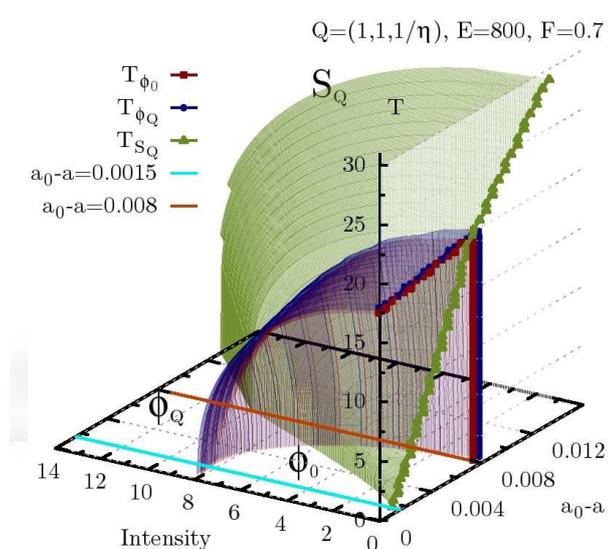


FIGURE 3.11 – Diagramme de phase obtenu par l'approximation du champ moyen. T désigne la température en Kelvin, et $a_0 - a$ la variation du paramètre de maille du réseau cristallin, $a = b$. La courbe T_{Φ_Q} indique la température de transition de la phase LSM, et T_{S_Q} désigne la transition AF. Application numérique pour $J_{intra}(0) = -3.7$, $J_{inter}(0) = 35$, $E = 800$, et $F = 0.7$. Figure d'après [10].

tion du paramètre de maille $a = b$ du réseau cristallin : $J_{intra}(a) = J_{intra}(0) - E \cdot (a_0 - a)$ et $J_{inter}(a) = J_{inter}(0) + E \cdot F \cdot (a_0 - a)$. La valeur numérique des constantes $J_{intra}(0)$, $J_{inter}(0)$, E , et F s'obtient à partir du diagramme de phase expérimental. La figure 3.11 présente le diagramme de phase obtenu pour notre modèle théorique en considérant la modulation $(1, 1, 1)$. La dépendance en pression et température présente des similarités avec le diagramme de phase obtenu expérimentalement, représenté par les figures 3.3 et 3.4.

3.2.5 Conclusion

Dans cette section, nous avons décrit un nouveau type de liquide de spin, modulé. Il s'agit d'un état de spin collectif, caractérisé par une absence de moment magnétique local, mais par une brisure de la symétrie de translation du réseau cristallin. Cet état purement quantique peut émerger naturellement sur un réseau cristallin bipartite, tel que le réseau carré en $2D$ ou le réseau tétragonal centré en $3D$, et la brisure de symétrie spatiale qu'il implique est connectée à celle de l'ordre de Néel, plus classique, pouvant apparaître sur le même réseau.

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

Les dimères de spin couplés sont devenus des systèmes modèle pour étudier les transitions de phase quantiques [149, 150]. Parmi les nombreux exemples de matériaux concernés, TlCuCl_3 constitue un composé prototype, pour lequel les ions Cu^{2+} se comportent comme des spins

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

$S = 1/2$ en interaction via un couplage de type super-échange porté par les ions Cl^- [150–153] (voir figure 3.12). D'autres composés, comme par exemple $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Br}_9$ présentent des propriétés similaires [154] liées aux ions magnétiques Cr^{3+} (voir figure 3.13). De tels di-

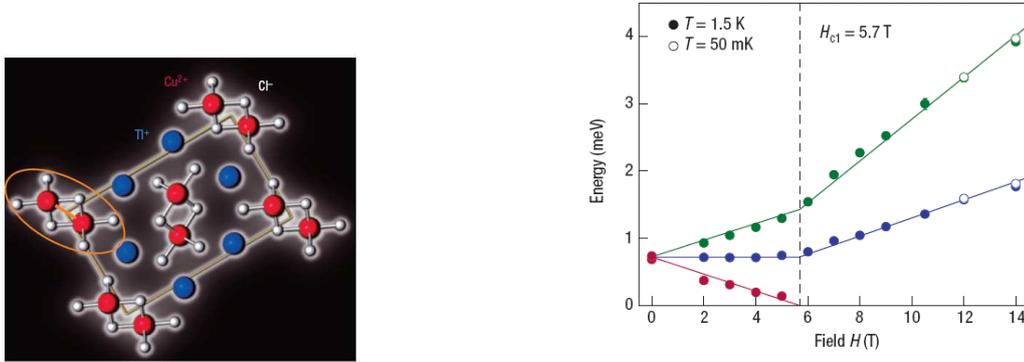


FIGURE 3.12 – A gauche : dimères dans le composé TlCuCl_3 . A droite : spectre d'excitations par diffusion inélastique de neutrons sur le composé TlCuCl_3 , montrant la levée de dégénérescence Zeeman entre les trois modes triplets, induites par l'application d'un champ magnétique. A partir d'un champ $H > H_{c1}$, une phase différente apparaît, caractérisée par un ordre AF dans la direction transverse au champ appliqué [151–153]. Figures d'après [150].

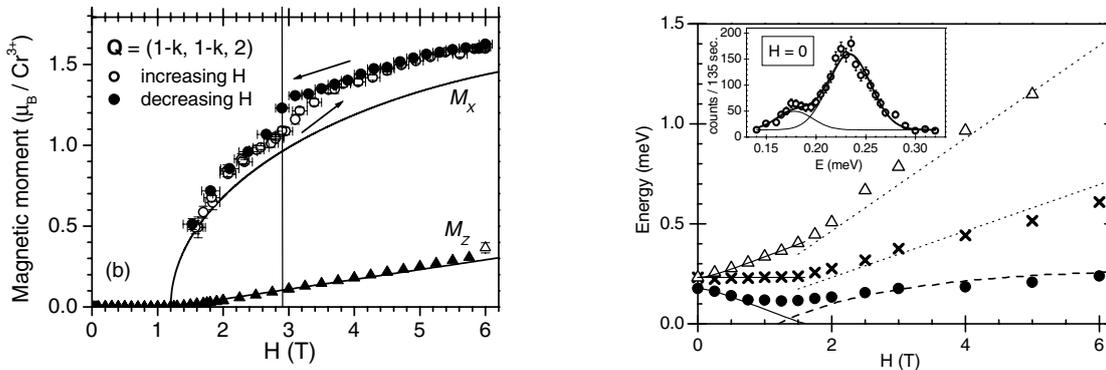


FIGURE 3.13 – Dépendances en champ magnétique appliqué sur le composé $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Br}_9$. A gauche : moment magnétique transverse, nul dans la phase paramagnétique, et non nul pour $H > H_{c1}$. A droite : spectre d'excitations par diffusion inélastique de neutrons, avec levée de dégénérescence Zeeman entre les trois modes triplets. Notons que, contrairement à TlCuCl_3 , la bande de triplon de $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Br}_9$ reste "gapée" dans la phase $H > H_{c1}$. En effet, certaines anisotropies empêchent l'apparition des modes de Goldstone qui seraient associés à la fermeture du gap. Figures d'après [154].

mères magnétiques s'obtiennent en plaçant des spins quantiques sur un réseau périodique régulier, comportant deux spins par cellule unitaire, avec un fort couplage antiferromagnétique J' interne à la cellule, comparé à un faible couplage J entre cellules. Plusieurs exemples de

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

modèles de dimères de spin, alternés, en colonne, en chevron ou en bi-couche, sont présentés sur la figure 3.14.

Le spectre d'excitations magnétique observé par diffusion inélastique de neutrons sur des composés tels que TlCuCl_3 ou $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Br}_9$ (voir figures 3.12 et 3.13) peut s'expliquer à partir d'un modèle de dimères avec $J' \gg J$: l'état fondamental du système, paramagnétique est caractérisé par la formation de singulets locaux, *i.e.* de dimères de spin. Les excitations magnétiques présentent un gap, qui correspond à l'énergie J' nécessaire pour exciter un dimère dans l'un des trois états triplets. Ces excitations, qui ont un caractère bosonique, portent le nom de triplons. En appliquant un champ magnétique H , la dégénérescence des excitations triplet est levée par effet Zeeman. A partir d'une valeur critique du champ appliqué, $H > H_{c1}$ le gap se referme pour l'une des trois branches d'excitations de triplons, et le système est le siège d'une transition de phase entre l'état paramagnétique (avec gap), et un état magnétiquement ordonné. Dans les cas les plus simples, la phase ordonnée correspond à un ordre antiferromagnétique dans la direction transverse au champ appliqué, induite par le faible couplage inter-dimère J . Cette phase peut s'interpréter comme une phase de condensation de Bose des triplons [150, 155]. La phase ordonnée peut aussi s'obtenir en augmentant le couplage entre les dimères, ce qui peut être réalisé expérimentalement en faisant varier la pression. A la transition quantique, l'annulation du gap d'excitation d'une bande de triplons correspond à l'apparition d'un mode de Goldstone dans la phase ordonnée. Ce mode peut éventuellement disparaître et la bande de triplons rester "gapée" lorsque certaines anisotropies sont présentes dans le système, comme il semblerait que cela soit le cas dans le composé $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Br}_9$ [154].

3.3.1 Modèle et méthode des opérateurs de liens

On considère un modèle de dimères de spins défini par un Hamiltonien de Heisenberg

$$\mathcal{H} = J' \sum_i \vec{S}_i^1 \cdot \vec{S}_i^2 + \sum_{\langle i,j \rangle} \sum_{nm} J_{ij}^{nm} \vec{S}_i^n \cdot \vec{S}_j^m, \quad (3.4)$$

où \vec{S}_i^n , avec $n = 1, 2$ désigne l'un des deux spins quantiques $1/2$ placé sur le site-dimère i d'un réseau périodique. Le couplage inter-dimère proche-voisins J_{ij}^{nm} , périodique, peut prendre quatre valeurs, J_{11} , J_{12} , J_{21} , et J_{22} . Suivant la procédure introduite dans Réf. [156], et désormais devenue standard [157–160], on décrit les excitations du système en introduisant quatre opérateurs bosoniques, sur chaque site-dimère : $\{s_i^\dagger, t_{i\alpha}^\dagger\}$ ($\alpha = x, y, z$) créent les états de dimère à partir d'un vide fictif $|0\rangle$. Explicitement, et en omettant l'indice de site, l'état de dimère singulet $|s\rangle \equiv (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$ est identifié à $s^\dagger|0\rangle$. De même, les trois états triplets, $|x\rangle \equiv (-|\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle)/\sqrt{2}$, $|y\rangle \equiv i(|\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle)/\sqrt{2}$, et $|z\rangle \equiv (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$, sont identifiés aux occupations de triplons $|\alpha\rangle = t_{i\alpha}^\dagger|0\rangle$. L'espace de Hilbert est préservé en imposant les contraintes locales de coeur dur pour les bosons, $s_i^\dagger s_i + \sum_\alpha t_{i\alpha}^\dagger t_{i\alpha} = 1$. Les opérateurs de spin originels \vec{S}^1 et \vec{S}^2 sur chaque dimère sont donnés par $S_\alpha^{1,2} = \pm \frac{1}{2}(s^\dagger t_\alpha + t_{i\alpha}^\dagger s \mp i\epsilon_{\alpha\beta\gamma} t_\beta^\dagger t_\gamma)$, où $\epsilon_{\alpha\beta\gamma}$ est le tenseur antisymétrique avec $\epsilon_{xyz} = 1$, et la somme sur les indices répétés est implicite.

Dans la suite de la procédure, le Hamiltonien (3.4) est exprimé en fonction des opérateurs de lien s_i^\dagger et $t_{i\alpha}^\dagger$. Gardons bien à l'esprit le fait que cette méthode est développée dans le but de

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

décrire les excitations de la phase paramagnétique, qui est fortement dominée par le couplage intra-dimère J' . L'état fondamental est ainsi très proche d'une mer de singulets localisés sur chaque dimère, $|\Psi_0\rangle = \prod_i s_i^\dagger |0\rangle$. La contrainte de boson de coeur dur peut alors être prise en compte de deux manières (ces deux approches sont rencontrées dans la littérature) : (a) Par analogie avec la théorie des ondes de spin, on substitue $s_i = s_i^\dagger = (1 - t_{i\alpha}^\dagger t_{i\alpha})^{1/2}$, et on développe la racine carré pour obtenir une série en puissances croissantes du nombre de triplons, supposé faible. (b) On identifie simplement le vide $|0\rangle$ local à l'état de dimère singulet, ce qui revient à remplacer $s_i = s_i^\dagger = 1$, et mettre la contrainte de coeur dur sous la forme $\sum_\alpha t_{i\alpha}^\dagger t_{i\alpha} < 1$. Dans les deux cas, le Hamiltonien 3.4 est développé formellement en une somme de termes d'interactions faisant intervenir un nombre croissant d'opérateurs de triplons,

$$\mathcal{H} = E_0 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_3 + \mathcal{H}_4 + \mathcal{H}_{reste} , \quad (3.5)$$

où $E_0 = 3J'N/8$, N étant le nombre de site-dimères, et $\mathcal{H}_{2,3,4}$ désigne les termes d'interaction faisant intervenir deux, trois, et quatre opérateurs de triplons. Les traitements (a) et (b) de la contrainte de boson de coeur dur ne diffèrent que dans des termes d'ordre supérieur, rassemblés dans \mathcal{H}_{reste} .

Les trois branches d'excitations mesurées par diffusion inélastique de neutrons sur les composés TlCuCl_3 et $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Br}_9$, présentées sur les figures 3.12 et 3.13, peuvent s'expliquer à partir du seul terme quadratique, $\mathcal{H}_2 = \sum_{\mathbf{k}\alpha} \left(A_{\mathbf{k}} t_{\mathbf{k}\alpha}^\dagger t_{\mathbf{k}\alpha} + \frac{1}{2} B_{\mathbf{k}} [t_{\mathbf{k}\alpha}^\dagger t_{-\mathbf{k}\alpha} + c.c.] \right)$, où les coefficients $A_{\mathbf{k}}$ et $B_{\mathbf{k}}$ dépendent de la géométrie du réseau. Ce triple spectre, d'énergies $\Omega_{\mathbf{k}\alpha} = \sqrt{A_{\mathbf{k}}^2 - B_{\mathbf{k}}^2} - \alpha H$ correspond à trois bandes d'excitations cohérentes d'états de triplon de spin 1, dont la dégénérescence est levée par l'application d'un champ magnétique H . Lorsque le champ atteint une valeur critique H_{c1} , le gap se referme pour un vecteur d'onde critique \mathbf{k}_{AF} , caractéristique de la phase ordonnée.

3.3.2 Modèles de dimères, interaction cubique, et criticalité quantique

Cette section se concentre sur l'étude de la criticalité du modèle de dimères de spin, abordée sous l'angle des opérateurs de triplons introduits dans la section précédente. En général, il est couramment supposé que la transition de phase du modèle de Heisenberg quantique appartient à la même classe d'universalité que le modèle classique de dimension $d + z$. Pour le modèle de dimères qui nous intéresse ici, l'exposant dynamique $z = 1$ [91] et la dimension $d = 2$ suggèrent que les exposants critiques correspondent à un modèle de Heisenberg classique tri-dimensionnel et appartiennent à la classe d'universalité du groupe de symétrie $O(3)$. Cette prédiction a été vérifiée par des simulations numériques pour des plusieurs types de modèles de dimères [161–165]. Cependant, d'autres simulations numériques par Monte Carlo Quantique, effectuées notamment sur un modèle de dimères alternés (voir figure 3.14), ont suggéré que l'exposant critique de la longueur de corrélation pourrait appartenir à une autre classe d'universalité [166, 167]. En utilisant des calculs numériques par Monte Carlo Quantique pour différents modèles de dimères, et par groupe de renormalisation, nous avons mis en évidence l'existence de deux classes de modèles de dimères [11] (voir figure 3.14) : les exposants critiques de la première (classe A) suivent les lois d'échelle standards du groupe de symétrie $O(3)$, alors que des corrections apparaissent pour la deuxième classe (classe B).

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

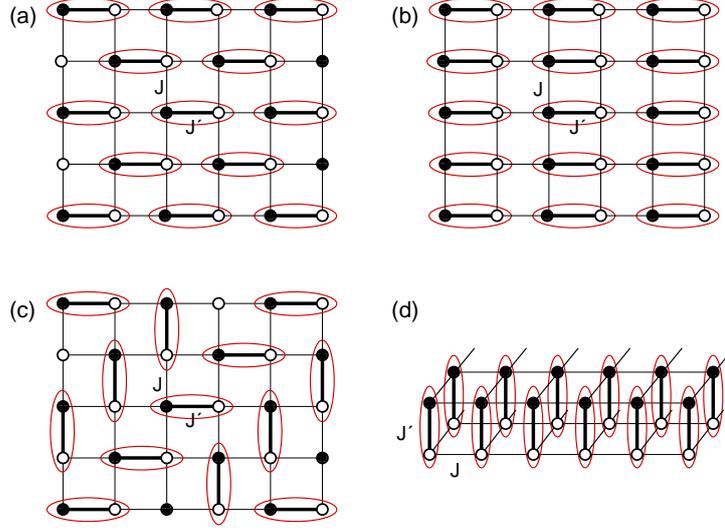


FIGURE 3.14 – Exemples de systèmes de dimères de spins couplés. Sur les schémas, les liens épais ou fins font référence à deux valeurs différentes d'interaction magnétique, respectivement J' ou J . Les cercles pleins et vides dénotent les deux spins quantiques différents, \vec{S}_i^1 et \vec{S}_i^2 présents sur chaque dimère. Les ellipses font référence aux singulets formés sur chaque dimère dans l'état fondamental réalisé pour $J' > J$. (a) Dimères alternés, (b) dimères en colonne, (c) dimères en chevrons, (d) modèle de Heisenberg bi-couche sur réseau carré. Figure d'après [11]. L'analyse décrite dans [11] montre que la criticalité des modèles (a) et (c) appartient à la classe B, alors que (b) et (d) appartiennent à la classe A.

Nous allons voir que les interactions cubiques en triplons, *i.e.*, le terme \mathcal{H}_3 dans le développement 3.5, sont à l'origine de cette deuxième classe.

Tout d'abord, remarquons que le Hamiltonien (3.4) peut s'écrire sous la forme

$$\mathcal{H} = \frac{J'}{2} \sum_i \left(\vec{M}_i^2 - \frac{3}{2} \right) + \frac{1}{4} \sum_{\langle i,j \rangle} \left(J_{LL} \vec{L}_i \cdot \vec{L}_j + J_{LM} \vec{L}_i \cdot \vec{M}_j + J_{ML} \vec{M}_i \cdot \vec{L}_j + J_{MM} \vec{M}_i \cdot \vec{M}_j \right), \quad (3.6)$$

où l'on a introduit les opérateurs d'aimantations uniforme $\vec{M}_i \equiv \vec{S}_i^1 + \vec{S}_i^2$ et alternée $\vec{L}_i \equiv \vec{S}_i^1 - \vec{S}_i^2$, qui peuvent être considérés comme une représentation de six opérateurs indépendants parmi les quinze générateurs de SU(4). Cependant, le modèle diffère de celui introduit par exemple dans [168], car il ne possède pas la symétrie SU(4). Les énergies d'échange se déduisent du modèle de dimères de spins SU(2) initial par les relations

$$\begin{aligned} J_{LL} &\equiv J_{11} - J_{12} - J_{21} + J_{22}, & J_{LM} &\equiv J_{11} + J_{12} - J_{21} - J_{22}, \\ J_{ML} &\equiv J_{11} - J_{12} + J_{21} - J_{22}, & J_{MM} &\equiv J_{11} + J_{12} + J_{21} + J_{22}. \end{aligned} \quad (3.7)$$

Il sera utile pour la suite d'introduire trois autres opérateurs générateurs de SU(4), complémentaires et indépendants des six précédents : $\vec{C}_i \equiv -2\vec{S}_i^1 \times \vec{S}_i^2$, où \times désigne le produit vectoriel. Les opérateurs \vec{L} et \vec{C} sont tous deux anti-symétriques par rapport à une inversion des indices de spin 1 et 2 de chaque dimère, alors que les opérateurs \vec{M} sont symétriques.

Lorsque l'on introduit la représentation bosonique en opérateurs de triplons, décrite dans la section 3.3.1, on trouve que les opérateurs \vec{L} sont linéaires en triplons, avec des corrections cubiques, alors que les opérateurs \vec{M} sont quadratiques avec des corrections quartiques. La parité de ces développements en triplons est évidemment en rapport avec la symétrie et l'anti-symétrie des opérateurs \vec{M} et \vec{L} . Par conséquent, l'approximation harmonique invoquée dans la section 3.3.1, qui consiste à remplacer les excitations du Hamiltonien (3.5) par celles de \mathcal{H}_2 , peut s'effectuer très simplement à partir de (3.6) : il suffit de ne garder que les termes en J_{LL} , ainsi que les interactions locales, quadratiques elles-aussi si l'on remarque que $\vec{M}_i^2 = 1 - \vec{L}_i^2$. Cette approximation fournit une description relativement correcte de la phase paramagnétique du système.

Cependant, si on se limitait à l'approximation harmonique, on ne pourrait pas décrire les propriétés de la phase ordonnée. Notamment, la criticalité du système dépend des interactions faisant intervenir plus de deux opérateurs de triplons. Les premières corrections pourront être soit cubiques soit quartiques selon le modèle considéré. Il ressort des analyses numérique et de groupe de renormalisation effectuées dans [11] que les deux classes de systèmes, A ou B, sont déterminées par une analyse détaillée de l'interaction cubique \mathcal{H}_3 , et donc des termes en J_{LM} et J_{ML} . Tout d'abord, on trouve que le système est de type A si ces termes cubiques s'annulent ; c'est le cas, par exemple, lorsque le modèle de dimère possède une symétrie telle que $J_{12} = J_{21}$ et $J_{11} = J_{22}$, comme pour le modèle (d) en bi-couche illustré par la figure 3.14. Par ailleurs, le système pourra aussi être de type A avec un terme cubique non nul. Il faut alors comparer la dispersion correspondant aux interactions quadratiques (donnée par les termes en J_{LL} et la structure du réseau de dimères) avec celle correspondant aux interactions cubiques (termes en J_{LM} et J_{ML}). La transition de phase quantique se manifeste par une instabilité du système pour un vecteur d'onde \mathbf{k}_2 déterminé par le minimum du spectre de dispersion harmonique (*i.e.*, quadratique). Pour des raisons d'anti-symétrie, le terme cubique, lorsqu'il est présent, est critique pour le vecteur d'onde $\mathbf{k}_3 = 0$. Alors, en présence d'un terme cubique, le système est de type A si le vecteur d'onde caractérisant la phase ordonnée est différent de 0, ce qui est le cas du modèle (b) en colonne. Le système sera de type B lorsque $\mathbf{k}_2 = 0$, comme c'est le cas des modèles de dimères (a) alternés, et (c) en chevrons, illustrés sur la figure 3.14.

3.3.3 Description de la phase ordonnée

Dans cette section, nous montrons comment, par une approche variationnelle basée sur une famille de transformations unitaires, il est possible de décrire la phase ordonnée d'un modèle de dimères en utilisant le formalisme des opérateurs de lien. Cette approche sera comparée avec les résultats d'une théorie d'ondes de spin plus standard pour la phase ordonnée.

Transformation unitaire pour opérateurs de liens

Les opérateurs de triplons décrits dans les sections précédentes ont été introduits pour décrire les excitations, "gapées", de la phase paramagnétique. Cependant, une méthode permettant de décrire la phase ordonnée en termes de triplons a été introduite dans [160]. L'idée consiste à décrire les excitations de la phase ordonnée en termes d'excitations bosoniques de pseudo-triplons, à partir d'un état fondamental formé par une mer de pseudo-singulets. Dans sa ver-

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

sion initiale, cette méthode variationnelle génère les opérateurs de pseudo-triplons $(\tilde{s}_i^\dagger, \{\tilde{t}_{i\alpha}^\dagger\})$ à partir de transformations unitaires locales de la base des opérateurs de liens $(s_i^\dagger, \{t_{i\alpha}^\dagger\})$. Les pseudo-singulets caractérisant l'état fondamental de la phase ordonnée sont ainsi une combinaison linéaire des véritables singulets et triplets. La transformation unitaire locale $\hat{U} = \prod_i \hat{U}_i$ proposée dans [160] est définie dans l'espace des triplons par les opérateurs locaux $\hat{U}_i = e^{-\lambda^i (t_{ix}^\dagger - t_{ix})}$, où le champ variationnel réel local λ^i est déterminé afin de minimiser l'énergie de la mer de pseudo-singulets supposée décrire l'état fondamental du système. La solution obtenue vaut trivialement $\lambda^i = 0$ dans la phase paramagnétique, et $\lambda^i \neq 0$ dans la phase ordonnée, ce qui donne au champ λ la nature d'un paramètre d'ordre.

Cette transformation unitaire peut aussi s'exprimer en termes d'opérateurs de spins 1/2 du modèle initial [170], ou en utilisant les générateurs de SU(4) introduits dans la section 3.3.2. On applique alors au Hamiltonien (3.6) la transformation unitaire, $\mathcal{H} \mapsto \tilde{\mathcal{H}} \equiv \hat{U}\mathcal{H}\hat{U}^{-1}$, avec

$$\hat{U} \equiv e^{i\sum_i \lambda^i C_i^x}, \quad (3.8)$$

où l'opérateur \vec{C}_i défini précédemment engendre des rotations dans l'espace des spins locaux⁸. Le résultat complet de la transformation de \mathcal{H} fait apparaître des contributions de différents ordres, et peut se mettre sous la forme

$$\tilde{\mathcal{H}} = \tilde{E}_0 + \tilde{\mathcal{H}}_2 + \tilde{\mathcal{H}}_3 + \tilde{\mathcal{H}}_4 + \tilde{\mathcal{H}}_{reste}, \quad (3.9)$$

qui devient rigoureusement identique au développement (3.5) lorsque le système est dans la phase paramagnétique. Pour la composante quadratique en pseudo-triplons, $\tilde{\mathcal{H}}_2$, il est suffisant de ne considérer que les termes suivants à l'issue de la transformation unitaire :

$$\vec{M}_i \cdot \vec{M}_j \mapsto \sin(\lambda^i) \sin(\lambda^j) (C_i^y C_j^y + C_i^z C_j^z), \quad (3.10)$$

$$\begin{aligned} \vec{L}_i \cdot \vec{L}_j &\mapsto \cos(2\lambda^i) \cos(2\lambda^j) L_i^x L_j^x + \cos(\lambda^i) \cos(\lambda^j) (L_i^y L_j^y + L_i^z L_j^z) \\ &+ \text{termes qui renormalisent l'énergie locale} \\ &\text{(utiles pour le théorème de Goldstone)}, \end{aligned} \quad (3.11)$$

$$\begin{aligned} \vec{M}_i \cdot \vec{L}_j &\mapsto \sin(\lambda^i) \cos(\lambda^j) (C_i^y L_j^z - C_i^z L_j^y) \\ &+ \text{termes locaux qui pourraient hybrider localement } y \& z, \\ &\text{mais qui s'annulent pour un modèle de dimères alterné.} \end{aligned} \quad (3.12)$$

La relation (3.12) ci-dessus indique le terme quadratique en pseudo-triplons, généré dans la phase ordonnée par l'interaction cubique, dont nous avons discuté la pertinence pour les propriétés critiques à la transition. Ce terme pourrait générer des corrélations chirales dans la phase ordonnée, caractérisée par une apparition de corrélations du type $\langle C_i^y L_j^z \rangle$. En revenant aux opérateurs de spin du modèle initial, ces corrélations entre sites voisins correspondent à des observables physiques telles que $\langle S_i^{1z} S_i^{2x} - S_i^{1x} S_i^{2z}; S_j^{1z} - S_j^{2z} \rangle$.

La suite du traitement dépend fortement du système choisi, mais ne pose pas de difficulté conceptuelle. Le cas du modèle de dimères alternés (voir figure 3.14) peut ainsi être traité

8. Notons que le choix de la composante C^x , pour cette transformation particulière ne préserve la généralité du problème que pour des systèmes périodiques et suffisamment réguliers.

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

comme exemple. La méthode des opérateurs de liens, appliquée en absence de champ magnétique, donne dans la phase paramagnétique la dispersion de triplon (dégénérée) suivante, $\Omega_{\mathbf{k}} = J' \sqrt{1 - \frac{J}{J'} \gamma_{\mathbf{k}}}$, où le facteur de structure du réseau de dimères $\gamma_{\mathbf{k}} \equiv \cos(k_{\bar{x}}) + \cos(k_{\bar{y}}) + \cos(k_{\bar{x}} - k_{\bar{y}})$ est similaire à celui d'un réseau triangulaire distordu. Le gap se referme pour une valeur critique du couplage, $J_c = J'/3$, pas très éloignée de celle obtenue par des méthodes numériques, $(J'/J)_c = 2.5196$ [165, 169]. Si l'on suppose $J < 0$, l'instabilité correspond à un minimum de $\gamma_{\mathbf{k}}$, obtenu pour deux vecteurs critiques, $\mathbf{Q} = (0, 0)$. Dans la phase ordonnée (*i.e.*, pour $J > J_c$), le paramètre d'ordre prend une valeur uniforme $\lambda^i = \arccos(J_c/J)$. La dispersion des excitations harmoniques de pseudo-triplons peut s'exprimer explicitement de manière analytique dans la phase ordonnée [170], et le résultat n'est pas présenté ici par soucis de clarté. Dans la limite d'un petit vecteur d'onde \mathbf{k} , on obtient les dispersions suivantes pour les modes transverses : $\Omega_{\mathbf{k}}^2 \approx (J + \frac{J'}{3}) \left(\frac{3J}{8} (k_{\bar{x}} + k_{\bar{y}})^2 + \left(\frac{J}{8} + \frac{J'}{3} \right) (k_{\bar{x}} - k_{\bar{y}})^2 \right)$.

Comparaison avec les méthodes d'ondes de spin

Afin de tester la capacité de la méthode des opérateurs de liens à caractériser la phase ordonnée et à en décrire les excitations, comparons le résultat obtenu avec celui prédit par la théorie des ondes de spin. Le point de départ est le modèle de dimères décrit par le Hamiltonien (3.4), sur réseau alterné (voir figure 3.14). Suivant les méthodes standards de la théorie des ondes de spin, on suppose que le système est dans une phase ordonnée antiferromagnétiquement, caractérisée par un ordre de Néel. On introduit la transformation de Holstein-Primakoff, par laquelle les opérateurs de spins quantiques sont exprimés localement en termes d'opérateurs bosoniques, $S_i^{1+} = (1 - a_i^\dagger a_i) a_i \approx a_i$, $S_i^{2+} = b_i^\dagger (1 - b_i^\dagger b_i) \approx b_i^\dagger$, $S_i^{1z} = 1/2 - a_i^\dagger a_i$, et $-S_i^{2z} = 1/2 - b_i^\dagger b_i$. En appliquant cette transformation au Hamiltonien (3.4), et en ne gardant, comme approximation, que les termes quadratiques, on obtient le Hamiltonien effectif d'ondes de spin du système. La dispersion obtenue pour le modèle de dimères alternés vaut $\Omega_{\mathbf{k}}^{ondes\ spin} = \frac{1}{2} \sqrt{(J' + 3J)^2 - |J' + J(e^{-ik_{\bar{x}}} + e^{ik_{\bar{y}}} + e^{-ik_{\bar{x}} + ik_{\bar{y}}})|^2}$. L'état fondamental correspond à $\mathbf{k} = 0$, ce qui coïncide avec le résultat obtenu par la méthode des opérateurs triplons de liens. Cependant, l'expression obtenue pour la dispersion est différente, comme on peut le constater par exemple par un développement dans les limites des faibles longueurs d'ondes.

Une différence cruciale entre ces deux approches, triplons, et ondes de spin, provient du fait que le facteur de structure du réseau sur lesquelles se déplacent les ondes de spins ne dépend absolument pas du rapport J'/J , alors que le facteur de structure du réseau sur lequel se propagent les triplons est renormalisé par le paramètre d'ordre λ , et dépend, indirectement, du couplage J'/J . A cause de cette différence, les pseudo-triplons de la phase ordonnée peuvent devenir instables au couplage critique $J_c = J'/3$, alors que les bosons de la représentation de Holstein Primakoff ne le sont pas. D'une certaine manière, on peut considérer que les ondes de spin ne tiennent compte que des modes d'excitations transverses, alors que le mode longitudinal, pris en compte par les triplons, devient précisément critique à la transition vers la phase paramagnétique. Les triplons s'avèrent donc être plus adaptés que les ondes de spin pour décrire la phase paramagnétique et la transition quantique.

3.3 Criticalité quantique dans des systèmes de dimères de spin

3.3.4 Conclusion et perspectives

De manière générale, la méthode des opérateurs de liens présentée dans cette section permet de bien décrire les excitations de triplet de la phase paramagnétique "gapée" de systèmes de dimères de spins. Cette méthode permet aussi de bien décrire la criticalité de ces systèmes, à condition de tenir compte de manière appropriée des interactions à plus de deux triplons. La transformation unitaire présentée dans cette section peut s'appliquer pour identifier et décrire certaines excitations de basse énergie de modèles de dimères périodiques et suffisamment réguliers. Elle pourrait être adaptée à des familles de systèmes plus larges, telles que des systèmes désordonnés, en remplaçant éventuellement le champ scalaire λ^i par un champ vectoriel $\vec{\lambda}^i$. Décrire par cette méthode des phases de verre de spin (voir chapitre 4) pourrait être un challenge autant réaliste que pertinent expérimentalement.

Chapitre 4

Désordre, alliages, ou fluctuations mésoscopiques

Dans ce chapitre, relativement plus technique que les précédents, nous nous intéressons à des systèmes d'électrons corrélés non périodiques. La théorie du champ *dynamique* moyen (DMFT) [71, 72] est introduite de manière simplifiée dans une section préliminaire, afin de bien pouvoir faire ressortir, par la suite, les spécificités des adaptations que nous avons effectuées. En effet, les deux sections suivantes, consacrées respectivement à un modèle de verre de spin et à des alliages Kondo, présentent deux généralisations de la DMFT, que nous avons développées et utilisées. La dernière section de ce chapitre n'est pas en rapport direct avec la méthode DMFT et présente l'étude d'un modèle de boîte quantique (Kondo) chaotique. Cependant, au delà de l'aspect technique, d'un point de vue plus conceptuel, la DMFT décrit la physique d'un système du point de vue local : une impureté placée dans un bain effectif. En ce sens, la section boîte Kondo chaotique trouve pleinement sa place dans ce chapitre.

4.1 Eléments préliminaires

4.1.1 Méthode DMFT

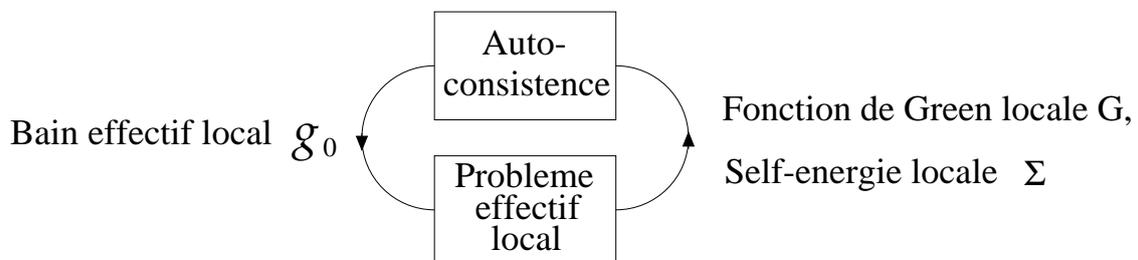


FIGURE 4.1 – Schéma général d'un calcul par la méthode du champ dynamique moyen (DMFT).

4.1 Éléments préliminaires

Introduction à la méthode DMFT

La théorie du champ *dynamique* moyen (DMFT) généralise les principes de la théorie du champ moyen, afin de calculer des quantités physiques dynamiques [71, 72, 171–173]. Ainsi, cette théorie permet par exemple de tenir compte des fluctuations quantiques de charge ou de spin, et donne accès aux fonctions de réponse dynamiques. A l’instar de la théorie *classique* du champ moyen, la DMFT est exacte dans la limite où la dimension est infinie. De plus, cette méthode ne nécessite pas de développement perturbatif, ce qui la rend particulièrement efficace pour étudier des systèmes d’électrons fortement corrélés. Elle permet à la fois de résoudre des modèles d’impuretés quantiques (Kondo, Anderson, Hubbard...) et d’effectuer des calculs *ab initio* [173, 174].

La résolution d’un problème par DMFT peut se résumer en deux paliers de calcul bien distincts (voir figure 4.1) : Le premier consiste à établir une relation auto consistante, permettant de calculer le bain effectif local dynamique $g_0(\omega)$ dans lequel est placé le site considéré. En pratique, ce bain effectif, peut être un scalaire ou une matrice, qui représente les fluctuations de spin ou de charge induites par l’environnement. Il est l’analogie dynamique du champ de Weiss, supposé proportionnel à l’aimantation locale en champ moyen ‘classique’. Le deuxième constitue généralement le palier difficile dans la résolution d’un problème par DMFT. Il consiste à résoudre le problème local d’un site (avec toutes ses interactions locales), plongé dans un bain effectif $g_0(\omega)$ donné. L’équivalent statique de ce palier correspond à exprimer que l’aimantation locale est proportionnelle à la tangente hyperbolique du champ de Weiss appliqué. Le problème est entièrement résolu lorsqu’une solution auto-consistante a été obtenue pour le bain effectif et les fonctions de corrélation locales. Selon la nature du système et le type d’information recherchée, le modèle effectif local peut être traité par la plupart des méthodes et techniques utilisées dans l’étude du problème à N corps. Chaque méthode possède son champ privilégié d’application, et ses propres limitations. La technique DMFT est une méthode très générale et très efficace, qui permet d’établir un nombre fini d’équations pour des fonctions de corrélation. Elle peut s’appliquer a priori à n’importe quel système, et sa principale limitation est liée à la résolution numérique ou analytique de ces équations.

Exemple simplifié d’implémentation de la méthode DMFT

A titre d’exemple illustratif, on considère un modèle de champs complexes Φ_i sur réseau périodique défini par l’action suivante

$$\mathcal{A} \equiv \mathcal{A}_0 + \sum_i \mathcal{A}_{int.}^i, \quad (4.1)$$

où le premier terme $\mathcal{A}_0 \equiv - \sum_{ij} \int_0^\beta d\tau \Phi_i^*(\tau) (\tilde{t}_{ij} + (E_0 + \partial_\tau)\delta_{ij}) \Phi_j(\tau)$ est quadratique en champ, et le second, $\mathcal{A}_{int.}^i \equiv \mathcal{V}[\Phi_i]$, décrit les interactions supposées locales. Ici, τ désigne le temps imaginaire, $\beta = 1/T$ la température inverse, δ_{ij} le symbole de Kronecker, et \tilde{t}_{ij} l’énergie d’échange entre deux sites voisins i et j . Aucune hypothèse n’est faite sur la forme fonctionnelle de l’interaction $\mathcal{V}[\Phi_i]$, si ce n’est que sa dépendance par rapport au champ local est indépendante du site considéré. La fonction de partition du système se déduit de \mathcal{A} en

calculant la trace (*i.e.*, l'intégrale fonctionnelle) par rapport à tous les champs Φ_i ,

$$\mathcal{Z} = \prod_i T_{Ri} [\mathcal{T}e^{\mathcal{A}}] , \quad (4.2)$$

où \mathcal{T} désigne l'ordre chronologique (par rapport au temps imaginaire τ)¹.

Les relations auto-consistantes d'un problème traité par la méthode DMFT peuvent s'obtenir par une succession d'étapes :

(i) *La première étape consiste à considérer un site particulier*, choisi arbitrairement comme origine du réseau. On calcule alors formellement la trace en deux phases successives : d'abord par rapport aux champs agissant sur tous les autres sites $i \neq 0$, puis par rapport au champ Φ_0 . Cela donne

$$\mathcal{Z} = T_{R0} \left[\mathcal{T}e^{\mathcal{V}[\Phi_0] - \int_0^\beta d\tau \Phi_0^*(\tau)(E_0 + \partial_\tau)\Phi_0(\tau)} \prod_{i \neq 0} T_{Ri} \left[\mathcal{T}e^{\mathcal{A}^{cav.} - \sum_j \int_0^\beta d\tau [\tilde{t}_{0j} \Phi_0^*(\tau)\Phi_j(\tau) + \tilde{t}_{j0} \Phi_j^*(\tau)\Phi_0(\tau)]} \right] \right] , \quad (4.3)$$

où l'action du système avec cavité, $\mathcal{A}^{cav.}$, est définie comme l'action \mathcal{A} à laquelle toutes les contributions faisant intervenir le champ local $\Phi_{i=0}$ ont été explicitement retranchées. La fonction de partition du système peut ainsi être exprimée de manière exacte comme la fonction de partition d'un système effectif purement local, $\mathcal{Z} = e^{\beta \mathcal{F}^{cav.}} T_{R0} [\mathcal{T}e^{\mathcal{A}_{loc}[\Phi_0]}]$, où l'énergie libre du système avec cavité est définie comme $\mathcal{F}^{cav.} \equiv \frac{1}{\beta} \ln \left(\prod_{i \neq 0} Tr_i [\mathcal{T}e^{\mathcal{A}^{cav.}}] \right)$. L'action effective locale est donnée par la somme d'un terme explicitement présent dans le modèle initial sur réseau, et d'un terme de bain dynamique, $\mathcal{A}_{dyn.}^{bain}$, résultant des interactions avec les autres champs $\Phi_{i \neq 0}$:

$$\mathcal{A}_{loc}[\Phi_0] \equiv \mathcal{V}[\Phi_0] - \int_0^\beta d\tau \Phi_0^*(\tau)(E_0 + \partial_\tau)\Phi_0(\tau) + \mathcal{A}_{dyn.}^{bain}[\Phi_0] . \quad (4.4)$$

Le terme dynamique peut s'exprimer formellement de manière exacte comme

$$\mathcal{A}_{dyn.}^{bain}[\Phi_0] \equiv \ln \left\langle \mathcal{T}e^{-\sum_j \int_0^\beta d\tau [\tilde{t}_{0j} \Phi_0^*(\tau)\Phi_j(\tau) + \tilde{t}_{j0} \Phi_j^*(\tau)\Phi_0(\tau)]} \right\rangle_{cav.} , \quad (4.5)$$

où la valeur moyenne $\langle \dots \rangle_{cav.}$ est calculée pour le système avec cavité. Notons qu'à ce stade, le problème à résoudre n'est pas nécessairement plus simple que le problème de départ : le terme d'interaction, noté \mathcal{V} , est toujours présent dans le modèle effectif local, explicitement, mais aussi implicitement par l'intermédiaire du terme de bain dynamique.

(ii) *La deuxième étape consiste à approximer le terme de bain dynamique $\mathcal{A}_{dyn.}^{bain}$* . Cette approximation s'effectue de manière contrôlée par un développement en $1/z$, où z désigne le nombre de coordination du réseau (*i.e.*, le nombre de voisins de chaque site). Généralisant le principe du champ moyen "standard", elle s'avère exacte dans la limite $z = \infty$. Pour le modèle considéré ici, ce développement en z -grand nécessite au préalable de faire varier l'échelle des énergies d'échange inter-site comme

$$\tilde{t}_{ij} \equiv \frac{t_{ij}}{\sqrt{z}} , \quad (4.6)$$

1. L'ordre \mathcal{T} est superflu ici pour des champs complexes, mais il indique comment le formalisme peut se généraliser sans difficulté à un modèle de champs grassmanniens.

4.1 Eléments préliminaires

où t_{ij} est indépendant de z , de sorte que l'énergie libre, grandeur extensive, reste proportionnelle à z dans la limite z -grand, comme nous le verrons plus loin. Par la suite, la valeur moyenne $\langle \dots \rangle_{cav.}$, dans l'expression du terme de bain dynamique, est calculée par un développement en cumulants, qui donne l'expression $\mathcal{A}_{dyn.}^{bain}[\Phi_0] = \sum_{p=1}^{+\infty} \frac{C_p[\Phi_0]}{p!}$, avec

$$C_1[\Phi_0] = - \sum_j \int_0^\beta d\tau \left[\frac{t_{0j}}{\sqrt{z}} \Phi_0^*(\tau) \langle \Phi_j(\tau) \rangle_{cav.} + \frac{t_{j0}}{\sqrt{z}} \langle \Phi_j^*(\tau) \rangle_{cav.} \Phi_0(\tau) \right].$$

Ce premier cumulant constitue le terme principal d'une approximation de champ moyen statique "standard", $\mathcal{A}_{dyn.}^{bain} \approx C_1$ permettant de décrire une phase ordonnée pour laquelle la valeur moyenne du champ local est non nulle.

Par la suite nous supposons que le système est dans une phase désordonnée² telle que $\langle \Phi_i(\tau) \rangle = 0$, ce qui implique $C_1[\Phi_0] = 0$, puis $C_{2p+1}[\Phi_0] = 0$. Cette situation, *i.e.*, l'annulation des cumulants d'ordre impairs, est réalisée naturellement lorsque la DMFT est appliquée à un modèle de champ grassmannien décrivant des opérateurs de création ou d'annihilation en absence de source. Par contre, pour un modèle dont le champ Φ pourrait s'ordonner localement (par exemple, un modèle de spin), cette hypothèse est valable uniquement dans la phase désordonnée (paramagnétique). Notons cependant que lorsque cela est nécessaire, cette contribution de champ moyen statique peut être prise en compte par les méthodes standard.

Par ailleurs, on peut montrer que les cumulants non nuls, *i.e.*, d'ordre paire $2p$, se comportent comme $C_{2p} \sim 1/z^{p-1}$ lorsque $z \rightarrow \infty$. En ce qui permet d'approximer le terme de bain dynamique par

$$\mathcal{A}_{dyn.}^{bain}[\Phi_0] \approx \frac{1}{2} C_2[\Phi_0] = \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Phi_0^*(\tau) g_0(\tau - \tau') \Phi_0(\tau'), \quad (4.7)$$

les corrections étant d'ordre $1/z$, avec

$$g_0(\tau - \tau') \equiv \sum_{j_1 j_2} \frac{t_{0j_1} \tilde{t}_{j_2 0}}{z} G_{j_1 j_2}^{cav.}(\tau - \tau'), \quad (4.8)$$

où l'on a introduit la fonction de corrélation dynamique du système avec cavité, $G_{ij}(\tau - \tau') \equiv \langle \Phi_i(\tau) \Phi_j^*(\tau') \rangle_{cav.}$. Notons que si le terme de champ statique C_1 était pris en compte, celui-ci serait d'ordre \sqrt{z} supérieur aux fluctuations, C_2 . Cela résulte de l'Ansatz d'échelle Eq. 4.6. On s'attend donc à ce que le champ moyen statique, lorsqu'il est autorisé, puisse éventuellement générer une transition de phase de premier ordre, pathologique dans la limite $z \rightarrow \infty$. L'astuce, si cela s'avère nécessaire pour le type de champ et de modèle considéré, est de supposer que z est grand, mais pas trop, afin de pouvoir négliger ce type de transition. (iii) La troisième étape établit une expression auto-consistante du bain dynamique local g_0 , en fonction des corrélations dynamiques du champ local Φ_0 . Pour cela, on introduit la fonction de corrélation dynamique $G_{ij}(\tau)$ calculée avec l'action \mathcal{A} du modèle périodique initial. Celle-ci s'obtient par un développement diagrammatique de la fonction de corrélations, dans l'espace direct (du réseau périodique),

$$G_{ij} = \delta_{ij} \Pi_{ii} - \frac{t_{ij}}{\sqrt{z}} \Pi_{ii} \Pi_{jj} - \sum_{chemins} \frac{(-1)^p t_{i_1 i_1} t_{i_1 i_2} \dots t_{i_p j}}{z^{(p+1)/2}} \Pi_{ii} \Pi_{i_1 i_1} \dots \Pi_{i_p i_p} \Pi_{jj}, \quad (4.9)$$

2. par exemple paramagnétique

où, dans le but de ne garder que la contribution dominante dans le développement z -grand, la somme est prise sur les chemins ne passant qu'une seule fois par un même site, les corrélateurs locaux Π_{ii} tenant compte de l'habillage des chemins formant des boucles locales ainsi que de l'interaction locale. Nous verrons par la suite comment ces corrélateurs locaux sont reliés à une self-énergie locale. La fonction de corrélation avec cavité s'obtient à partir du développement (4.9) en utilisant l'identité algébrique générale $\sum_{i \rightarrow 0} \sum_{0 \rightarrow j} = \left(\sum_{i \rightarrow j} - \sum_{i \rightarrow j}^{cav.} \right) \sum_{0 \rightarrow 0}$, où $\sum_{i \rightarrow j}$ représente une somme sur tous les chemins directs entre les sites i et j , et $\sum_{i \rightarrow j}^{cav.}$ exclut tous les chemins directs passant par le site 0 (de la cavité). On obtient

$$G_{ij}^{cav.} = G_{ij} - G_{i0}[G_{00}]^{-1}G_{0j}. \quad (4.10)$$

(iv) Par la suite, la méthode DMFT exploite l'invariance du système par translation, qui permet de chercher, pour le développement diagrammatique Eq. (4.9), un corrélateur local indépendant du site, $\Pi_{ii} = \Pi_0$. Le développement Eq. (4.9) peut alors s'exprimer sous la forme plus compacte d'une équation de type Dyson³, $G_{ij}(i\omega) = \Pi_0(i\omega) \left[\delta_{ij} - \sum_l \frac{t_{lj}}{\sqrt{z}} G_{lj}(i\omega) \right]$, où la dépendance explicite en fréquences de Matsubara, $i\omega$, a été restaurée. On introduit ensuite les transformées de Fourier de l'énergie d'échange inter-site, $E(\mathbf{q}) \equiv \frac{1}{N} \sum_{ij} \frac{t_{ij}}{\sqrt{z}} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i)}$, et de la fonction de corrélation, $G(\mathbf{q}, i\omega) \equiv \frac{1}{N} \sum_{ij} G_{ij}(i\omega) e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i)}$, où N est le nombre de sites du réseau. Le développement Eq. (4.9) donne

$$G(\mathbf{q}, i\omega) = \frac{\Pi_0(i\omega)}{1 + E(\mathbf{q})\Pi_0(i\omega)}. \quad (4.11)$$

Cette expression permet d'interpréter Π_0 comme l'inverse d'un propagateur local habillé d'une self-énergie locale. Notons d'ailleurs que l'hypothèse d'une self-énergie locale pourrait être une hypothèse de départ de la DMFT, alternative mais équivalente au schéma de développement z -grand présenté ici.

(v) Les relations DMFT auto-consistantes à résoudre sont les suivantes :

Avec un peu de manipulations algébriques utilisant les relations (4.8), (4.10), et (4.11), on obtient l'expression auto-consistante du bain dynamique effectif

$$g_0(i\omega) = \Pi_0^{-1}(i\omega) - \frac{1}{G_{loc}(i\omega)}, \quad (4.12)$$

où le corrélateur local Π_0 peut s'exprimer en fonction de la corrélation locale $G_{loc} \equiv G_{00}$ et de la distribution des couplages $E(\mathbf{q})$ en inversant la relation

$$G_{loc}(i\omega) = \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{\Pi_0^{-1}(i\omega) + E(\mathbf{q})}. \quad (4.13)$$

Alternativement, cette relation peut s'exprimer en invoquant la densité spectrale sans interaction, $\rho_0(\epsilon) = \sum_{\mathbf{q}} \delta(\epsilon - E(\mathbf{q}))$. La résolution complète du problème par la DMFT nécessite

3. ou Bethe-Salpeter, selon la nature du champ considéré

4.1 Éléments préliminaires

par ailleurs de déterminer la corrélation locale G_{loc} à partir de l'action effective locale obtenue en combinant les expressions (4.4) et (4.7), c'est à dire

$$\mathcal{A}_{loc}[\Phi_0] \equiv \mathcal{V}[\Phi_0] - \int_0^\beta d\tau \Phi_0^*(\tau)(E_0 + \partial_\tau)\Phi_0(\tau) + \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \Phi_0^*(\tau)g_0(\tau - \tau')\Phi_0(\tau'). \quad (4.14)$$

Les expressions (4.12), (4.13), et (4.14) constituent les relations d'auto-consistance DMFT du système, à résoudre selon le schémas de calcul de la figure 4.1. Les interactions locales sont représentées explicitement sur le site considéré par le terme $\mathcal{V}[\Phi_0]$ et implicitement pour les autres sites, par le bain g_0 auto-consistant.

4.1.2 Désordre, alliages, et fluctuations mésoscopiques : le point de vue des impuretés

Le point commun des trois familles de systèmes étudiés dans ce chapitre, un modèle de verre de spin quantique, un alliage Kondo, et une boîte quantique chaotique, est de décrire des impuretés quantiques, placées dans un environnement non périodique. Pour simplifier le problème, nous considérons uniquement des impuretés représentées par un spin ou pseudo-spin $1/2$. Nous pouvons ainsi nous concentrer sur les spécificités du caractère non périodique de ces systèmes, laissant les modèles d'impuretés plus complexes pour des études ultérieures. Du point de vue de l'impureté, l'essentiel de l'information sur le reste du système peut se résumer en un bain dynamique local effectif, généralisation du bain $g_0(\omega)$ décrit précédemment. Cependant, le système ne possédant plus la propriété d'invariance par translation habituellement nécessaire à l'application de la méthode de champ moyen "standard", il faut tenir compte de manière appropriée des fluctuations spécifiques au type de désordre considéré, et éventuellement liées aux effets mésoscopiques.

Pour prendre en compte les effets du désordre, on introduit la méthode des répliques, qui permet de moyennner l'énergie libre sur les configurations du système et retrouver une invariance effective par translation. Le champ de Weiss devient dynamique car il tient compte des fluctuations statistiques de l'environnement de chaque impureté. Le bain dynamique $g_0(\omega)$ et la self-énergie locale obtenus par un traitement DMFT combiné à la méthode des répliques fait apparaître une composante explicitement liée au désordre. Il est aussi possible d'étudier simultanément transition verre de spin et ordre magnétique périodique.

Dans un alliage, la nature de l'impureté devient duale. Sur un site donné du réseau cristallin, il peut y avoir, ou ne pas y avoir, d'impureté magnétique. L'approche DMFT peut alors se généraliser en introduisant un bain effectif matriciel et non plus scalaire.

En présence de fluctuations mésoscopiques, le bain $g_0(\omega)$, au lieu d'avoir un spectre continu, est caractérisé par un spectre discret. Les fluctuations des niveaux d'énergie, ainsi que de l'amplitude locale de ce bain, jouent un rôle crucial.

Ces trois aspects différents sont traités dans les trois sections qui suivent.

4.2 DMFT et désordre : verre, ondes, et liquides de spin

En combinant la DMFT et la méthode des répliques, nous avons étudié une famille de modèles de Heisenberg quantique désordonnés, qui présentent simultanément une interaction périodique antiferromagnétique et une interaction désordonnée et aléatoire [12]. Il s'agit d'un problème générique, et la méthode que nous décrivons dans cette section sur ce "simple" modèle de Heisenberg peut être adaptée et généralisée pour étudier plus largement des familles de systèmes à fortes corrélations, dans lesquels coexistent des modes d'excitations presque périodiques, et un désordre structurel important.

Pour un modèle de Heisenberg, défini par un Hamiltonien $H = \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j$, l'approximation de champ moyen *statique* "standard" consiste à introduire les champs de Weiss effectifs locaux $\mathbf{h}_i \equiv \sum_j \tilde{J}_{ij} \mathbf{S}_j$, déterminés de manière auto-consistante à partir du Hamiltonien effectif $H \approx \sum_i \langle \mathbf{h}_i \rangle \mathbf{S}_i$. Cette approximation *statique* permet de caractériser un ordre magnétique à longue portée, ainsi que les excitations d'onde de spin qui le caractérisent. Par contre, elle ne permet pas de décrire les effets liés au désordre, comme la possibilité de former un ordre de verre de spin. L'approximation de champ moyen statique ne décrit pas non plus les corrélations d'une phase paramagnétique. Dans cette section, nous nous intéressons précisément aux phases paramagnétiques des modèles de Heisenberg désordonnés, à leur dynamique, et à leurs éventuelles instabilités antiferromagnétique ou verre de spin. Pour de telles phases le champ moyen statique est nul, $\langle \mathbf{h}_i \rangle = 0$, et les propriétés physiques sont décrites par les fluctuations quantiques du champ de Weiss, $\langle \mathbf{h}_i(\tau) \mathbf{h}_j(\tau') \rangle$, où τ et τ' désignent le temps imaginaire.

Il existe plusieurs contextes théoriques différents permettant d'étudier les fluctuations du champ de Weiss à partir de modèles de Heisenberg quantiques particuliers : d'une part, dans le contexte des systèmes désordonnés, la méthode des répliques [175] a été adaptée par Sherrington et Kirkpatrick en 1975 pour le cas Ising [176] puis par Bray et Moore en 1980 pour le cas Heisenberg quantique [177]. Par ce formalisme, l'instabilité de verre de spin émerge de fluctuations du champ de Weiss moyennées sur le désordre. D'autre part, la méthode DMFT, développée initialement pour un système d'électrons, a été étendue à un modèle de Heisenberg quantique sur réseau périodique [5, 178, 179], en introduisant un champ dynamique moyen qui reflète les fluctuations dynamiques locales du champ de Weiss. Du point de vue local, chaque spin du système ne sait rien de l'origine, désordonnée ou pas, des fluctuations du champ de Weiss qu'il ressent. Les deux approches, méthode des répliques et DMFT, sont ainsi totalement compatibles. Pour cette raison, plusieurs théories combinant les idées de la DMFT et celles de la méthode des répliques avaient été développées pour étudier les corrélations locales de systèmes désordonnés [4, 85, 180–182]. Nous allons voir dans cette section comment, par une combinaison DMFT-répliques appropriée, il est aussi possible d'accéder aux corrélations à longue portée dans un système désordonné.

4.2.1 Modèle étudié et méthode développée

Nous étudions un modèle de Heisenberg quantique présentant une interaction proches voisins désordonnée aléatoire mais antiferromagnétique en moyenne, défini par le Hamiltonien

4.2 DMFT et désordre : verre, ondes, et liquides de spin

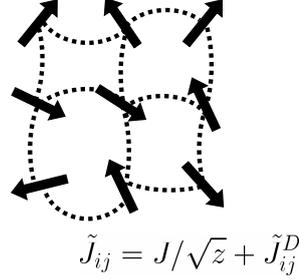


FIGURE 4.2 – Schéma décrivant le modèle de Heisenberg étudié. L'interaction entre spins proches voisins est la somme d'un terme antiferromagnétique périodique, et d'un terme aléatoire.

suivant

$$H = \sum_{\langle i,j \rangle} \tilde{J}_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j . \quad (4.15)$$

\mathbf{S}_i désigne un opérateur de spin $1/2$ agissant sur le site i d'un réseau de coordination z . Les couplages proches voisins $\tilde{J}_{ij} = \tilde{J}_{ij}^{AF} + \tilde{J}_{ij}^D \equiv J_{ij}/\sqrt{z}$ sont la somme d'un terme antiferromagnétique périodique $\tilde{J}_{ij}^{AF} = \tilde{J}^{AF}(\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i) \equiv J/\sqrt{z}$ de transformée de Fourier $J(\mathbf{q})$, et d'un terme désordonné $\tilde{J}_{ij}^D = J_{ij}^D/\sqrt{z}$. La partie périodique du couplage est caractérisée par une densité spectrale d'ondes de spin $\rho(\epsilon) \equiv \sum_{\mathbf{q}} \delta(\epsilon - J(\mathbf{q}))$. Les parties désordonnées J_{ij}^D sont des couplages aléatoires caractérisés par une distribution gaussienne $P(J_{ij}^D)$, de valeur moyenne nulle, $\langle J_{ij}^D \rangle_{des.} = 0$, et de variance caractérisée par l'échelle d'énergie J_D telle que $\langle J_{ij}^D J_{kl}^D \rangle_{des.} = \delta_{il} \delta_{jk} J_D^2$. Dans cette section, la moyenne sur le désordre est dénotée $\langle \dots \rangle_{des.}$, et δ_{ij} désigne le symbole de Kronecker.

La méthode que nous avons développée et utilisée [12] s'appuie sur un développement DMFT z -grand, effectué après avoir au préalable moyenné formellement le système par la méthode des répliques.

Désordre et méthode des répliques

L'énergie libre étant une grandeur extensive, elle peut être moyennée par rapport à la probabilité $P(J_{ij}^D)$. Cette procédure, désormais standard, repose sur le fait que dans la limite thermodynamique, le système est supposé suffisamment grand pour que toutes les configurations de couplages J_{ij}^D soient réalisées (avec le poids statistique correspondant). On utilise alors la méthode des répliques, qui repose sur le fait que l'énergie libre \mathcal{F} peut se déduire de la fonction de partition \mathcal{Z} en utilisant la relation

$$\beta \mathcal{F} = \langle \log \mathcal{Z} \rangle_{des.} = \lim_{n \rightarrow 0^+} \frac{1}{n} \log \langle \mathcal{Z}^n \rangle_{des.} . \quad (4.16)$$

Afin de calculer $\langle \mathcal{Z}^n \rangle_{des.}$ on introduit n répliques du système, représentées chacune par un indice α

$$\langle \mathcal{Z}^n \rangle_{des.} = \prod_{i < j} \int_{-\infty}^{+\infty} dJ_{ij}^D P(J_{ij}^D) Tr \left[\exp -\beta \sum_{\alpha=1}^n H_{\alpha} \right] , \quad (4.17)$$

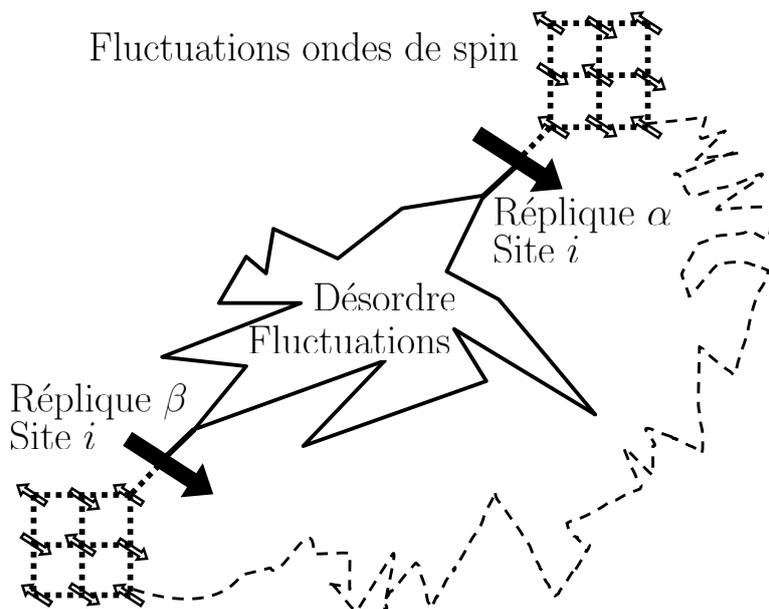


FIGURE 4.3 – Schéma du modèle effectif obtenu en combinant la méthode des répliques et les développements DMFT. Chaque site i du réseau désordonné initial comporte plusieurs répliques couplées entre elles localement par un champ dynamique généré par les fluctuations du terme de désordre. Sur ce schéma, α et β représentent des indices de répliques éventuellement identiques. Par ailleurs, les fluctuations de type ondes de spin antiferromagnétiques couplent différents sites à l'intérieur d'une même réplique. Ces deux modes de fluctuation du champ de Weiss (désordre et onde de spin) sont couplés. Ainsi, par exemple, les ondes de spins à l'intérieur d'une réplique α donnée peuvent être fortement affectées par le terme de désordre.

où H_α est le Hamiltonien de Heisenberg désordonné défini par Eq. (4.15), agissant sur la réplique α . Dans l'expression (4.17), la trace Tr est appliquée à tous les opérateurs S_i^α de l'espace de Hilbert répliqué. Ici, le fait d'intégrer par rapport à tous les termes J_{ij}^D permet d'interpréter $\langle Z^n \rangle_{des.}$ comme la fonction de partition effective du système répliqué. Le modèle effectif moyenné est invariant par translation et possède la symétrie du réseau de spins choisi initialement. Cette propriété permet d'adapter les méthodes DMFT de manière naturelle. D'un point de vue local, le spin d'un site et d'une réplique donnés ressent les deux

4.2 DMFT et désordre : verre, ondes, et liquides de spin

types de corrélations et fluctuations magnétiques suivantes (voir figure 4.3) : (i) Les spins d'une même réplique sont couplés par le terme d'échange antiferromagnétique J_{ij}^{AF} , qui peut éventuellement faire apparaître une instabilité vers un ordre antiferromagnétique. (ii) Des corrélations entre les différentes répliques d'un même spin apparaissent de manière dynamique, pouvant donner lieu à une brisure de la symétrie de répliques, caractéristique d'un ordre de verre de spin.

Développement DMFT pour le système désordonné

Nous avons généralisé les développements z -grand de la méthode DMFT afin de les adapter à l'étude du modèle de Heisenberg quantique désordonné défini par le Hamiltonien (4.15) et illustré par la figure 4.3. Les principales étapes standard de la méthode DMFT sont décrites dans la section 4.1.1 pour un système périodique. Précisons toutefois que le champ Φ_i discuté dans la section 4.1.1 devient ici un opérateur de spin \mathbf{S}_i^α agissant dans un espace répliqué ; la fonction de corrélation G_{ij} se généralise en susceptibilité magnétique $\chi_{i\alpha j\alpha'}$. Nous allons nous concentrer ici sur les adaptations spécifiques que nous avons apportées à la méthode afin de tenir compte des effets de désordre. Tout d'abord, remarquons que les premières étapes de la méthode DMFT ne nécessitent absolument pas que le réseau soit périodique. Ainsi, le choix d'un site particulier qui devient arbitrairement le site 0 et l'intégration formelle des degrés de liberté des autres sites s'effectuent selon la procédure DMFT standard. Le développement en cumulants⁴ conduit, pour le modèle de Heisenberg désordonné répliqué et moyenné, de fonction de partition (4.17), à l'action locale effective suivante pour le site $i = 0$,

$$\mathcal{A}_{loc} = -\frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \sum_{\alpha\alpha'} \mathbf{S}_0^\alpha(\tau) \mathbf{S}_0^{\alpha'}(\tau') \mathcal{K}^{\alpha\alpha'}(\tau - \tau'), \quad (4.18)$$

où le bain dynamique est donné par la susceptibilité dynamique de la cavité, moyennée sur le désordre,

$$\mathcal{K}^{\alpha\alpha'}(\tau - \tau') = \frac{1}{3z} \sum_{ij} \left\langle J_{0i} J_{j0} \langle \mathbf{S}_i^\alpha(\tau) \mathbf{S}_j^{\alpha'}(\tau') \rangle^{cav.} \right\rangle_{des}. \quad (4.19)$$

De même, le développement z -grand⁵ se généralise à la susceptibilité magnétique du modèle de Heisenberg désordonné que nous étudions ici, ce qui donne l'équation de Bethe-Salpether suivante

$$\chi_{ij} = \delta_{ij} \Pi_{ii} - \frac{J_{ij}}{\sqrt{z}} \Pi_{ii} \Pi_{jj} - \sum_{chemins} \frac{(-1)^p J_{ii_1} J_{i_1 i_2} \cdots J_{i_p j}}{z^{(p+1)/2}} \Pi_{ii} \Pi_{i_1 i_1} \cdots \Pi_{i_p i_p} \Pi_{jj}. \quad (4.20)$$

Cependant, le corrélateur local Π_{ii} dépend désormais de chaque site i . De même, la susceptibilité magnétique χ_{ij} n'est plus invariante par translation. Cette invariance par translation peut être rétablie en moyennant sur les configurations du désordre. Le fait de moyenner χ_{ij} correspond à une réalité expérimentale, lorsque la dépendance spatiale de la susceptibilité est

4. similaire à celui détaillé dans la section 4.1.1

5. donné par la relation (4.9)

mesurée par une méthode spectroscopique diffuse (par exemple, par diffusion inélastique de neutrons) ; la quantité mesurée est alors issue d'une figure de diffraction, et s'obtient par transformation de Fourier, $\chi(\mathbf{q}) \equiv \frac{1}{N} \sum_{ij} \chi_{ij} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i)}$. Les fluctuations aléatoires de χ_{ij} sont ainsi naturellement supprimées et seule $\langle \chi_{ij} \rangle_{des.}$ contribue à $\chi(\mathbf{q})$. Par ailleurs, nous allons voir que la quantité intervenant dans le bain dynamique local du modèle effectif est elle aussi la susceptibilité moyenne.

Dans la suite, nous allons utiliser ces développements z -grand et en déduire des relations d'auto-consistance pour les quantités moyennées. Pour cela, la relation (4.20) est moyennée par rapport à toutes les distributions de J_{ij}^D possibles. Tout d'abord, on remarque que chaque lien $l - m$ (et le couplage J_{lm} associé) apparaît soit explicitement dans le produit des J constituant un chemin (de i à j), soit implicitement à l'intérieur d'une boucle formant un (et un seul) corrélateur local Π . Par ailleurs, on rappelle que le développement (4.20) ne fait intervenir que les chemins directs et ne se recoupant pas entre i et j , les corrections étant d'ordre inférieur en $1/z$. La moyenne sur le désordre peut alors se factoriser, et donne le développement

$$\bar{\chi}_{ij} \equiv \langle \chi_{ij} \rangle_{des.} = \delta_{ij} \bar{\Pi}_0 - \frac{J_{ij}^{AF}}{\sqrt{z}} \bar{\Pi}_0 \bar{\Pi}_0 - \sum_{chemins} \frac{(-1)^p J_{i_1 i_2}^{AF} J_{i_2 i_3}^{AF} \cdots J_{i_p j}^{AF}}{z^{(p+1)/2}} \bar{\Pi}_0 \bar{\Pi}_0 \cdots \bar{\Pi}_0 \bar{\Pi}_0, \quad (4.21)$$

où le corrélateur local moyen $\bar{\Pi}_0 \equiv \langle \Pi_{ii} \rangle_{des.}$ est indépendant du site, et le couplage magnétique moyen se réduit simplement à sa partie antiferromagnétique, $\langle J_{ij} \rangle_{des.} = J_{ij}^{AF}$. La dépendance de ce développement par rapport au terme de désordre demeure, mais de manière implicite, via $\bar{\Pi}_0$. La structure du développement moyenné (4.21) est formellement similaire à celle obtenue par la DMFT pour un système périodique, ce qui permet de généraliser plusieurs des expressions décrites dans la section 4.1.1, après avoir remplacé avec précaution certaines quantités par leurs valeurs moyennées sur le désordre. Ainsi⁶, on peut ensuite exprimer le bain dynamique local (4.19) comme

$$\begin{aligned} \mathcal{K} &= \frac{1}{z} \sum_{ij} J_{0i}^{AF} J_{j0}^{AF} (\bar{\chi}_{ij} - \bar{\chi}_{i0} \bar{\chi}_{00}^{-1} \bar{\chi}_{0j}) + \frac{1}{z} \sum_i J_D^2 \bar{\chi}_{ii} \\ &\equiv \mathcal{K}_{AF} + \mathcal{K}_D. \end{aligned} \quad (4.22)$$

Le développement (4.21) permet aussi d'obtenir une expression⁷ pour la dépendance en moment et en énergie de la susceptibilité magnétique,

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{\bar{\Pi}_0^{-1}(\omega) + J(\mathbf{q})}, \quad (4.23)$$

qui permet d'interpréter l'inverse du corrélateur moyen, $\bar{\Pi}_0^{-1}(\omega)$, comme une self-énergie magnétique locale corrigeant le spectre de type ondes de spin donné par le seul terme périodique de couplage antiferromagnétique, $J(\mathbf{q})$.

6. en utilisant pour la susceptibilité avec cavité une relation analogue à Eq. (4.10)

7. similaire à Eq. (4.11)

4.2 DMFT et désordre : verre, ondes, et liquides de spin

Relations DMFT auto-consistantes obtenues pour le système moyenné

On s'intéresse ici uniquement aux solutions ne présentant pas d'ordre magnétique, et on suppose donc la symétrie de réplique, dont l'indice, superflu, est supprimé. Après avoir effectué le développement z -grand décrit précédemment, les propriétés moyennes du modèle de Heisenberg quantique désordonné, défini par le Hamiltonien (4.15), peuvent s'obtenir en résolvant le système de relations auto-consistantes DMFT suivantes :

D'une part, la susceptibilité magnétique dynamique locale χ_{loc} est déterminée par l'action effective locale (d'après les Eqs. (4.18-4.22))

$$\mathcal{A}_{loc} = -\frac{1}{2} \int_0^\beta d\tau \int_0^\beta d\tau' \mathbf{S}_0(\tau) [\mathcal{K}_{AF}(\tau - \tau') + \mathcal{K}_D(\tau - \tau')] \mathbf{S}_0(\tau'). \quad (4.24)$$

D'autre part, le bain effectif local constitué de deux composantes provenant explicitement des parties périodique et désordonnée du couplage magnétique, est déterminé par les relations auto-consistantes suivantes (d'après les Eqs. (4.22-4.23))

$$\mathcal{K}_{AF}(\omega) = \bar{\Pi}_0^{-1}(\omega) - \frac{1}{\chi_{loc}(\omega)}, \quad (4.25)$$

$$\mathcal{K}_D(\omega) = J_D^2 \chi_{loc}(\omega), \quad (4.26)$$

où le terme de self-énergie magnétique locale, $\bar{\Pi}_0^{-1}$ peut se déduire de χ_{loc} et du couplage $J(\mathbf{q})$ en utilisant la relation (4.23),

$$\chi_{loc}(\omega) = \sum_{\mathbf{q}} \chi(\mathbf{q}, \omega) = \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{\bar{\Pi}_0^{-1}(\omega) + J(\mathbf{q})}. \quad (4.27)$$

Critères d'instabilités magnétiques de cette solution paramagnétique

La possibilité d'une transition du second ordre vers un ordre AF à longue portée est décrite naturellement par ce formalisme DMFT, et se caractérise par une divergence de la susceptibilité magnétique statique pour un vecteur d'onde \mathbf{Q}_{AF} particulier caractéristique, $\chi(\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{Q}_{AF}, \omega = 0; T_N) = \frac{1}{\bar{\Pi}_0^{-1}(\omega=0; T_N) + J(\mathbf{Q}_{AF})} \rightarrow \infty$. Cette condition définit la température de Néel T_N et se réalise lorsque la composante statique de la self-énergie coïncide avec la borne inférieure du spectre d'ondes de spins. Ce critère d'instabilité AF s'écrit simplement

$$\bar{\Pi}_0^{-1}(\omega = 0; T_N) = -J(\mathbf{Q}_{AF}) \equiv \min_{\mathbf{q}} (-J(\mathbf{q})). \quad (4.28)$$

D'un autre coté, on peut montrer que la condition d'instabilité de la phase paramagnétique par rapport à la formation d'une phase de verre de spin, à la température T_{SG} , est donnée par

$$1 = J_D^2 \sum_{\mathbf{q}} \chi^2(\mathbf{q}, \omega = 0; T_{SG}) = J_D^2 \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{\left[\bar{\Pi}_0^{-1}(\omega = 0; T_{SG}) + J(\mathbf{q}) \right]^2}. \quad (4.29)$$

L'analyse de ces critères d'instabilité est présentée dans les sections suivantes.

Commentaires

Il faut bien garder à l'esprit que le formalisme DMFT, de manière très générale, s'appuie sur l'hypothèse d'une self-énergie locale. Cette approximation suppose que les corrélations sont à suffisamment courte portée, ce qui est favorisé par exemple à haute température. On peut donc considérer que la DMFT décrit bien le régime intermédiaire en température et énergie, dans lequel ces corrélations commencent à s'établir [183]. Ainsi, pour le modèle de Heisenberg désordonné que nous étudions ici, les corrélations spin-spin décrivent bien le régime corrélé de type liquide de spin qui avoisine une éventuelle transition magnétique, qu'elle soit AF ou verre de spin. Il faudra par contre être plus réservé sur l'extrapolation jusqu'à $T = 0$ de la solution liquide de spin obtenue. Une telle extrapolation peut cependant être justifiée lorsque le système est caractérisé par une forte dégénérescence orbitale ou par une forte frustration géométrique (voir le chapitre 3).

On peut ainsi remarquer que le développement z -grand invoqué précédemment peut, dans certains cas particuliers, faire apparaître des anomalies :

Tout d'abord, le développement en cumulants utilisé nécessite un *rescaling* de l'énergie d'échange entre proches voisins, $\tilde{J}_{ij} = J_{ij}/\sqrt{z}$, de sorte que l'énergie libre du système se comporte comme une grandeur intensive, *i.e.* proportionnelle à z lorsque $z \rightarrow \infty$. Ceci est possible dans une phase paramagnétique, pour laquelle le premier cumulant est nul par symétrie. Cependant, si la géométrie du réseau est suffisamment peu frustrée, ce choix de *rescaling* peut induire une transition AF du premier ordre non prise en compte par le critère (4.28). C'est le cas, par exemple, d'un réseau bipartite, pour lequel l'énergie d'une solution AF, donnée par le premier cumulant, se comporte comme $Jz\sqrt{z}$. En général, cette instabilité issue du développement z -grand peut être écartée, lorsque le système est caractérisé par une coordination z suffisamment faible, ou lorsque la géométrie de celui-ci est suffisamment frustrée.

Une autre anomalie, de violation de causalité pour les corrélations non locales, peut dans certains cas apparaître à une température T^* , en dessous de laquelle la partie imaginaire de la self-énergie locale devient négative [5, 184], $\text{Im}[\bar{\Pi}_0^{-1}(\omega)] < 0$ (voir section résultats). Précisons cependant que la susceptibilité locale reste toujours causale, seule la susceptibilité $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ pourrait être affectée en dimension $D = 2$ et à très basse température (voir figure 4.5).

4.2.2 Résultats obtenus

Diagramme de phase général et analyse dimensionnelle

Nous avons étudié le diagramme de phase du modèle de Heisenberg désordonné en fonction du désordre et pour différentes dimensions. Dans ce modèle, la dimension du système, D , est prise en compte en supposant que la densité d'états d'ondes de spin, $\rho(\epsilon) \equiv \sum_{\mathbf{q}} \delta(\epsilon - J(\mathbf{q}))$, s'annule en bord de bande $\epsilon_{AF} \equiv \min(\epsilon)$ comme

$$\rho(\epsilon) \propto (\epsilon - \epsilon_{AF})^{\frac{D-2}{2}}, \quad (4.30)$$

Le diagramme de phase très général s'obtient alors en procédant de la manière suivante : supposons que l'instabilité AF caractérisée par la condition (4.28) apparaisse avant l'instabilité

4.2 DMFT et désordre : verre, ondes, et liquides de spin

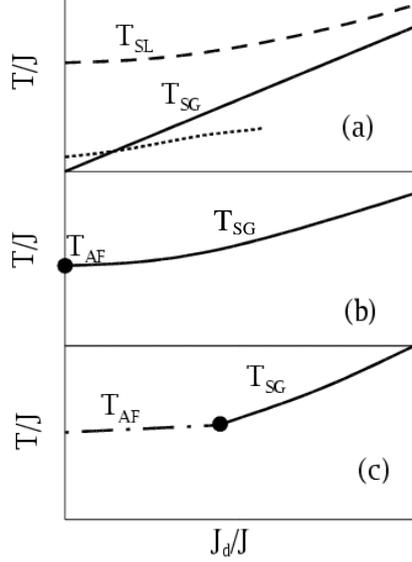


FIGURE 4.4 – Diagramme de phase schématique du modèle de Heisenberg Antiferromagnétique désordonné en dimension a) $D=2$ b) $D=3$, et c) $D \leq 4$. La courbe en tirets, T_{SL} , est une température de crossover en dessous de laquelle les corrélations de liquide de spin apparaissent. T_{SG} et T_{AF} sont respectivement les températures de transition de verre de spin et d'ordre antiferromagnétique. Les points indiquent schématiquement la position à laquelle la température de verre de spin devient supérieure à T_{AF} . La courbe en pointillés indique une ligne de violation de causalité apparaissant en dimension $D=2$. Figure d'après [12]

de verre de spin. Alors, lorsque $T = T_N$, on peut remplacer $\bar{\Pi}_0^{-1}(\omega = 0; T_N) = -J(\mathbf{Q}_{AF})$ par $-\epsilon_{AF}$, et le critère (4.29) de transition de verre de spin devient

$$1 = J_D^2 \int_{\epsilon_{AF}}^{+\infty} \frac{\rho(\epsilon)}{(\epsilon - \epsilon_{AF})^2} d\epsilon. \quad (4.31)$$

En utilisant l'ansatz très général donné par la relation (4.30), on trouve que le terme de droite dans la condition (4.31) diverge pour toute dimension $D \leq 4$. Ceci démontre que le critère de transition de verre de spin est toujours réalisé avant l'instabilité magnétique dès que la dimension est inférieure à 4. Ce résultat, valable même pour un désordre infiniment faible, signifie qu'une phase purement antiferromagnétique ne peut être obtenue que pour une dimension supérieure à 4, ou pour un système rigoureusement propre (*i.e.* sans désordre). Evidemment, la phase ordonnée magnétiquement peut être mixte, formée simultanément d'un ordre AF à longue portée et d'un terme de verre de spin.

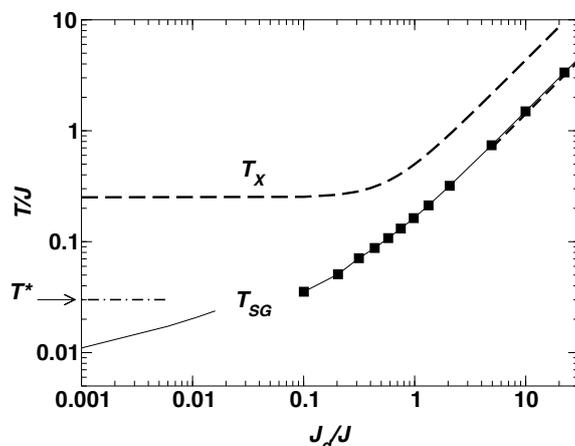


FIGURE 4.5 – Diagramme de phase du modèle de Heisenberg antiferromagnétique désordonné en dimension $D=2$ obtenu à partir des calculs DMFT et utilisant un algorithme de Monte Carlo Quantique pour la résolution du problème effectif local. L'abscisse J_d/J représente le rapport entre la partie désordonnée et la partie antiferromagnétique de l'interaction. T_x indique une température de crossover en dessous de laquelle les corrélations de liquide de spin apparaissent. T_{SG} est la température de transition de verre de spin. T^* indique une ligne de violation de causalité apparaissant en dimension $D=2$. Figure d'après [12]

Etude numérique pour deux réalisations particulières : $D=2$ et $D=3$

Pour un réseau donné, la résolution des équations DMFT autoconsistantes (4.24, 4.25, 4.26, 4.27) peut s'effectuer numériquement par une méthode itérative. Cela nécessite de calculer à chaque itération la susceptibilité dynamique correspondant à l'action effective locale (4.24). Comme pour tout calcul DMFT, ceci nécessite l'utilisation d'un "impurity solver" approprié. Pour l'action (4.24), on pourrait envisager d'utiliser une méthode semi-analytique approximative, telle que celle développée par Sachdev et Ye [87] et que nous avons utilisée pour étudier la compétition entre un liquide de spin et une phase Kondo [4, 5] (voir section 2.4.2). Nous avons préféré ici l'utilisation d'une méthode de résolution numérique plus exacte, basée sur un algorithme de Monte Carlo Quantique développée par D. Grempel et M. Rozenberg [185]. En effet, cette méthode permet de vérifier plus quantitativement l'analyse dimensionnelle générale discutée plus haut.

Dans la suite de cette section, la résolution numérique des équations DMFT par Monte Carlo Quantique a été obtenue pour deux réalisations particulières du modèle de Heisenberg désordonné. Chacune de ces réalisations est définie par la donnée du spectre d'onde de spin AF spécifique du modèle classique non-désordonné sous-jacent, $\rho(\epsilon) \equiv \sum_{\mathbf{q}} \delta(\epsilon - J(\mathbf{q}))$. La première présente les principales caractéristiques d'un système de dimension 2,

$$\rho_{dimension\ 2}(\epsilon) \equiv \frac{1}{2J}. \quad (4.32)$$

La seconde correspond à un système de dimension 3,

$$\rho_{dimension\ 3}(\epsilon) \equiv \frac{2}{\pi J^2} \sqrt{J^2 - \epsilon^2}. \quad (4.33)$$

4.2 DMFT et désordre : verre, ondes, et liquides de spin

Dans ces deux cas, la densité spectrale est bornée et limitée à l'intervalle $-J \leq \epsilon \leq J$. La quantité de désordre du système est donnée par le rapport J_D/J .

Nous avons étudié la susceptibilité dynamique de ce modèle pour différentes valeurs de désordre et une dimension $D=2$. La figure 4.5 montre que ce système est caractérisé par deux échelles de température : la plus élevée correspond à un *crossover* vers un régime dans lequel les spins deviennent fortement corrélés (liquide de spin), mais ne s'ordonnent pas encore. La seconde est la température de verre de spin. Les figures 4.6 et 4.7 montrent res-

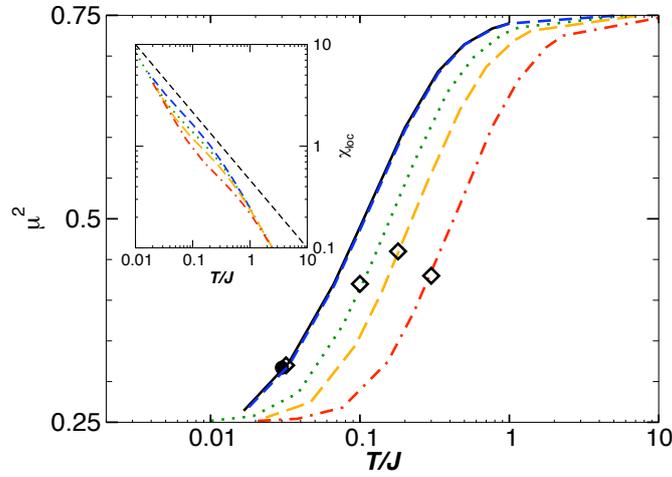


FIGURE 4.6 – Dépendance en température du carré du moment effectif, μ^2 , en dimension $D=2$ pour différentes valeurs du désordre (la courbe de droite correspond au désordre le plus élevé). Les losanges indiquent l'apparition de l'ordre magnétique. L'encart représente la susceptibilité magnétique locale en fonction de la température. La ligne de tirets dans l'encart correspond à $(T/J)^2/3$. Résultats numériques obtenus pour le modèle de Heisenberg antiferromagnétique désordonné en dimension $D=2$. Figure d'après [12].

pectivement pour $D=2$ et $D=3$ la dépendance en température du carré du moment effectif $\mu^2 \equiv T \int_0^{1/T} \chi_{loc}(\tau) d\tau$. Cette quantité vaut $S(S+1) = 0.75$ pour un spin $S = 1/2$ libre. Le moment effectif dévie de cette valeur lorsque les corrélations s'établissent dans le système. Pour $D=3$, l'apparition des corrélations coïncide quasiment avec l'instabilité d'ordre magnétique (indiquée par les losanges sur les figures). Pour $D=2$, un régime fortement corrélé de liquide de spin s'établit sur une large gamme de températures, avant que le système s'ordonne magnétiquement. Nous avons ainsi montré que pour un désordre intermédiaire, le liquide de spin est observable sur plus d'une décade en température. Dans ce régime intermédiaire, la susceptibilité statique suit une loi de puissance en fonction de la température, avec un exposant non entier. Il apparaît sur une gamme de températures beaucoup plus faible lorsque le système est propre ou lorsque le désordre est très important.

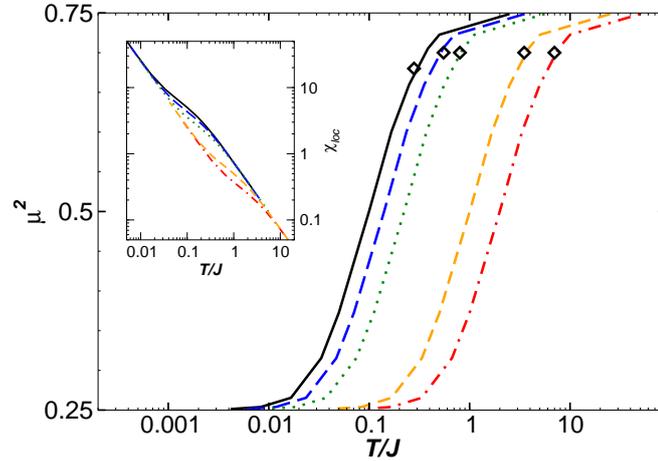


FIGURE 4.7 – Analogue $D=3$ de la figure 4.6. Contrairement au cas $D=2$, la phase liquide de spin n'est pas observable car elle est cachée par la phase verre de spin. Figure d'après [12]

4.2.3 Conclusion, perspectives

L'exemple du modèle de Heisenberg désordonné étudié dans cette section peut servir de modèle prototype pour la méthode développée, qui combine les techniques des développements z grands de la DMFT avec la méthode des répliques. Cette méthode DMFT-répliques exploite le caractère local de la self-énergie générée par le désordre, pour traiter dans un même formalisme des interactions collectives et périodiques, et des fluctuations désordonnées importantes. Cette méthode peut se généraliser pour étudier des systèmes présentant des fluctuations de charges et pouvant être le siège d'un fort désordre. Cette situation se produit notamment dans de nombreux composés de fermions lourds, pour lesquels un point critique quantique sépare une phase liquide de Fermi et une phase de verre de spin (voir chapitre 2). La méthode pourrait aussi s'appliquer à l'étude de systèmes magnétiques isolants sujets à la fois à une frustration géométrique structurelle (voir chapitre 3), et à un fort désordre.

4.3 DMFT/CPA matricielle (alliages Kondo)

En développant une version matricielle de la DMFT, nous avons étudié une famille d'alliages binaires de systèmes d'électrons corrélés [6]. L'une des motivations expérimentales est de pouvoir décrire des séries de matériaux Kondo étudiées par substitution chimique de deux éléments, comme par exemple le dopage Ce-La dans les composés tels que CeNi_2Ge_2 [186] ou CePtIn [187], Yb-Lu dans YbB_{12} [188] ou YbRh_2Si_2 [189], ou encore Eu-Sm, U-Th. Les résultats physiques obtenus en appliquant cette méthode aux alliages Kondo sont décrits dans le chapitre 2. Dans cette section, nous nous concentrons sur des aspects plus tech-

4.3 DMFT/CPA matricielle (alliages Kondo)

niques de la méthode que nous avons développée. Il s'agit d'une adaptation par la DMFT de la généralisation matricielle de l'approximation du potentiel cohérent (CPA), introduite en 1971 par Blackman, Esterling et Berk [80, 190]. Dans la version scalaire de la méthode CPA, le système électronique décrivant un alliage binaire est approximé par un milieu effectif, caractérisé par une self-énergie locale, *i.e.*, dépendante de la fréquence mais pas du vecteur d'onde [191–195]. En remarquant qu'une self-énergie locale caractérise aussi l'approximation de la DMFT (voir section 4.1.1), Kakehashi a montré l'équivalence entre les approximations CPA et DMFT [195]. Bien qu'elles décrivent la même physique, la mise en pratique de ces deux méthodes demeure différente, la DMFT offrant un cadre beaucoup plus général pour traiter les corrélations électroniques locales. Notons par ailleurs que la version matricielle de la DMFT présentée dans cette section se distingue de la méthode DMFT des *clusters* dynamiques introduite dans [70], puisque cette dernière ne concerne que le désordre diagonal (voir plus loin).

4.3.1 Le modèle d'alliage Kondo aléatoire étudié

Expérimentalement, les systèmes Kondo peuvent être réalisés en dopant des composés métalliques ou semi-conducteurs avec des impuretés magnétiques. La formule chimique des alliages ainsi obtenus peut s'écrire $A_x B_{1-x}$, où A désigne un atome magnétique et B un atome non magnétique. Lorsque la concentration en impuretés magnétiques, x , est faible, un modèle Kondo à une seule impureté permet de décrire les propriétés du système à basse température. Lorsque les impuretés sont concentrées (x proche de 1), le modèle à une seule impureté ne permet pas d'expliquer certains phénomènes observés expérimentalement, tels que l'apparition de corrélations magnétiques, la diminution de la température de liquide de Fermi, ou l'apparition d'un régime de non liquide de Fermi. Il est alors nécessaire d'introduire un modèle de type réseau Kondo. En utilisant la généralisation matricielle de la DMFT et de la CPA, nous avons étudié la transition entre le régime dilué (x faible) et le régime dense ($x = 1$) pour des systèmes Kondo.

On considère le modèle d'alliage Kondo décrit par le Hamiltonien suivant

$$H = \sum_{ij\sigma} \tilde{t}_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + J_K \sum_{i \in A} \mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_i, \quad (4.34)$$

où le premier terme décrit un échange proche voisins pour des électrons de conduction sur un réseau cristallin dont les sites sont occupés aléatoirement par des atomes de type A (Kondo) ou B (non Kondo). On suppose que la distribution des atomes A ou B est purement aléatoire, et correspond aux concentrations $c_A = x$ et $c_B = 1 - x$. L'énergie d'échange électronique entre deux sites voisins peut prendre trois valeurs possibles, \tilde{t}_A , \tilde{t}_B , ou \tilde{t}_{AB} selon que les deux sites sont du même type A ou B , ou des deux types. Le réseau cristallin sous-jacent sur lequel sont disposés les atomes A et B est périodique, et caractérisé par un facteur de structure γ_{ij} dont la transformée de Fourier est $\gamma_{\mathbf{k}} \equiv \sum_{ij} \gamma_{ij} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i)}$. Le second terme dans le Hamiltonien (4.34) décrit l'interaction Kondo locale entre la densité de spin locale $\boldsymbol{\sigma}_i$ des électrons de conduction, et le spin quantique $1/2$ représentant chaque impureté Kondo, \mathbf{S}_i .

4.3.2 Méthode DMFT matricielle développée

Nous avons généralisé à un alliage aléatoire les développements z -grands de la DMFT décrits dans la section 4.1.1. Notons que l'une des spécificités de l'alliage se manifeste dès la première étape de ce développement : le type de site choisi comme origine n'est pas clairement défini, puisqu'il peut être aléatoirement soit A , soit B , mais évidemment pas les deux. L'astuce, utilisée dans la suite, consiste à dupliquer virtuellement le réseau cristallin, de sorte que chaque site puisse réunir simultanément les degrés de liberté A et B . L'énergie d'échange électronique peut alors s'exprimer en utilisant une matrice d'échange pouvant hybrider deux pseudo-orbitales A et B sur des sites voisins,

$$\mathbf{W} \equiv \begin{pmatrix} t_A & t_{AB} \\ t_{AB} & t_B \end{pmatrix}, \quad (4.35)$$

où les couplages sont redimensionnés comme $\tilde{t}_{ij} \equiv t_{ij}/\sqrt{z}$ dans la limite d'une grande coordination z , ce qui est standard dans les traitements DMFT. Le système réel initial, dont le type d'atome est bien défini pour chaque site, est alors parfaitement reconstitué en introduisant un opérateur de projection sur chaque site,

$$\mathbf{P}_i \equiv \begin{pmatrix} \hat{x}_i \\ \hat{y}_i \end{pmatrix}, \quad \text{avec son conjugué,} \quad \mathbf{P}_i^\dagger \equiv \begin{pmatrix} \hat{x}_i & \hat{y}_i \end{pmatrix}, \quad (4.36)$$

où $\hat{x}_i = 1 - \hat{y}_i$ vaut 1 si i est un site de type A , et zéro sinon. En utilisant ces définitions, le Hamiltonien (4.34) peut se mettre sous la forme

$$H = \sum_{ij\sigma} c_{i\sigma}^\dagger \mathbf{P}_i \frac{\gamma_{ij} \mathbf{W}}{\sqrt{z}} \mathbf{P}_j c_{j\sigma} + J_K \sum_i \hat{x}_i \mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_i. \quad (4.37)$$

En utilisant les opérateurs de projection introduits ci-dessus, le développement en cumulant décrit dans la section 4.1.1 peut s'appliquer sans difficulté au Hamiltonien (4.37), donnant dans la limite z -grand l'action effective locale suivante pour le site $i = 0$ choisi arbitrairement de type Kondo ($\hat{x}_0 = 1$) ou non Kondo ($\hat{x}_0 = 0$) :

$$\mathcal{A}_{loc}(\hat{x}_0) = - \sum_{\sigma} \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' c_{0\sigma}^\dagger(\tau) \mathbf{P}_0^\dagger \mathbf{K}(\tau - \tau') \mathbf{P}_0 c_{0\sigma}(\tau) - \hat{x}_0 J_K \int_0^{\beta} d\tau \mathbf{S}_0(\tau) \cdot \boldsymbol{\sigma}_0(\tau). \quad (4.38)$$

Ici, le bain dynamique \mathbf{K} prend la forme d'une matrice 2×2 , dont les opérateurs de projection $\mathbf{P}_0^{(\dagger)}$ sélectionnent les éléments \mathcal{K}_A ou \mathcal{K}_B selon que le site 0 est occupé par un atome de type A ou B . L'action effective locale reste scalaire, et peut prendre deux valeurs, $\mathcal{A}_{loc}(\hat{x}_0 = 1) \equiv \mathcal{A}_A$, et $\mathcal{A}_{loc}(\hat{x}_0 = 0) \equiv \mathcal{A}_B$. Le bain dynamique est donné par⁸

$$\mathbf{K}(\omega) = (\omega + \mu) \mathbf{I} - \sum_{ij} \frac{\gamma_{0i} \gamma_{j0}}{z} \mathbf{W} \left\langle \mathbf{P}_i \mathbf{P}_j^\dagger G_{ij}^{cav.}(\omega) \right\rangle_{des.} \mathbf{W}. \quad (4.39)$$

8. relation similaire à Eq. (4.8), obtenue dans l'exemple illustratif de la section 4.1.1

4.3 DMFT/CPA matricielle (alliages Kondo)

Dans cette expression, le facteur devant la matrice identité \mathbf{I} est standard dans les développements DMFT de systèmes de fermions traités comme des champs grassmanniens, et il correspond au propagateur libre des électrons de conduction, avec le potentiel chimique μ . La fonction de Green $G_{ij}^{cav.}$ caractérise les électrons avec la cavité. La notation $\langle \dots \rangle_{des.}$ signifie que le système a été moyenné par rapport aux différentes configurations A ou B de tous les autres sites, *i.e.*, le site 0 excepté⁹.

Suivant la procédure DMFT standard, les fonctions de Green électroniques sont exprimées pour chaque configuration aléatoire par un développement perturbatif à l'ordre infini en échange inter-site. En ne gardant que les termes dominants dans la limite z -grand, on obtient une généralisation matricielle du développement (4.9)

$$\mathbf{G}_{ij} = \sum_{chemins} \frac{\gamma_{ii_1} \gamma_{i_1 i_2} \dots \gamma_{i_p j}}{z^{(p+1)/2}} \mathbf{\Pi}_{ii} \mathbf{W} \mathbf{\Pi}_{i_1 i_1} \mathbf{W} \dots \mathbf{\Pi}_{i_p i_p} \mathbf{W} \mathbf{\Pi}_{jj}, \quad (4.40)$$

où l'on a introduit la structure matricielle pseudo-orbitale des fonction de Green

$$\mathbf{G}_{ij} \equiv \mathbf{P}_i \mathbf{G}_{ij} \mathbf{P}_j^\dagger = \begin{pmatrix} \hat{x}_i \hat{x}_j & \hat{x}_i \hat{y}_j \\ \hat{y}_i \hat{x}_j & \hat{y}_i \hat{y}_j \end{pmatrix} G_{ij}, \quad (4.41)$$

et celle du propagateur local

$$\mathbf{\Pi}_{ii} \equiv \mathbf{P}_i \mathbf{\Pi}_{ii} \mathbf{P}_i^\dagger = \begin{pmatrix} \hat{x}_i^2 & \hat{x}_i \hat{y}_i \\ \hat{y}_i \hat{x}_i & \hat{y}_i^2 \end{pmatrix} \Pi_{ii}. \quad (4.42)$$

Le propagateur local $\mathbf{\Pi}_{ii}$ contient les corrélations locales et peut varier d'un site à l'autre, en fonction du type d'atome (A ou B), mais aussi en fonction de la configuration aléatoire environnante. De manière similaire à l'approche suivie dans la version matricielle de l'approximation du potentiel cohérent (CPA)[190], il faut considérer ici $\hat{x}_i = \delta$ (site B) ou $1 - \delta$ (site A) et prendre la limite $\delta \rightarrow 0$ ultérieurement.

Par la suite, nous allons moyenner la relation (4.40) par rapport aux configurations possibles. En supposant que le type d'atome A ou B sur chaque site est aléatoire et indépendant de la configuration des autres sites, on obtient le développement z -grand suivant pour la fonction de Green moyenne,

$$\langle \mathbf{G}_{ij} \rangle_{des.} = \sum_{chemins} \frac{\gamma_{ii_1} \gamma_{i_1 i_2} \dots \gamma_{i_p j}}{z^{(p+1)/2}} \mathbf{\Pi}_0 \mathbf{W} \mathbf{\Pi}_0 \mathbf{W} \dots \mathbf{\Pi}_0 \mathbf{W} \mathbf{\Pi}_0, \quad (4.43)$$

où $\mathbf{\Pi}_0 \equiv \langle \mathbf{\Pi}_{ii} \rangle_{des.}$. En remarquant que la symétrie de translation du réseau sous-jacent est rétablie pour ces quantités moyennées, la suite du développement DMFT peut redevenir standard. Ainsi, par exemple, la matrice 2×2 du bain dynamique Eq. (4.39) peut se simplifier en utilisant la relation $\langle \mathbf{P}_i \mathbf{P}_j^\dagger G_{ij}^{cav.} \rangle_{des.} = \langle \mathbf{G}_{ij}^{cav.} \rangle_{des.} = \langle \mathbf{G}_{ij} \rangle_{des.} - \langle \mathbf{G}_{i0} \rangle_{des.} \mathbf{G}_{loc}^{-1} \langle \mathbf{G}_{0j} \rangle_{des.}$, avec

$$\mathbf{G}_{loc} \equiv \langle \mathbf{G}_{ii} \rangle_{des.} = \begin{pmatrix} x G_A & 0 \\ 0 & (1-x) G_B \end{pmatrix}. \quad (4.44)$$

9. Le fait d'auto-moyenner le bain sur le désordre est similaire à la méthode suivie pour le modèle de Heisenberg désordonné dans la section 4.2. On pourrait, pour être rigoureux, obtenir la même expression après avoir introduit des répliques du système et supposer par la suite la symétrie de réplique.

Relations auto-consistantes obtenues pour le système moyenné

Les éléments de matrices diagonaux de la fonction de Green locale moyennée, G_A et G_B , correspondent respectivement aux fonctions de Green locales obtenues pour l'action effective locale Eq. (4.38) sur des sites de type A et B . On obtient, pour un site comportant un atome de type Kondo,

$$A_{loc}^A = - \sum_{\sigma} \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' c_{0\sigma}^{\dagger}(\tau) \mathcal{K}_A(\tau - \tau') c_{0\sigma}(\tau) - J_K \int_0^{\beta} d\tau \mathbf{S}_0(\tau) \cdot \boldsymbol{\sigma}_0(\tau). \quad (4.45)$$

Cette action contient le terme d'interaction Kondo locale, dont la prise en compte pour le calcul de G_A nécessite l'utilisation d'une méthode ou d'une approximation appropriée (comme pour tout calcul par DMFT). En revanche, l'action effective locale sur les sites de type B est simplement gaussienne et ne présente aucun terme de corrélation explicite. La fonction de Green correspondante se déduit alors directement du bain par la relation

$$G_B(\omega) = \frac{1}{\mathcal{K}_B(\omega)}. \quad (4.46)$$

Ces relations DMFT sont complétées par des relations auto-consistantes pour les bains dynamiques. Pour cela, on considère que \mathcal{K}_A et \mathcal{K}_B sont les éléments diagonaux de la matrice 2×2 de bain \mathbf{K} (voir expression 4.39). Cette matrice de bain peut se déduire des fonctions de Green locales, en résolvant l'équation

$$\mathbf{G}_{loc}(\omega) = \sum_{\mathbf{k}} ((\omega + \mu)\mathbf{I} - \mathbf{K}(\omega) + \mathbf{G}_{loc}^{-1}(\omega) - \mathbf{W}\boldsymbol{\gamma}_{\mathbf{k}})^{-1}, \quad (4.47)$$

où la matrice diagonale \mathbf{G}_{loc} s'exprime en fonction de G_A , G_B et de la concentration x en utilisant la relation (4.44).

Self-énergie locale et corrélations spatiales

On introduit la transformée de Fourier de la matrice (au sens pseudo-orbital A ou B) des fonctions de Green électroniques, $\mathbf{G}_{\mathbf{k}} \equiv \sum_{ij} e^{-\mathbf{k}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \mathbf{G}_{ij}$. Si le système est suffisamment grand, on peut supposer que la fonction de corrélation est auto-moyennée lorsque l'on somme sur les sites. On peut alors exprimer $\mathbf{G}_{\mathbf{k}}$ en remplaçant \mathbf{G}_{ij} par sa valeur moyenne. En utilisant les développements DMFT présentés plus haut, on montre que

$$\mathbf{G}_{\mathbf{k}}(\omega) = ((\omega + \mu)\mathbf{I} - \boldsymbol{\Sigma}(\omega) - \mathbf{W}\boldsymbol{\gamma}_{\mathbf{k}})^{-1}, \quad (4.48)$$

où la matrice de self-énergie locale est donnée par la relation

$$\boldsymbol{\Sigma}(\omega) \equiv \mathbf{K}(\omega) - \mathbf{G}_{loc}^{-1}(\omega). \quad (4.49)$$

Soulignons que la méthode DMFT développée ici préserve les corrélations entre les deux sous-systèmes A et B . En effet, \mathbf{G}_{loc} est diagonale car chaque site doit être d'un type A ou B bien défini. Mais $\mathbf{G}_{\mathbf{k}}$ n'est pas diagonale, les pseudo-bandes A et B étant inévitablement

4.3 DMFT/CPA matricielle (alliages Kondo)

hybridées par le terme d'échange t_{AB} . Les éléments hors-diagonaux de la matrice de self-énergie, Σ_{AB} , sont déterminés en exprimant que la fonction de Green locale est diagonale, $G_{loc}^{AB} = 0$. L'apparition de ces termes hors-diagonaux pour la self-énergie n'est pas liée à l'interaction Kondo ; elle résulte simplement de l'impossibilité qu'un site soit simultanément de types A et B . D'une certaine manière, si l'on décrit le système comme étant constitué de deux pseudo-bandes A et B hybridées, la répulsion locale infinie entre ces deux pseudo-bandes se manifeste par un terme de self-énergie locale.

4.3.3 Résultats obtenus

Les alliages Kondo considérés sont « doublement » aléatoires :

Aléatoirité diagonale : chaque atome de l'alliage peut être soit une impureté Kondo (atomes A , avec une probabilité x), soit un atome non magnétique (atomes B , probabilité $1 - x$).

Aléatoirité non diagonale : l'énergie d'échange d'un électron entre deux atomes voisins dépend de la nature de ces atomes ; trois énergies d'échanges sont possibles, t_A , t_B , et t_{AB} . Nous avons étudié ces deux effets tout d'abord indépendamment, puis simultanément, en utilisant la méthode DMFT matricielle présentée précédemment. Pour les applications numériques, nous avons considéré comme réseau un arbre de Bethe, qui permet de remplacer la somme sur les moments k [dans la relation d'auto-consistance (4.47)] par une intégrale sur la densité spectrale semi-elliptique correspondante.

Aléatoirité non diagonale

En l'absence d'interaction Kondo, le système se réduit à un modèle de type *tight-binding* aléatoire, caractérisé par trois énergies d'échange, t_A , t_B , et t_{AB} . Les densités d'états électroniques locales ont été calculées pour chaque type de site, A ou B . Les résultats numériques complets, présentés dans [6], font apparaître deux régimes :

- Régime $t_{AB} < \sqrt{t_A t_B}$, de faible couplage entre les deux sous-systèmes A et B : les densités d'états locales sont simplement renormalisées en fonction des concentrations x_A et x_B en atomes A et B , comme illustré sur la figure 4.8.

- Régime $t_{AB} > \sqrt{t_A t_B}$: ce régime de couplage fort entre les deux sous-systèmes A et B est beaucoup plus riche. Comme on peut le voir sur la figure 4.9, les densités d'états électroniques locales se décomposent en trois parties : deux satellites et un pic central, entre lesquels un gap peut apparaître lorsque l'énergie d'échange t_{AB} est suffisamment élevée. Les pics satellites correspondent à des états électroniques repartis de manière équiprobable entre les deux sous réseaux A et B , alors que les états du pic central correspondent à des électrons créés uniquement sur les atomes majoritaires (B si $x < 1/2$ et A si $x > 1/2$).

Aléatoirité diagonale

Nous avons calculé la température de Kondo T_K et la température de liquide de Fermi T_{FL} d'un alliage Kondo pour des énergies d'échange électronique égales ($t_A = t_B = t_{AB}$), ainsi que la densité d'états électroniques locale pour un site magnétique A . Le résultat obtenu a permis de compléter des résultats obtenus précédemment sur le réseau Kondo. La section 2.3.3 de ce rapport est spécifiquement dédiée à l'analyse des échelles d'énergie que

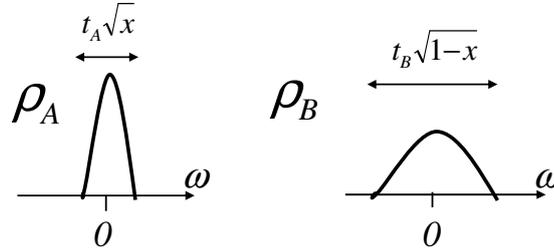


FIGURE 4.8 – Densités d'états électroniques locales (couplage t_{AB} faible). Schéma simplifié obtenu d'après les résultats numériques. Figure d'après [6].

Averaged local dos: $\rho = x\rho_A + (1-x)\rho_B$

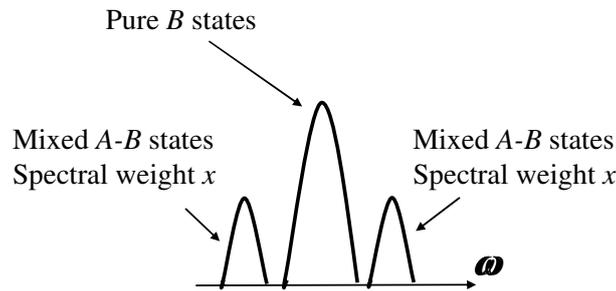


FIGURE 4.9 – Densité d'état électronique locale moyenne (couplage t_{AB} fort). Schéma simplifié obtenu d'après les résultats numériques. Le poids de chacun des deux pics satellites est égal à la concentration en atomes minoritaires (x ou $1-x$). Figure d'après [6].

nous avons calculées pour ce système. Nous avons ainsi mis en évidence la transition entre le régime d'impuretés diluées et celui d'impuretés denses, qui apparaît pour une concentration $x = n_c$. Cette transition peut s'observer en étudiant l'évolution des deux échelles d'énergie en fonction de x . On peut le constater sur la figure 2.6, qui présente des courbes identiques dans le régime dilué et distinctes dans le régime dense. La densité d'états électroniques locale, présentée sur la figure 4.10, se caractérise par l'apparition de la résonance Kondo à la température de Kondo T_K , phénomène indépendant de la concentration en impuretés, x . Par contre, à plus basse température, la formation de l'état cohérent de liquide de Fermi implique l'ouverture d'un gap lorsque le nombre d'impuretés devient supérieur au nombre d'électrons de conduction.

4.3 DMFT/CPA matricielle (alliages Kondo)

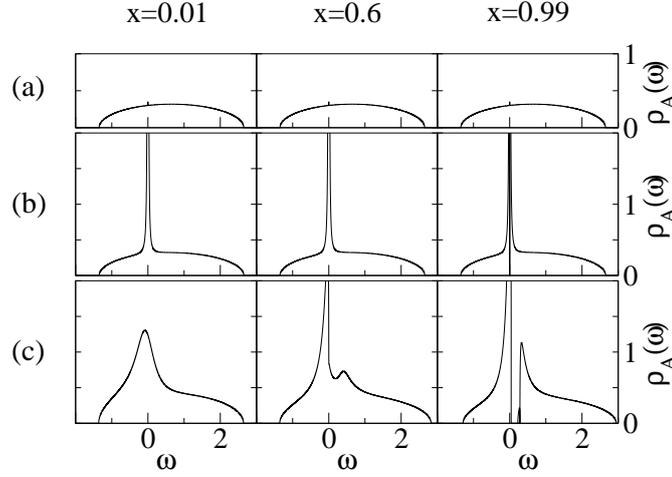


FIGURE 4.10 – Densité d'états électroniques locale (dos) calculée numériquement pour différentes concentrations x et un remplissage électronique $n_c = 0.6$. (a) Pour $T > T_K$, nous obtenons une dos semi elliptique, correspondant à la dos d'un système d'électrons sans interaction sur un réseau de Bethe (réseau utilisé pour les calculs). (b) Pour $T = T_K$, la résonance kondo apparait au niveau de Fermi, indépendamment de la concentration x . (c) Pour $T \ll T_K$, un gap s'ouvre pour $x > n_c$. Figure d'après [6].

Deux effets aléatoires simultanés

Après avoir étudié indépendamment les deux phénomènes aléatoires (diagonal, et non diagonal) dans les deux sections précédente, cette section est consacrée à l'analyse de leur présence simultanée. Nous avons calculé les densités d'états électroniques locales et les énergies caractéristiques du modèle Kondo avec énergies d'échange électronique aléatoires, en fonction de la concentration x en impuretés magnétiques, et pour différentes valeurs du remplissage électronique n_c .

En complément de la transition entre le régime dense et le régime dilué, obtenue pour $x = n_c$, il apparaît deux autres concentrations critiques $x_{c1} = n_c/2$ et $x_{c2} = 1 - n_c/2$, permettant de caractériser l'évolution de la température de Kondo selon trois régimes, celle-ci pouvant être très fortement diminuée pour des concentrations $x < x_{c1}$. L'apparition de ces différents régimes pour t_{AB} élevé s'explique en considérant la structure multi-bande de la densité d'états électroniques locale, constituée d'un pic central et de deux satellites (voir figure 4.9). Les concentrations x_{c1} et x_{c2} correspondent à une transition du niveau de Fermi entre les pics satellites, correspondant à des états électroniques distribués de manière équiprobable entre les atomes magnétiques et non magnétiques, et le pic central, correspondant à des états électroniques sur les atomes majoritaires, c'est-à-dire magnétiques pour $x > x_{c2}$, et non magnétiques pour $x < x_{c1}$. La température de Kondo étant directement liée à la densité d'états électroniques disponibles sur les sites magnétiques, celle-ci peut s'annuler pour $x < x_{c1}$. Une règle de somme permet alors d'expliquer la relation observée numériquement entre x_{c1} , x_{c2} et n_c .

Les résultats que nous avons obtenus prédisent un comportement universel du rapport T_0/T_K . Ils suggèrent une étude systématique des résultats expérimentaux obtenus pour des alliages

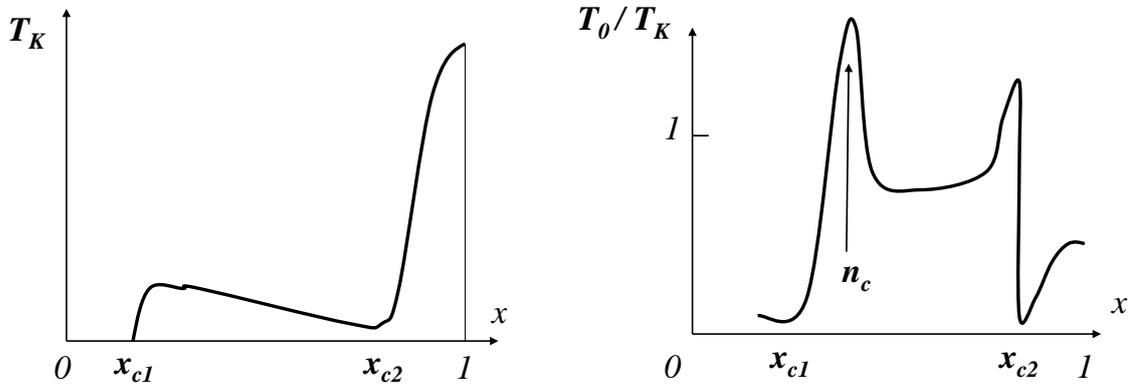


FIGURE 4.11 – Evolution de la température de Kondo T_K (à gauche) et du rapport entre la température de liquide de Fermi et la température de Kondo, T_0/T_K (à droite), en fonction de x , dans le régime t_{AB} élevé par rapport à t_A et t_B . Schéma simplifié obtenu d’après les calculs numériques.

de type Kondo. De plus, l’approche DMFT matricielle que nous avons développée pour ce système peut être adaptée très simplement pour étudier d’autres modèles d’alliages de substitution présentant de fortes corrélations électroniques.

4.3.4 Conclusion, perspectives

La méthode DMFT que nous avons développée s’est avérée très efficace pour étudier des alliages Kondo. Nous l’avons utilisée pour décrire des phases paramagnétiques de ces systèmes, en traitant l’interaction Kondo par la méthode du champ moyen statique (résultats discutés dans le chapitre 2). De nombreuses adaptations sont possibles, pour explorer d’autres questions liées aux alliages Kondo, comme par exemple l’origine du comportement de non liquide de Fermi observé par dopage Ce-La dans le composé CeNi_2Ge_2 [186]). Des questions théoriques générales restent ouvertes, concernant par exemple l’évolution de la surface de Fermi d’un alliage Kondo binaire (voir aussi le chapitre 2), ou l’éventuelle généralisation à ce type de systèmes de la démonstration du théorème de Luttinger présentée dans [140]. La possibilité d’observer des transitions vitreuses pourrait aussi être explorée, en utilisant la méthode des répliques (voir section 4.2). Cette méthode ne se limite pas aux alliages Kondo, et peut aussi être appliquée de manière très générale à l’étude d’alliages binaires, avec ou sans corrélations électroniques.

4.4 Bosons esclaves et théorie des Matrices Aléatoires (systèmes chaotiques)

Cette section passe en revue différentes études que nous avons effectuées, par la méthode des bosons esclaves, d'une boîte quantique mésoscopique chaotique couplée à une impureté magnétique de type Kondo [13–16].

Le concept de boîte Kondo a été introduit à la fin des années 1990 [196], c'est à dire assez tardivement dans l'histoire de l'effet Kondo, pour décrire une impureté magnétique dans un grain métallique de très petite taille. Parallèlement, la nano-électronique a fait émerger à la même époque des transistors à très faible nombre d'électrons, pouvant se comporter comme des impuretés magnétiques Kondo artificielles [197, 198]. Dans ce contexte, la boîte Kondo décrit aussi une structure mésoscopique constituée d'un double point quantique [199, 200]. L'aspect mésoscopique de ces systèmes peut affecter fortement leurs propriétés, et certains des résultats qui étaient bien établis pour le modèle Kondo dans un bain électronique macroscopique doivent être entièrement revisités. Nous nous sommes plus spécifiquement intéressés aux effets des éventuelles fluctuations chaotiques du bain.

4.4.1 Système, modèle : boîte Kondo mésoscopique (chaotique ou non)

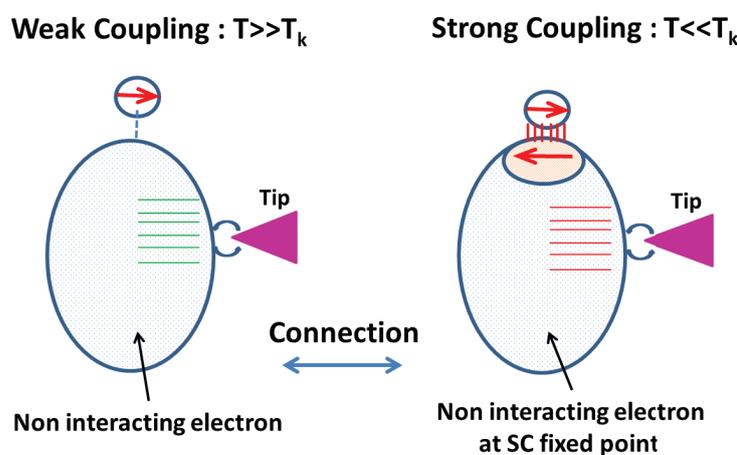


FIGURE 4.12 – Illustration schématique d'un système couplant un grand et un petit îlot quantique. A gauche : régime couplage faible $T \gg T_K$. A droite : régime couplage fort $T \ll T_K$. Les énergies des niveaux et les fonctions d'onde observables à l'aide d'une pointe STM (tip) peuvent varier d'un régime liquide de Fermi à l'autre.

Le modèle que nous étudions décrit une impureté Kondo en interaction avec un bain électronique mésoscopique caractérisé par un spectre fini et discret. Ce système peut être réalisé expérimentalement en connectant deux points (ou îlots) quantiques de tailles différentes (voir figure 4.12). La répulsion coulombienne engendre pour chaque îlot quantique une séparation énergétique entre niveaux d'occupations électroniques, qui est d'autant plus forte que la taille de l'îlot est petite. Il est ainsi possible, en jouant avec la taille des deux points quantiques, de réaliser un système pour lequel le petit îlot est décrit par un seul électron, c'est-à-dire une

impureté Kondo. Le second îlot quantique, plus gros, constitue le bain électronique mésoscopique. Une autre réalisation expérimentale est obtenue en dopant un système métallique de taille mésoscopique avec une très faible concentration d'atomes magnétiques.

L'interaction Kondo est traitée par l'approximation du champ moyen (*i.e.*, l'approche « grand N », ou « bosons esclaves », voir chapitre 2). Plusieurs paramètres physiques ajustables expérimentalement sont considérés : l'espacement moyen Δ entre les niveaux du bain, la température T , la température de Kondo T_K^{bulk} qui caractériserait le même système si le bain était macroscopique (*i.e.* pour $\Delta = 0$), et le potentiel électrique ou chimique μ appliqué au bain. l'effet principal de ce dernier consiste à faire varier la parité du nombre d'électrons du bain. Nous avons calculé les quantités physiques permettant de décrire et de caractériser ce système : la température de Kondo, la susceptibilité magnétique, la densité d'états électroniques, la conductivité électrique à travers le gros îlot quantique. Nous avons aussi étudié les corrélations entre le liquide de Fermi mésoscopique caractérisant le régime Kondo et celui caractérisant le régime découplé (voir figure 4.12).

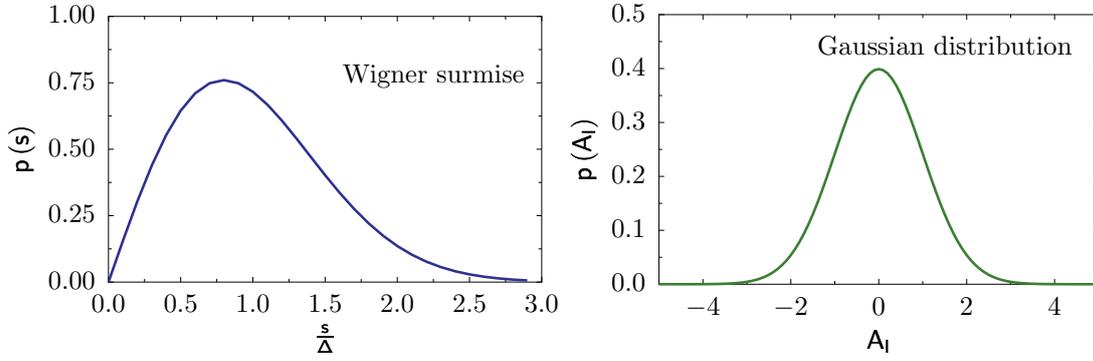


FIGURE 4.13 – Distributions utilisées pour la boîte Kondo chaotique. A gauche, distribution des espacements entre niveaux d'énergie s (Δ dénote l'espacement moyen). A droite, distribution des amplitudes des fonctions d'onde électroniques locales, *i.e.*, sur le site de l'impureté.

4.4.2 Modèle et méthode

Les principales propriétés du système sont décrites indistinctement par un Hamiltonien Kondo, $H = H_{\text{bain}} + J_K \mathbf{s}_0 \mathbf{S}$, ou par un Hamiltonien de Anderson $H = H_{\text{bain}} + V \sum_{\sigma} [d_{0\sigma}^{\dagger} f_{\sigma} + f_{\sigma}^{\dagger} d_{0\sigma}] + E_f \sum_{\sigma} f_{\sigma}^{\dagger} f_{\sigma}$ avec répulsion coulombienne locale U_{ff} infinie. Un ingrédient crucial sur lequel nous nous focalisons dans cette section est le fait que l'impureté quantique, Kondo ou de Anderson, est placée dans un bain électronique mésoscopique (le gros îlot) décrit par le Hamiltonien $H_{\text{bain}} = \sum_{i\sigma} (\epsilon_i - \mu) d_{i\sigma}^{\dagger} d_{i\sigma}$. Le système est supposé chaotique, et les niveaux d'énergie ϵ_i , discrets, sont distribués selon la théorie des matrices aléatoires [201]; les fonctions d'ondes électroniques locales $\phi_i(0)$ permettant de relier l'opérateur de création électronique local $d_{0\sigma}^{\dagger}$ aux modes d'excitations propres du gros îlot, $d_{i\sigma}^{\dagger}$, sont données par une distribution gaussienne (voir figure 4.13).

On pourrait envisager d'étudier ce système par une approche DMFT (voir section 4.1.1). Ainsi, par exemple, la boîte Kondo chaotique peut être décrite par une action effective locale $\mathcal{A}_{loc} = - \sum_{\sigma} \int_0^{\beta} d\tau \int_0^{\beta} d\tau' d_{0\sigma}^{\dagger}(\tau) \mathcal{K}(\tau - \tau') d_{0\sigma}(\tau) - J_K \int_0^{\beta} d\tau \mathbf{s}_0(\tau) \cdot \mathbf{S}_0(\tau)$ formellement très similaire à celle obtenue section 4.3 pour une impureté Kondo placée dans un

4.4 Bosons esclaves et théorie des Matrices Aléatoires (systèmes chaotiques)

alliage aléatoire (voir Eq. 4.45). Cependant, une différence cruciale distingue ces deux systèmes : le bain dynamique obtenu pour l'îlot mésoscopique est caractérisé par un spectre discret, $\mathcal{K}^{-1}(\omega) = \sum_i \frac{|\phi_i(0)|^2}{\omega + \mu - \epsilon_i}$, alors que celui obtenu dans un alliage Kondo macroscopique, $\mathcal{K}_A^{-1}(\omega)$, possède un spectre continu. Cette différence s'avère très pertinente lorsque l'on s'intéresse à des systèmes chaotiques, pour lesquels les fonctions d'ondes locales $\phi_i(0)$ et les niveaux d'énergie ϵ_i sont distribués aléatoirement. En effet, pour un spectre continu, il suffit que le système soit métallique pour obtenir une densité spectrale finie, $\text{Im}\mathcal{K}_A^{-1}(i0^+) \neq 0$; il en résulte l'émergence d'une énergie Kondo finie pouvant favoriser l'apparition d'un régime de couplage fort entre l'impureté et le bain électronique¹⁰. Comme nous allons le voir, la réalisation d'une phase Kondo s'avère plus subtile pour un bain mésoscopique.

Certaines méthodes de calcul permettant de résoudre les modèles Kondo et Anderson à une impureté supposent que le spectre du bain électronique soit continu. Ainsi, l'Ansatz de Bethe [202, 203] ne peut pas s'appliquer pour le système mésoscopique que nous étudions dans cette section, à cause du caractère discret du spectre du bain électronique. De même, le groupe de renormalisation numérique, bien qu'il s'appuie sur une discrétisation logarithmique du spectre du bain [17, 204–206], ne peut pas s'appliquer trivialement à un système chaotique dont les niveaux discrets sont distribués aléatoirement. Les méthodes numériques telles que la diagonalisation exacte ou Monte Carlo Quantique [207] peuvent s'avérer peu efficaces, la première ne pouvant s'appliquer que pour un très petit nombre de niveaux électroniques, et la seconde pouvant s'avérer très lourde à basse température.

L'approximation de champ moyen décrite au chapitre 2 pour l'étude de systèmes Kondo macroscopiques est ainsi la méthode la plus naturelle pour explorer le problème de la boîte Kondo chaotique. Plusieurs modèles d'impuretés dans un bain mésoscopique ont déjà été étudiés avec succès en utilisant cette approximation (voir par exemple [208]). Dans cette section, nous nous concentrons sur les spécificités du caractère chaotique et aléatoire de la boîte Kondo étudiée.

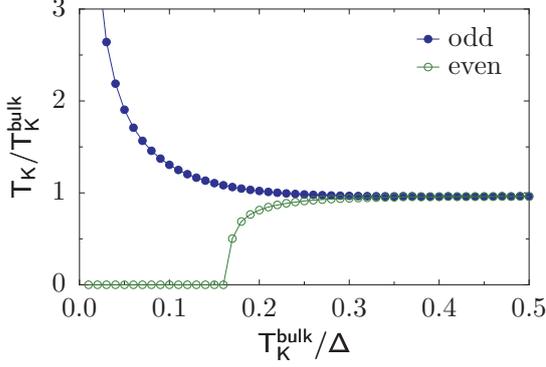
4.4.3 Système mésoscopique idéalisé (*i.e.*, non-chaotique)

Dans un premier temps, nous avons considéré une boîte Kondo idéalisée, pour laquelle l'espacement entre niveaux d'énergie, Δ , ainsi que l'amplitude locale des fonctions d'ondes sur le site de l'impureté, $\phi_i(0)$, sont constants. Les résultats que nous avons obtenus confirment et complètent des résultats obtenus précédemment par d'autres méthodes. Notamment, alors que les propriétés du régime macroscopique $T_K^{bulk} \gg \Delta$ sont universelles, nous obtenons des effets de parité lorsque $T_K^{bulk} < \Delta$. Lorsque le remplissage électronique de la boîte Kondo est impair, l'état fondamental est toujours caractérisé par l'effet Kondo, alors que pour un remplissage électronique pair, nous obtenons une valeur critique de l'espacement Δ , au delà de laquelle l'effet Kondo ne peut pas apparaître (voir figure 4.14).

Même dans le régime Kondo, les effets de parité se manifestent, par exemple, sur le comportement de la susceptibilité magnétique locale, $\chi(T)$: en l'absence d'effet Kondo, la réponse magnétique de l'impureté suit une loi de Curie, caractéristique d'un spin $S = 1/2$ libre, et le carré du moment effectif, $T\chi^{zz}(T)$ vaut $1/4$. Dans une phase Kondo complètement écrantée, caractérisée par la formation d'un singulet local, le moment effectif s'annule. C'est le cas

10. Les instabilités d'une telle phase sont discutées dans la section 2.4.

4.4 Bosons esclaves et théorie des Matrices Aléatoires (systèmes chaotiques)



Les ronds pleins correspondent à un remplissage électronique impair (odd).
Les cercles correspondent à un remplissage pair (even).

FIGURE 4.14 – Température de Kondo de la boîte Kondo idéalisée, en fonction de l'inverse de l'espace entre niveaux d'énergie, Δ . L'échelle d'énergie utilisée est la température de Kondo du système macroscopique équivalent, T_K^{bulk} . Résultat numérique obtenu en traitant l'interaction Kondo par l'approximation du champ moyen [209].

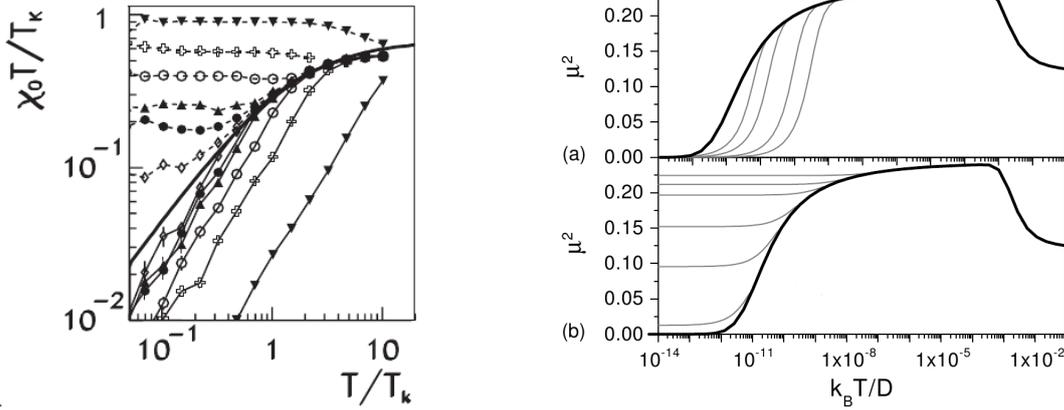


FIGURE 4.15 – Moment effectif local de la boîte Kondo idéalisée obtenu numériquement, par simulations Monte Carlo quantique (figure de gauche, d'après [207]), et par le groupe de renormalisation numérique (figure de droite, d'après [206]); attention aux notations, exceptionnellement pour cette figure, $\mu^2 \equiv T\chi^{zz}(T)$. Les lignes pleines épaisses correspondent à la limite thermodynamique (i.e. occupation électronique infinie). Les autres lignes correspondent à des occupations électroniques finies prenant différentes valeurs paires (à gauche lignes pleines, à droite lignes grises a), ou impaires (à gauche lignes en pointillés, à droite lignes grises b).

de la boîte Kondo idéalisée lorsque le remplissage électronique est impair (voir figures 4.15 et 4.16). Par contre, pour un remplissage pair, l'écrantage Kondo n'est que partiel, et le moment effectif reste fini jusqu'à température nulle.

Nos résultats permettent ainsi de valider l'approximation de champ moyen que nous avons utilisée pour ce modèle idéalisé. Celle-ci s'est avérée très efficace pour la suite de cette étude, qui consiste à étudier un modèle pour lequel le bain électronique mésoscopique est chaotique. Dans ce cas, l'impureté Kondo est couplée aléatoirement avec chacun des différents niveaux du bain, selon une distribution donnée par la théorie des matrices aléatoires (voir figure 4.13). Ce modèle permet de tenir compte de la géométrie du système mésoscopique considéré.

4.4 Bosons esclaves et théorie des Matrices Aléatoires (systèmes chaotiques)

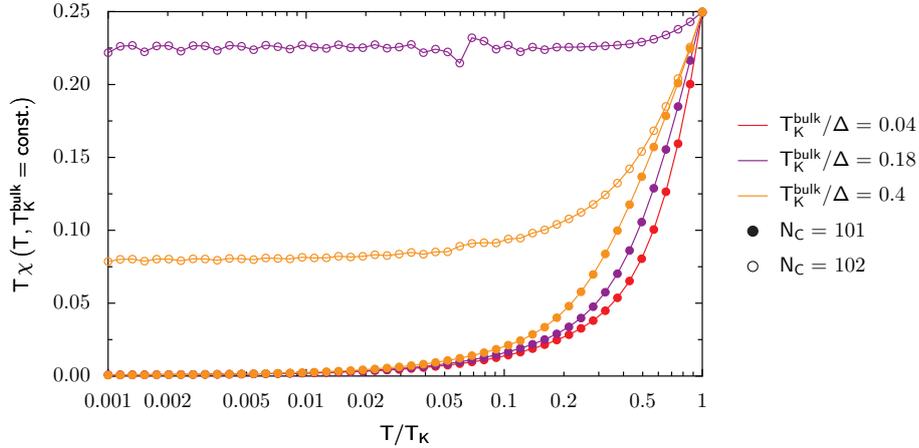


FIGURE 4.16 – Moment effectif local de la boîte Kondo idéalisée obtenu par l’approximation du champ moyen pour un remplissage impair (ronds pleins), et pair (cercles) [209]. Les effets de parité obtenus par des méthodes numériques plus lourdes sont reproduits très efficacement par le champ moyen (voir figure 4.15).

4.4.4 Système mésoscopique chaotique : résultats obtenus

En traitant l’interaction Kondo par l’approximation du champ moyen, nous avons calculé numériquement les quantités physiques suivantes :

Température de Kondo

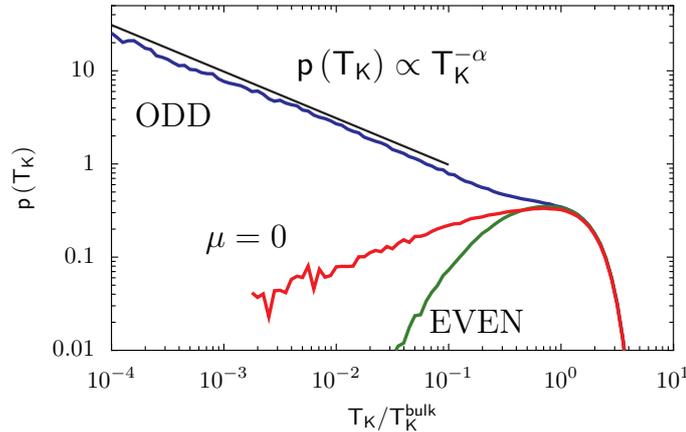


FIGURE 4.17 – Distribution de température de Kondo de la boîte Kondo chaotique, obtenue pour $\Delta/T_K^{\text{bulk}} = 2$ pour N_C fixé ou $\mu = 0$. Un résultat quantitativement identique, non présenté ici, a aussi été obtenu pour $\Delta/T_K^{\text{bulk}} 100$. Pour N_C impair, on observe une loi de puissance $p(T_K) \propto T_K^{-\alpha}$, indiquée par le segment de droite. Résultat numérique obtenu dans le cadre de l’approximation du champ moyen, en considérant 100 niveaux électroniques et plus de 50000 configurations chaotiques aléatoires. Figure d’après [13].

La figure 4.17 illustre les effets de parité du remplissage électronique, qui donnent lieu à des distributions de température de Kondo différentes selon que la boîte Kondo chaotique

comporte un nombre d'électrons pair ou impair. Notons que des probabilité de distribution de température de Kondo avaient déjà été étudiées dans un contexte différent, de matériaux macroscopiques désordonnés [210–212], pour lesquels des lois de puissance avaient aussi été prédites, mais aucun effet de parité n'avait pu être étudié.

Susceptibilité magnétique et nombre de Wilson

Comme pour un réseau Kondo, mais pour des raisons bien différentes, le nombre de Wilson de la boîte kondo chaotique, défini comme le produit entre la température de Kondo et la susceptibilité magnétique locale à $T = 0$, n'est pas une quantité universelle. Cela contraste fortement avec le cas d'une impureté Kondo dans un bain électronique macroscopique (voir l'intégralité du chapitre 2 pour l'étude du réseau Kondo). La figure 4.18 permet d'illustrer cette non universalité pour le cas mésoscopique, en présentant la distribution du nombre de Wilson, calculée pour un bain électronique chaotique. La figure 4.19 montre la distribution

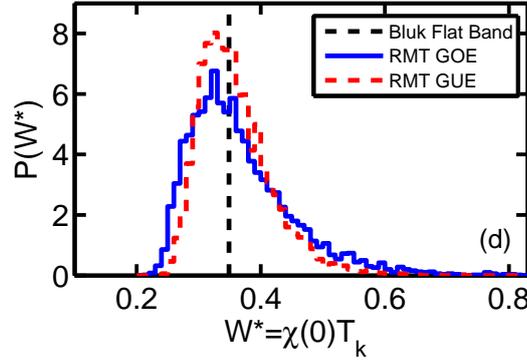


FIGURE 4.18 – Distribution du nombre de Wilson, $W^* = T_K \chi(T = 0)$, obtenue par l'approximation de champ moyen pour la boîte de Anderson chaotique, en appliquant la théorie des matrices aléatoires (RMT) à deux familles de systèmes chaotiques : l'ensemble orthogonal gaussien (GOE) et l'ensemble unitaire gaussien (GUE). Figure d'après [16].

du moment effectif local, qui n'est écranté en moyenne que pour une occupation électronique impaire. La ligne verticale en tirets indique la valeur correspondant au système bulk. Les paramètres suivants ont été utilisés pour le modèle de Anderson : largeur de distribution des niveaux $D = 3$, $E_d = -0.7$, $V = 0.6$, et $T = 0.005$. L'écart moyen entre niveaux est de $\Delta = 0.01$, et la température de Kondo dans la limite macroscopique vaut $T_K^{bulk} = 0.092$.

Conductance

Ici, nous considérons que le gros îlot mésoscopique est connecté (en plus de l'impureté Kondo) à deux électrodes (ou deux pointes STM), dénotées par $\alpha = L, R$. On étudie la conductance tunnel à travers le système dans le régime de la réponse linéaire. Le Hamiltonien du système complet se déduit du Hamiltonien de la boîte Kondo chaotique par $H \mapsto H + \sum_{k\sigma\alpha} \epsilon_k c_{k\sigma\alpha}^\dagger c_{k\sigma\alpha} + \sum_{ik\sigma\alpha} \left(t_{ik}^\alpha d_{i\sigma}^\dagger c_{k\sigma\alpha} + h.c. \right)$, où le second terme décrit les électrons dans les électrodes, et le troisième terme couple l'îlot aux électrodes.

4.4 Bosons esclaves et théorie des Matrices Aléatoires (systèmes chaotiques)

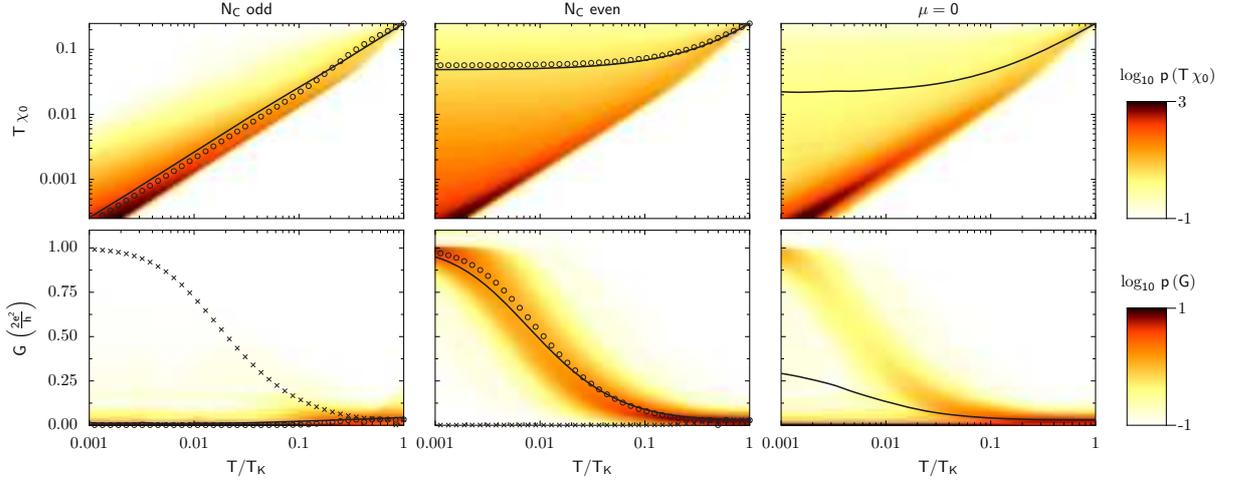


FIGURE 4.19 – Distributions du moment effectif local $T\chi(T)$ (en haut), et de la conductance G (en bas) pour N_C impaire (à gauche), N_C paire (au centre), et $\mu = 0$ (à droite), en fonction de T/T_K . Ici, la boîte Kondo a été étudiée dans l'approximation du champ moyen, en utilisant $\Delta/T_K^{\text{bulk}} = 2$. Le système idéalisé (i.e. sans chaos) est symbolisé par des cercles (\circ), les lignes solides indiquent les valeurs moyennes obtenues pour le système chaotique. Moment effectif local : une distribution étalée, obtenue pour N_C paire, contraste avec la distribution plus confinée dans le cas impaire. Cet effet de parité est directement lié à la formation du singulet Kondo. Conductance : la probabilité de distribution de conductance présente aussi de clairs effets de parité. La conductance en l'absence d'impureté Kondo (i.e. pour $J_K = T_K^{\text{bulk}} = 0$) est représentée par des croix (\times), montrant la signature très nette de l'effet Kondo : la parité effective du système est inversée à basse température, lorsque l'impureté se couple au bain. Figure d'après [13].

Connexion entre les régimes de liquides de Fermi $T > T_K$ et $T \ll T_K$

A haute température, l'impureté magnétique est découplée du bain électronique mésoscopique, i.e., du gros îlot chaotique. Celui-ci se comporte comme un liquide de Fermi mésoscopique, c'est à dire que ses excitations sont caractérisées par un spectre discret d'excitations d'électrons sans interaction, de niveaux d'énergie ϵ_i , et de fonctions d'onde locales $\phi_i(0)$ sur le site de l'impureté. A basse température, lorsque l'effet Kondo couple fortement l'impureté et le bain, l'approximation de champ moyen décrit aussi le système comme un liquide de Fermi mésoscopique, dont les excitations à un électron "habillé" sont caractérisées par des niveaux d'énergie effectifs λ_κ , et des fonctions d'ondes locales $\psi_\kappa(0)$. La figure 4.20 présente la distribution du décalage relatif des niveaux d'énergie, $S \in \left\{ \left| \frac{\lambda_\kappa - \epsilon_i}{\epsilon_{i+1} - \epsilon_i} \right|, \left| \frac{\lambda_\kappa - \epsilon_{i+1}}{\epsilon_{i+1} - \epsilon_i} \right| \right\}$, où λ_κ dénote le niveau d'énergie le plus proche de ϵ_i . Les paramètres suivants ont été utilisés pour le modèle de Anderson : largeur de distribution des niveaux $D = 3$, $E_d = -0.7$, 500 niveaux électroniques, et plus de 5000 configurations chaotiques aléatoires. La figure 4.21 présente la corrélation entre les fonctions d'ondes sans interaction et avec interaction,

$$\mathcal{C}_{i\kappa(i)} = \frac{\overline{|\phi_i(\mathbf{r})|^2 |\psi_{\kappa(i)}(\mathbf{r})|^2} - \overline{|\phi_i(\mathbf{r})|^2} \cdot \overline{|\psi_{\kappa(i)}(\mathbf{r})|^2}}{\sigma(|\phi_i(\mathbf{r})|^2) \sigma(|\psi_{\kappa(i)}(\mathbf{r})|^2)}. \quad (4.50)$$

La moyenne $\overline{(\cdot)}$ est prise sur toutes les réalisations, pour une position arbitraire $\mathbf{r} \neq 0$, et $\sigma(\cdot)$ dénote l'écart type de la quantité correspondante. On voit sur la figure 4.21 que

4.4 Bosons esclaves et théorie des Matrices Aléatoires (systèmes chaotiques)

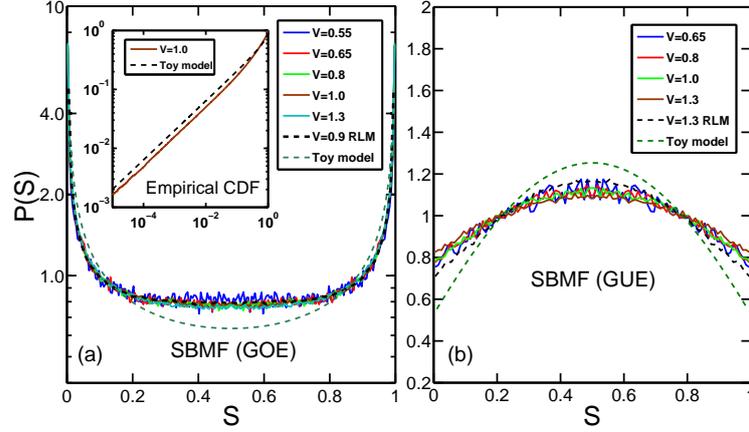


FIGURE 4.20 – Distribution du décalage relatif des niveaux d'énergie, S , obtenue par l'approximation de champ moyen pour la boîte de Anderson chaotique, en appliquant la théorie des matrices aléatoires (RMT) à deux familles de systèmes chaotiques : l'ensemble orthogonal gaussien (GOE) et l'ensemble unitaire gaussien (GUE). Ici, seuls les niveaux d'énergie situés à l'intérieur de la résonance Kondo ont été considérés, les niveaux de plus haute énergie demeurant inchangés dans la phase Kondo. Figure d'après [15, 16].

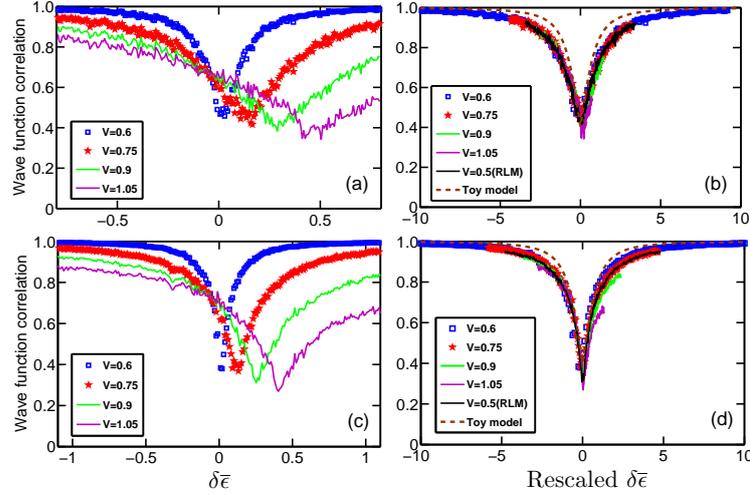


FIGURE 4.21 – Corrélation des fonctions d'ondes, $C_{iK(i)}$, calculée par l'approximation de champ moyen pour la boîte de Anderson chaotique. (a) GOE et (c) GUE, en fonction de la distance moyenne par rapport au milieu du spectre énergétique. (b) GOE et (d) GUE, en fonction de la distance moyenne par rapport au centre de la résonance Kondo. Figure d'après [15, 16].

la corrélation des fonctions d'ondes électroniques présente un creux, lié à la présence de l'impureté. La largeur énergétique de ce creux est de l'ordre de la largeur de la résonance Kondo. Ce résultat confirme l'idée intuitive selon laquelle l'effet Kondo n'implique que les états électroniques du bain dont les énergies sont inférieures à l'énergie de Kondo. On voit ainsi comment la résonance Kondo, concept émergé du modèle macroscopique, se manifeste au niveau mésoscopique par une redistribution en partie aléatoire des niveaux d'énergie et de leur fonctions d'ondes associées.

4.5 Conclusion, perspectives

4.4.5 Conclusion de la section boîte Kondo chaotique

En traitant l'interaction Kondo par l'approximation du champ moyen, il est possible de calculer numériquement l'ensemble des propriétés physiques, thermodynamiques, magnétiques, et de transport, d'une boîte Kondo mésoscopique, ce que ne permettent pas certaines des méthodes analytiques développées pour le problème Kondo macroscopique. De plus, l'efficacité de cette approximation par rapport à des méthodes numériques plus lourdes nous a permis de calculer les distributions statistiques et les corrélations caractéristiques des boîtes Kondo chaotiques en considérant un grand nombre de réalisations différentes. Tout en gardant à l'esprit certaines limitations de cette méthode approximative (notamment en matière de propriétés dynamiques ou hors d'équilibre), l'approximation du champ moyen se positionne naturellement parmi les premières approches à explorer pour toute étude théorique d'un système mésoscopique corrélé de ce type.

4.5 Conclusion, perspectives

Dans ce chapitre, ont été présentées des méthodes de champ moyen très générales que nous avons utilisées et contribué à développer. Les méthodes DMFT spécifiques que nous avons développées permettent d'étudier deux familles de modèles non périodiques définis sur des réseaux sous-jacents périodiques : des modèles avec interactions désordonnées d'une part (section 4.2), et des modèles d'alliages binaires corrélés d'autre part (section 4.3). Nous avons ainsi exploité la compatibilité entre DMFT et méthode des répliques dans un cas, et celle entre DMFT et approximation du potentiel cohérent (CPA) dans l'autre cas. Cette compatibilité résulte du caractère local de la self-énergie caractéristique de ces méthodes. Du point de vue de la physique, il est possible d'aller plus loin en combinant les aspects spécifiques à chacune de ces deux familles de systèmes. Ainsi, par exemple, une adaptation DMFT-répliques matricielle de ces méthodes offrirait un cadre théorique bien défini pour explorer les instabilités magnétiques, verre de spin ou d'ordre à longue portée, observées expérimentalement dans des alliages Kondo.

Une autre perspective possible, dans le domaine de la physique mésoscopique, consiste à considérer un système formé d'un grand nombre de boîtes Kondo mésoscopiques chaotiques connectées par une interaction de type RKKY ¹¹.

11. voir chapitre 2 et figure 2.10 pour la version macroscopique de ce problème

Chapitre 5

Perspectives

Dans ce mémoire, j'ai montré comment mes travaux ont permis de caractériser et d'étudier les états quantiques et les excitations de systèmes d'électrons corrélés. La diversité des approximations de champs moyens présentées, fermioniques ou bosoniques, statiques ou dynamiques, reflète celle des phénomènes physiques et des mécanismes microscopiques mis en jeu, ainsi que celle des systèmes expérimentaux : nano-structures mésoscopiques, matériaux macroscopiques métalliques, isolants ou supraconducteurs, éventuellement magnétiques, périodiques ou désordonnés.

Les perspectives de recherches théoriques vers lesquelles je souhaite m'orienter sont motivées par trois thématiques expérimentales :

- 1) Les propriétés des composés d'électrons f corrélés.
- 2) Les composés d'électrons corrélés présentant des phases quantiques non triviales, notamment modulées.
- 3) Les impuretés quantiques artificielles (îlots quantiques et atomes froids) vues comme simulateurs d'états quantiques non-triviaux.

Ces différents systèmes physiques ont comme point commun d'être caractérisés par de fortes corrélations électroniques et magnétiques. Les effets de corrélations seront traités par des méthodes de champ moyen ou par des approches fonctionnelles de type Ginzburg-Landau. Je propose de déterminer des diagrammes de phase et de calculer des propriétés de transport, magnétiques, thermodynamiques, ainsi que des densités d'états électroniques.

Une attention particulière sera portée sur le lien avec les expériences. Pour ces trois thématiques, des collaborations sont déjà établies avec des expérimentateurs de Grenoble et Paris. Le développement en cours, à Bordeaux, d'une nouvelle activité expérimentale liée aux atomes froids, pourra me permettre d'établir de nouveaux liens dans le cadre de la thématique 3.

Bibliographie

- [1] A. Le Duc, S. Burdin, G. Zwicknagl, and P. Fulde, en préparation.
- [2] S. Burdin, in *Properties and Applications of Thermoelectric Materials*, edited by V. Zlatic and A. Hewson (NATO Science for Peace and Security Series B (9), 2009) p. 325, (arXiv :0903.1942).
- [3] S. Burdin, A. Georges, and D.R. Grempel, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1048 (2000).
- [4] S. Burdin, D.R. Grempel, and A. Georges, *Phys. Rev. B* **66**, 045111 (2002).
- [5] S. Burdin, M. Grilli, and D.R. Grempel, *Phys. Rev. B* **67**, 121104 (2003).
- [6] S. Burdin and P. Fulde, *Phys. Rev. B* **76**, 104425 (2007).
- [7] S. Burdin and V. Zlatic, *Phys. Rev. B* **79**, 115139 (2009).
- [8] S. Burdin, N. Perkins, and C. Lacroix, *J. Phys. : Condens. Matter* **16**, S621 (2004).
- [9] C. Pépin, M.R. Norman, S. Burdin, and A. Ferraz, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 106601 (2011).
- [10] C. Thomas, S. Burdin, A. Ferraz, and C. Pépin, en préparation.
- [11] L. Fritz, R.L. Doretto, S. Wessel, S. Wenzel, S. Burdin, and M. Vojta, *Phys. Rev. B* **83**, 174416 (2011).
- [12] S. Burdin, M. Grilli, and D.R. Grempel, *Phys. Rev. B* **75**, 224423 (2007).
- [13] R. Bedrich, S. Burdin, and M. Hentschel, *Phys. Rev. B* **81**, 174406 (2010).
- [14] D. Ullmo, S. Burdin, D.E. Liu, and H.U. Baranger, *Pramana Journal of Physics* **77**, 769 (2011).
- [15] D. Liu, S. Burdin, H.U. Barranger, and D. Ullmo, *Eur. Phys. Lett.* **97**, 17006 (2012).
- [16] D. Liu, S. Burdin, D. Ullmo, and H.U. Barranger, *Phys. Rev. B* **85**, 155455 (2012).
- [17] A.C. Hewson, *The Kondo Problem to Heavy Fermions* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1993).
- [18] M.A. Ruderman and C. Kittel, *Phys. Rev.* **96**, 99 (1954).
- [19] T. Kasuya, *Prog. Theor. Phys.* **16**, 45 (1956).

BIBLIOGRAPHIE

- [20] K. Yosida, Phys. Rev. **106**, 893 (1957).
- [21] N.F. Mott, Proc. Phys. Soc. (London) **A62**, 416 (1949).
- [22] N.F. Mott, Rev. Mod. Phys. **40**, 677 (1968).
- [23] J. Hubbard, Proc. Roy. Soc. London **A276**, 238 (1963).
- [24] M.C. Gutzwiller, Phys. Rev. Lett. **10**, 159 (1963).
- [25] J. Kanamori, Prog. of Theor. Phys. **30**, 275 (1963).
- [26] W. Brinkmann and T.M. Rice, Phys. Rev. B **2**, 4302 (1970).
- [27] P.W. Anderson, Science **235**, 1196 (1987).
- [28] G. Zwicknagl and P. Fulde, J. Phys. : Condens. Matter **15**, S1911 (2003).
- [29] A. Le Duc, thèse de doctorat, Université de Dresde, Allemagne (2010).
- [30] S. Raymond, P. Piekarz, J.P. Sanchez, J. Serrano, M. Krisch, B. Janousova, J. Rebizant, N. Metoki, K. Kaneko, P.T. Jochym, A.M. Oles, and K. Parlinski, Phys. Rev. Lett. **96**, 237003 (2006).
- [31] G. Knebel, D. Aoki, and J. Flouquet, Comptes Rendus Physique **12** 542 (2011).
- [32] V.P. Mineev, Comptes Rendus Physique **12** 567 (2011).
- [33] D. Aoki, F. Hardy, A. Miyake, V. Taufour, T.D. Matsuda, and J. Flouquet, Comptes Rendus Physique **12** 573 (2011).
- [34] J.-P. Rueff, S. Raymond, A. Yaresko, D. Braithwaite, Ph. Leininger, G. Vanko, A. Huxley, J. Rebizant, and N. Sato, Phys. Rev. B **76**, 085113 (2007).
- [35] S.-I. Fujimori, Y. Saitoh, T. Okane, A. Fujimori, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto, and Y. Onuki, Nature Physics **3**, 618 - 622 (2007).
- [36] N.K. Sato, N. Aso, K. Miyake, R. Shiina, P. Thalmeier, G. Varelogiannis, C. Geibel, F. Steglich, P. Fulde, and T. Komatsubara, Nature **410**, 340 (2001).
- [37] W.J. Liu, M. Dolg, and P. Fulde, J. Chem. Phys. **107**, 3584 (1997).
- [38] G. Zwicknagl, A.N. Yaresko, and P. Fulde, Phys. Rev. B **65**, 081103 (2002).
- [39] F. Lecherman, A. Georges, G. Kotliar, and O. Parcollet, Phys. Rev. B **76**, 155102 (2007).
- [40] S.E. Barnes, J. Phys. F **6**, 1375 (1976).
- [41] G. Kotliar and A.E. Ruckenstein, Phys. Rev. Lett. **57**, 1362 (1986).
- [42] H. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 1391 (1997).

-
- [43] R. Fresard and G. Kotliar, Phys. Rev. B **56**, 12909 (1997).
- [44] P. Fulde, P. Thalmeier, and G. Zwicknagl, *Strongly Correlated Electrons*, Solid State Physics Vol. 60 (Elsevier, New York, 2006).
- [45] H.v. Löhneysen, A. Rosch, M. Vojta, and P. Wölfle, Rev. Mod. Phys. **79**, 1015 (2007).
- [46] V. Zlatič, R. Monnier, J. Freericks, and K.W. Becker, Phys. Rev. B **76**, 085122 (2007).
- [47] V. Zlatič, R. Monnier, and J. Freericks, Phys. Rev. B **78**, 045113 (2008).
- [48] Y.F. Yang, Z. Fisk, H.O. Lee, J.D. Thompson, and D. Pines, Nature **454**, 611 (2008).
- [49] S. Doniach, Physica B& C **91**, 231 (1977).
- [50] J.J. Joyce, A.J. Arko, J. Lawrence, P.C. Canfield, Z. Fisk, R.J. Bartlett, and J.D. Thompson, Phys Rev. Lett. **68**, 236 (1992).
- [51] J.J. Joyce, A.J. arko, A.B. Andrews, and R.I.R. Blyth, Phys. Rev. Lett. **72**, 1774 (1994).
- [52] L.H. Tjeng, S.-J. Oh, C.T. Chen, J.W. Allen, and D.L. Cox, Phys. Rev. Lett. **72**, 1775 (1994).
- [53] D. Malterre, M. Grioni, and Y. Baer, Adv. Phys. **45**, 299 (1996).
- [54] P. Nozières, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 4 (2005).
- [55] R. Mallik, E.V. Sampathkumaran, P.L. Paulose, J. Dumschat, and G. Wortmann, Phys. Rev. B **55**, 3627 (1997).
- [56] E.D. Mun, Y.S. Kwon, and M.H. Jung, Phys. Rev. B **67**, 033103 (2003).
- [57] J.M. Lawrence, P.S. Riseborough, C.H. Booth, J.L. Sarrao, J.D. Thompson, and R. Osborn, Phys. Rev. B **63**, 054427 (2001).
- [58] E.D. Bauer, C.H. Booth, J.M. Lawrence, M.F. Hundley, J.L. Sarrao, J.D. Thompson, P.S. Riseborough, and T. Ebihara, Phys. Rev. B **69**, 125102 (2004).
- [59] P. Nozières, Ann. Phys. (Paris) **10**, 19 (1985).
- [60] P. Nozières, Eur. Phys. J. B **6**, 447 (1998).
- [61] C. Lacroix, Solid State Commun. **54**, 991 (1985).
- [62] C. Lacroix, J. Magn. Magn. Mat. **60**, 145 (1986).
- [63] B. Coqblin, M.A. Gusmao, J.R. Iglesias, C. Lacroix, A. Ruppenthal, and A.S.D. Simoes, Physica B **281**, 50 (2000).
- [64] B. Coqblin, C. Lacroix, M.A. Gusmao, and J.R. Iglesias, Phys. Rev. B **67**, 064417 (2003).

BIBLIOGRAPHIE

- [65] M. Jarrell, H. Akhlaghpour, and Th. Pruschke, Phys. Rev. Lett. **70**, 1670 (1993).
- [66] M. Jarrell, Phys. Rev. B **51**, 7429 (1995).
- [67] A.N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, and J.K. Freericks, Phys. Rev. B **55**, R3332 (1997).
- [68] A.N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, and J.K. Freericks, Phys. Rev. Lett. **80**, 5168 (1998).
- [69] A.N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, Th. Pruschke, and J.K. Freericks, Phys. Rev. B **60**, 10782 (1999).
- [70] M. Jarrell and H.R. Krishnamurthy, Phys. Rev. B **63**, 125102 (2001).
- [71] A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M.J. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. **68**, 13 (1996).
- [72] W. Metzner and D. Vollhardt, Phys. Rev. Lett. **62**, 324 (1989).
- [73] C. Lacroix and M. Cyrot, Phys. Rev. B **20**, 1969 (1979).
- [74] P. Coleman, Phys. Rev. B **28**, 5255 (1983).
- [75] N. Read, D.M. Newns, and S. Doniach, Phys. Rev. B **30**, 3841 (1984).
- [76] B. Coqblin, and J.R. Schrieffer, Phys. Rev. **185**, 847 (1969).
- [77] T.A. Costi and N. Manini, J. Low Temp. Phys. **126**, 835 (2002).
- [78] Y. Utsumi, H. Sato, H. Kurihara, H. Maso, K. Hiraoka, K. Kojima, K. Tobimatsu, T. Ohkochi, S.-I. Fujimori, Y. Takeda, Y. Saitoh, K. Mimura, S. Ueda, Y. Yamashita, H. Yoshikawa, K. Kobayashi, T. Oguchi, K. Shimada, H. Namatame, and M. Taniguchi, Phys. Rev. B **84**, 115143 (2011).
- [79] R.K. Kaul and M. Vojta, Phys. Rev. B **75**, 132407 (2007).
- [80] J.A. Blackman, D.M. Esterling, and N.F. Berk, Phys. Rev. B **4**, 2412 (1971).
- [81] T. Senthil, S. Sachdev, and M. Vojta, Phys. Rev. Lett. **90**, 216403 (2003).
- [82] T. Senthil, M. Vojta, and S. Sachdev, Phys. Rev. B **69**, 035111 (2004).
- [83] C. Pépin, Phys. Rev. Lett. **98**, 206401 (2007).
- [84] I. Paul, C. Pépin, and M.R. Norman, Phys. Rev. Lett. **98**, 026402 (2007).
- [85] A.M. Sengupta and A. Georges, Phys. Rev. B **52**, 10295 (1995).
- [86] J.R. Iglesias, C. Lacroix, and B. Coqblin, Phys. Rev. B **56**, 11820 (1997).
- [87] S. Sachdev and J.W. Ye, Phys. Rev. Lett. **70**, 3339 (1993).
- [88] D. Withoff and E. Fradkin, Phys. Rev. Lett. **64**, 1835 (1990).
- [89] L. Fritz and M. Vojta, Phys. Rev. B **70**, 214427 (2004).

- [90] H. Weber and M. Vojta, Phys. Rev. B **77**, 125118 (2008).
- [91] S. Sachdev, *Quantum Phase Transitions* (Cambridge University Press, 1999).
- [92] P.W. Anderson, Mater. Res. Bull. **8**, 153 (1973).
- [93] P. Fazekas and P.W. Anderson, Phil. Mag. **30**, 432 (1974).
- [94] A. Aharony and B.A. Huberman, J. Phys. C : solid State Phys. **9**, L465 (1976).
- [95] P.W. Anderson, G. Baskaran, Z. Zou, and T. Hsu, Phys. Rev. Lett. **58**, 2790 (1987).
- [96] G. Baskaran, Z. Zou, and P.W. Anderson, Sol. St. Comm. **63**, 973 (1987).
- [97] T.M. Rice, S. Gopalan, and M. Sigrist, Europhys. Lett. **23**, 445 (1993).
- [98] P.A. Lee and X.G. Wen, Phys. Rev. Lett. **76**, 503 (1996).
- [99] P.A. Lee, N. Nagaosa, X.G. Wen, Rev. Mod. Phys. **78**, 17 (2006).
- [100] *Introduction to Frustrated Magnetism*, edited by C. Lacroix, P. Mendels, and F. Mila (Springer Series in Solid-State Sciences 164, Berlin 2011).
- [101] P. Chandra and B. Douçot, Phys. Rev. B **38**, 9335 (1988).
- [102] G. Misguich, B. Bernu, C. Lhuillier, and C. Waldtmann, Phys. Rev. Lett. **81** 1098 (1998).
- [103] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito, Phys. Rev. Lett. **91**, 107001 (2003).
- [104] Ch. Waldtmann, H.-U. Everts, B. Bernu, C. Lhuillier, P. Sindzingre, P. Lecheminant, and L. Pierre, EPJ B **2**, 501 (1998).
- [105] B. Canals and C. Lacroix, Phys. Rev. Lett. **80**, 2933 (1998).
- [106] P. Coleman, C. Pépin, Q.M. Si, R. Ramazashvili, J.Phys. Cond. Matt. **13**, R723 (2001).
- [107] X.G. Wen, Phys. Rev. B **44**, 2664 (1991).
- [108] X.G. Wen, Phys. Rev. B **65**, 165113 (2002).
- [109] S. Kondo, D.C. Johnston, C.A. Swenson, F. Borsa, A.V. Mahajan, L.L. Miller, T. Gu, A.I. Goldman, M.B. Maple, D.A. Gajewski, E.J. Freeman, N.R. Dilley, R.P. Dickey, J. Merrin, K. Kojima, G.M. Luke, Y.J. Uemura, O. Chmaissem, and J.D. Jorgensen, Phys. Rev. Lett. **78**, 3729 (1997).
- [110] O. Chmaissem, J.D. Jorgensen, S. Kondo, and D.C. Johnston, Phys. Rev. Lett. **79**, 4866 (1997).
- [111] V.I. Anisimov, M.A. Korotin, M. Zolfl, T. Pruschke, K. Le Hur, and T.M. Rice, Phys. Rev. Lett. **83** 364 (1999).

BIBLIOGRAPHIE

- [112] J. Matsuno, A. Fujimori, and L.F. Mattheis, *Phys. Rev. B* **60**, 1607 (1999).
- [113] D.J. Singh, P. Blaha, K. Schwarz, and I.I. Mazin, *Phys. Rev. B* **60**, 16359 (1999).
- [114] P. Fulde, A.N. Yaresko, A.A. Zvyagin, and Y. Grin, *Euro. Phys. Lett.* **54**, 779 (2001).
- [115] I.A. Nekrasov, Z.V. Pchelkina, G. Keller, T. Pruschke, K. Held, A. Krimmel, D. Vollhardt, and V.I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **67**, 085111 (2003).
- [116] R. Arita, K. Held, A.V. Lukoyanov, and V.I. Anisimov, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 166402 (2007).
- [117] V. Yushankhai, A. Yaresko, P. Fulde, and P. Thalmeier, *Phys. Rev. B* **76**, 085111 (2007).
- [118] C. Varma, *Phys. Rev. B* **60**, R6973 (1999).
- [119] C. Lacroix, *Can. J. Phys.* **79**, 1469 (2001).
- [120] S. Fujimoto, *Phys. Rev. B* **65**, 155108 (2002).
- [121] J. Hopkinson and P. Coleman, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 267201 (2002).
- [122] H. Kusunose, S. Yotsuhashi, and K. Miyake, *Phys. Rev. B* **62**, 4403 (2000).
- [123] M.S. Laad, L. Craco, and E. Müller-Hartmann, *Phys. Rev. B* **67**, 033105 (2003).
- [124] K. Hattori and H. Tsunetsugu, *Phys. Rev. B* **79**, 035115 (2009).
- [125] H. Tsunetsugu, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 1844 (2002).
- [126] Y. Yamashita and K. Ueda, *Phys. Rev. B* **67**, 195107 (2003).
- [127] V. Yushankhai, T. Takimoto, and P. Thalmeier, *Phys. Rev. B* **82**, 085112 (2010).
- [128] A.P. Murani, A. Krimmel, J.R. Stewart, M. Smith, P. Strobel, A. Loidl, and A. Ibarra-Palos, *J. Phys. : Condens. Matter* **16** S607-S613 (2004).
- [129] T. Palstra, A. Menovsky, J. Berg, and A. Dirkmaat, *Phys. Rev. Lett.* (1985).
- [130] J.A. Mydosh and P.M. Oppeneer, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1301 (2011).
- [131] E. Hassinger, thèse de doctorat, Université de Grenoble (2010), manuscript disponible sur <http://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/53/37/32/PDF/ThesisEH0811.pdf>
- [132] A. Villaume, F. Bourdarot, E. Hassinger, S. Raymond, V. Taufour, D. Aoki, and J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **78**, 012504 (2008).
- [133] F.J. Ohkawa and H. Shimizu, *J. Phys. : Condens. Matter* **11**, L519 (1999).
- [134] P. Santini, *Phys. Rev. B* **57**, 5191 (1998).

- [135] A. Kiss and P. Fazekas, Phys. Rev. B **71**, 054415 (2005).
- [136] K. Hanzawa, J. Magn. Magn. Mater. **310**, E166 (2007).
- [137] K. Haule and G. Kotliar, Nature Physics **5**, 796 (2009).
- [138] A.V. Balatsky, A. Chantis, H.P. Dahal, D. Parker, and J.X. Zhu, Phys. Rev. B **79**, 214413 (2009).
- [139] F. Bourdarot, N. Martin, S. Raymond, L.-P. Regnault, D. Aoki, V. Taufour, and J. Flouquet, Phys. Rev. B **84**, 184430 (2011).
- [140] A.A. Abrikosov, L.P. Gorkov, and I.E. Dzyaloshinski, *Methods of Quantum Field Theory in Statistical Physics*, Dover Publications Inc, New York, 1963.
- [141] L.D. Landau, JETP **3**, 920 (1957).
- [142] D. Pines and P. Nozières, *Theory of Quantum Liquids* (W.A. Benjamin, New York, 1965).
- [143] C. Thomas, A. S. da Rosa Simoes, J.R. Iglesias, C. Lacroix, N.B. Perkins, and B. Coqblin, Phys. Rev. B **83**, 014415 (2011).
- [144] C.R. Wiebe, J.A. Janik, G.J. MacDougall, G.M. Luke, J.D. Garrett, H.D. Zhou, Y.J. Jo, L. Balicas, Y. Qiu, J.R.D. Copley, Z. Yamani, and W.J.L. Buyers, Nature Physics, **3**, 96 (2007).
- [145] S. Liang, B. Doucot, and P.W. Anderson, Phys. Rev. Lett. **61**, 365 (1988).
- [146] C. Broholm, J. K. Kjems, W. J. L. Buyers, P. Matthews, T. M. Palstra, A. A. Menovsky, and J. A. Mydosh, Phys. Rev. Lett. **58**, 1467 (1987).
- [147] H. Amitsuka, K. Matsuda, I. Kawasaki, K. Tenya, and M. Yokoyama, J. Magn. Magn. Mater. **310**, 214 (2007).
- [148] A.R. Schmidt, M.H. Hamidian, P. Wahl, F. Meier, A.V. Balatsky, J.D. Garrett, T.J. Williams, G.M. Luke, and J.C. Davis, Nature **465**, 570 (2010).
- [149] S. Sachdev, Nature Physics **4**, 173 (2008).
- [150] T. Giamarchi, Ch. Rugg, and O. Tchernyshyov, Nature Physics **4**, 198 (2008).
- [151] C. Rugg, N. Cavadini, A. Furrer, H.U. Gudel, K. Kramer, H. Mutka, A.K. Habicht, P. Vorderwisch, A. Wildes, Nature **423**, 62 (2003).
- [152] V.N. Glazkov, A.I. Smirnov, H. Tanaka, and A. Oosawa, Phys. Rev. B **69**, 184410 (2004).
- [153] A.K. Kolezhuk, V.N. Glazkov, H. Tanaka, and A. Oosawa, Phys. Rev. B **70**, 020403 (2004).

BIBLIOGRAPHIE

- [154] B. Grenier, Y. Inagaki, L.P. Regnault, A. Wildes, T. Asano, Y. Ajiro, E. Lhotel, C. Paulsen, T. Ziman, and J.P. Boucher, Phys. Rev. Lett. **92**, 177202 (2004).
- [155] I. Affleck, Phys. Rev. B **43**, 3215 (1991).
- [156] A.V. Chubukov, JETP Lett. **49**, 129 (1989).
- [157] S. Sachdev and R.N. Bhatt, Phys. Rev. B **41**, 9323 (1990).
- [158] M. Matsumoto, B. Normand, T.M. Rice, and M. Sigrist, Phys. Rev. Lett. **89**, 077203 (2002).
- [159] V.N. Kotov, O. Sushkov, Weihong Zheng, and J. Oitmaa, Phys. Rev. Lett. **80**, 5790 (1998).
- [160] T. Sommer, M. Vojta, and K.W. Becker, Eur. Phys. J. B **23**, 329 (2001).
- [161] M. Troyer, M. Imada, and K. Ueda, J. Phys. Soc. Jpn **66**, 2957 (1997).
- [162] M. Matsumoto, C. Yasuda, S. Todo, and H. Takayama, Phys. Rev. B **65**, 014407 (2001).
- [163] L.W. Wang, K.S.D. Beach, and A.W. Sandvik, Phys. Rev. B **73**, 014431 (2006).
- [164] A.F. Albuquerque, M. Troyer, and J. Oitmaa, Phys. Rev. B **78**, 132402 (2008).
- [165] S. Wenzel and W. Janke, Phys. Rev. B **79**, 014410 (2009).
- [166] S. Wenzel, PhD thesis, University of Leipzig, 2009.
- [167] F.-J. Jiang and U. Gerber, J. Stat. Mech. : Theor. Exp., P09016 (2009).
- [168] Y.Q. Li, M. Ma, D.N. Shi, and F.C. Zhang, Phys. Rev. Lett. **81**, 3528 (1998).
- [169] S. Wenzel, L. Bogacz, and W. Janke, Phys. Rev. Lett. **101**, 127202 (2008).
- [170] S. Burdin, non publié.
- [171] J.K. Freericks and V. Zlatič, Rev. Mod. Phys. **75**, 1333 (2003).
- [172] T. Maier, M. Jarrell, T. Pruschke, and M.H. Hettler, Rev. Mod. Phys. **77**, 1027 (2005).
- [173] G. Kotliar, S.Y. Savrasov, K. Haule, V.S. Oudovenko, O. Parcollet, and C.A. Marianetti, Rev. Mod. Phys. **78**, 865 (2006).
- [174] J.H. Shim, K. Haule, and G. Kotliar, Nature **446**, 513 (2007).
- [175] M. Mezard, G. Parisi, and M. Virasoro, *Spin glass theory and beyond*, World Scientific Lecture Notes in Physics Vol. 9, Wolrd Scientific.
- [176] D. Sherrington and S. Kirkpatrick, Phys. Rev. Lett. **35**, 1792 (1975).

- [177] A.J. Bray and M.A. Moore, J. Phys. C **13**, L655 (1980).
- [178] J.L. Smith and Q. Si, Phys. Rev. B **61**, 5184 (2000).
- [179] R. Chitra and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **84**, 3678 (2000).
- [180] M.J. Rozenberg and D.R. Grempel, Phys. Rev. Lett. **81** 2550 (1998).
- [181] D.R. Grempel and M.J. Rozenberg, Phys. Rev. B **60** 4702 (1999).
- [182] A.A. Pastor and V. Dobrosavljevic, Phys. Rev. Lett. **83** 4642 (1999).
- [183] A. Georges, Annalen der Physik 523, No.8-9, 672 (2011).
- [184] K. Haule, A. Rosch, J. Kroha, and P. Wölfle, Phys. Rev. B **68**, 155119 (2003).
- [185] D.R. Grempel and M.J. Rozenberg, Phys. Rev. Lett. **80**, 389 (1998).
- [186] A.P. Pikul, U. Stockert, A. Steppke, T. Cichorek, S. Hartmann, N. Caroca-Canales, N. Oeschler, M. Brando, C. Geibel, and F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **108**, 066405 (2012).
- [187] F.C. Ragel, P.D. du Plessis, and A.M. Strydom, J. Phys. : Condens. Matter **21**, 046008 (2009).
- [188] J. Yamaguchi, A. Sekiyama, S. Imada, H. Fujiwara, M. Yano, T. Miyamachi, G. Funabashi, M. Obara, A. Higashiya, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, F. Iga, T. Takabatake, and S. Suga, Phys. Rev. B **79**, 125121 (2009).
- [189] U. Kohler, N. Oeschler, F. Steglich, S. Maquilon, and Z. Fisk, Phys. Rev. B **77**, 104412 (2008).
- [190] D.M. Esterling, Phys. Rev. B **12**, 1596 (1975).
- [191] P. Fulde, *Electron Correlations in Molecules and Solids*, Springer Series in Solid State Sciences, 3rd enlarged ed. (Springer-Verlag, Berlin, 1995).
- [192] P. Soven, Phys. Rev. **156**, 1017 (1967).
- [193] D.W. Taylor, Phys. Rev. **156**, 1017 (1967).
- [194] B. Velicky, S. Kirkpatrick, and H. Ehrenreich, Phys. Rev. **175**, 747 (1968).
- [195] Y. Kakehashi, Phys. Rev. B **66**, 104428 (2002).
- [196] W.B. Thimm, J. Kroha, and J. von Delft, Phys. Rev. Lett. **82**, 2143 (1999).
- [197] D. Goldhaber-Gordon, H. Shtrikman, D. Mahalu, D. Abusch-Magder, U. Meirav, and M.A. Kastner, Nature **391**, 156 (1998).
- [198] S.M. Cronenwett, T.H. Oosterkamp, and L.P. Kouwenhoven, Science **281**, 540 (1998).
- [199] K. Le Hur, P. Simon, and L. Borda, Phys. Rev. B **69**, 045326 (2004).

BIBLIOGRAPHIE

- [200] R.K. Kaul, G. Zarand, S. Chandrasekharan, D. Ullmo, and H.U. Baranger, Phys. Rev. Lett. **96**, 176802 (2006).
- [201] O. Bohigas, in *Chaos and Quantum Physics*, édité par M.J. Giannoni, A. Voros, et J. Zinn-Justin (North-Holland, Amsterdam, 1991) pp. 87-199.
- [202] N. Andrei, Phys. Rev. Lett. **45**, 379 (1980).
- [203] P.B. Wiegmann, Sov. Phys. JETP Lett. **31**, 392 (1980).
- [204] K.G. Wilson, Rev. Mod. Phys. **47**, 773 (1975).
- [205] P. Nozières, *The Kondo Problem : Fancy mathematical techniques versus simple physical ideas*, vol. **5** (North-Holland, Amsterdam, 1974).
- [206] P.S. Cornaglia and C.A. Balseiro, Physica B **320**, 362 (2002).
- [207] G. Franzese, R. Raimondi, and R. Fazio, Europhys. Lett. **62**, 264 (2003).
- [208] P. Simon and I. Affleck, Phys. Rev. B **68**, 115304 (2003).
- [209] R. Bedrich, S. Burdin, and M. Hentschel, non publié.
- [210] E. Miranda and V. Dobrosavljević, Phys. rev. Lett. **86**, 264 (2001).
- [211] S. Kettmann and E.R. Mucciolo, Phys. Rev. B **75**, 184407 (2007).
- [212] P.S. Cornaglia, D.R. Grempel, C.A. Balseiro, Phys. Rev. Lett. **96**, 117209 (2006).
- [213] M. Kim, M. Bennett, and M. Aronson, Phys. Rev. B **77** (2008).
- [214] Bernhard B.H., B. Coqblin, and C. Lacroix, Phys. Rev. B **83**, 214427 (2011).
- [215] H. Kubo, K. Umeo, K. Katoh, A. Ochiai, T. Takabatake, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 064715 (2010).
- [216] J.P. Brison and A. Bouzdine, comptes rendus physique **12**, 433 (2011).
- [217] V.H. Dao, S. Burdin, and A. Buzdin, Phys. Rev. B **84**, 134503 (2011).