

ÉLECTRONS FORTEMENT CORRÉLÉS ET MODÈLE DE HUBBARD: DIAGRAMME DE PHASE D'UN CONDUCTEUR ORGANIQUE

Par Marc Chamberland
3B
#3490537

Rapport de stage soumis au
Dr Serge Desgreniers
en réponse aux exigences partielles
pour le cours
PHY 4902 Rapport de stage coop IV

Département de physique
Faculté des sciences
Université d'Ottawa
Vendredi, 1^{er} septembre 2006

TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ	iii
INTRODUCTION	1
APERÇU DU PROBLÈME	2
Électrons fortement corrélés	2
Conducteurs organiques	3
APPROCHE THÉORIQUE	4
Deuxième quantification	4
Modèle de Hubbard.....	5
CDMFT	6
CALCUL DU DIAGRAMME DE PHASE	8
Méthode	8
Résultats.....	9
COMPARAISON DE CODES	11
CONCLUSION	12
ANNEXES	13
RÉFÉRENCES	16

RÉSUMÉ

Lors de mon dernier stage coopératif, je me suis joint à l'équipe d'André-Marie Tremblay, professeur titulaire d'une chaire de recherche du Canada en physique de la matière condensée à l'Université de Sherbrooke. Ce groupe de recherche s'intéresse à l'étude théorique des systèmes d'électrons fortement corrélés et particulièrement des supraconducteurs à haute température critique.

En tant que stagiaire coop, j'ai collaboré au calcul du diagramme de phase d'un conducteur organique. J'ai également comparé les résultats de deux codes de CDMFT (Cellular Dynamical Mean Field Theory) différents. Ce rapport présente une brève introduction du modèle et de la théorie utilisés, ainsi que les tâches principales accomplies durant l'été.

INTRODUCTION

Malgré les succès retentissants des théories conventionnelles de la physique de l'état solide, ces dernières se heurtent parfois à des difficultés. Ainsi, les systèmes d'électrons fortement corrélés donnent lieu à des phénomènes hors du commun qui découlent de leurs étonnantes propriétés électroniques et magnétiques. La supraconductivité à haute température critique et les transitions métal-isolant, dites de Mott, font partie de ces phénomènes singuliers. Conséquemment, de nouveaux outils théoriques doivent être utilisés afin de sonder la physique de ces systèmes.

C'est dans ce contexte que j'ai entrepris de calculer le diagramme de phase d'un conducteur organique à l'aide de la CDMFT (Cellular Dynamical Mean Field Theory) pour le modèle de Hubbard à demi-remplissage sur un réseau carré lors de mon dernier stage coop. Ce document propose donc d'introduire très brièvement la problématique à l'étude, de présenter les différentes tâches accomplies et de mentionner quelques résultats obtenus.

APERÇU DU PROBLÈME

Électrons fortement corrélés

Les cours d'introduction à la physique de l'état solide couvrent quelques modèles conventionnels les mieux connus, tels que le gaz d'électrons libres et le modèle d'électrons presque libres où on néglige presque complètement les interactions entre les électrons. Or la forme et la taille des orbitales des atomes influencent grandement la force des interactions. Par exemple, les orbitales de type d et f peuvent exhiber de très fortes corrélations entre les électrons. La nature de ces fortes interactions obligent à considérer la probabilité des électrons de passer d'un site à un autre sur le réseau cristallin du matériau. On doit aussi tenir compte des répulsions coulombiennes établies entre les électrons eux-mêmes. C'est ainsi que l'on parle de systèmes d'électrons fortement corrélés. Ces matériaux quantiques peuvent exhiber tous les états électroniques de la matière: métal, isolant, supraconducteur, ondes de densité de spin, etc. L'étude de cette riche physique sous-jacente trébuche malheureusement sur la complexité de cette dernière puisque plusieurs phénomènes entrent en compétition et sont difficiles à dissocier.

Notons également que les supraconducteurs à haute température critique, découverts en 1986, figurent parmi les systèmes fortement corrélés les plus populaires et mystérieux. En effet, les mécanismes de cette supraconductivité qui apparaît à des températures de transition plus élevées que 77 K (la température de l'azote liquide) échappent encore à la compréhension des théoriciens et demeurent l'un des grands défis de la physique contemporaine de l'état solide.

Conducteurs organiques

Les conducteurs organiques font partie des matériaux emblématiques des systèmes d'électrons fortement corrélés. Ce sont de véritables édifices cristallins formés de larges molécules et comportant des porteurs de charge. On étudie particulièrement les conducteurs de basse dimensionalité, i.e. des matériaux dans lesquels la conductivité est principalement limitée selon un axe (quasi-unidimensionnel) ou selon un plan (quasi-bidimensionnel). La conductivité n'est cependant pas complètement nulle dans les autres directions, d'où l'appellation quasi-uni ou quasi-bidimensionnel. Les conducteurs organiques possèdent des diagrammes de phase très riches qui partagent plusieurs caractéristiques avec d'autres systèmes fortement corrélés, comme les supraconducteurs à haute température critique. L'étude des conducteurs organiques et de leur diagramme de phase nous permet donc d'approfondir la supraconductivité à haute température critique et vice versa.

APPROCHE THÉORIQUE

Deuxième quantification

La deuxième quantification est une notation de la mécanique quantique qui permet de représenter aisément des systèmes contenant un très grand nombre de particules. Elle utilise des opérateurs de création et d'annihilation de particules pour exprimer l'hamiltonien du système. Par exemple, imaginons un réseau constitué de deux sites: 1 et 2. En ignorant le spin, chaque site ne peut contenir qu'un seul électron selon le principe d'exclusion de Pauli. L'état dans lequel le site 1 est occupé et le site 2 est libre est représenté par $|1, 0\rangle$. Ainsi, en faisant agir l'opérateur de création du site 2 c_2^\dagger sur cet état, on obtient:

$$c_2^\dagger |1, 0\rangle = |1, 1\rangle$$

où le site 2 est désormais occupé. De même, en faisant agir un opérateur d'annihilation sur le site 1, on aurait obtenu un état où les deux sites sont vides. On définit également l'opérateur de nombre $n = c^\dagger c$ qui compte le nombre d'électrons sur un site donné. Finalement, notons que les opérateurs de création et d'annihilation obéissent à des lois d'anticommutation, i.e.:

$$\{c_i, c_j^\dagger\} = \delta_{i,j}$$

$$\{c_i, c_j\} = 0$$

$$\{c_i^\dagger, c_j^\dagger\} = 0$$

où on définit l'anticommutateur de deux opérateurs comme $\{c, c^\dagger\} = cc^\dagger + c^\dagger c$. Ces relations découlent directement du principe d'exclusion de Pauli qui exigent que la fonction d'onde soit antisymétrique lorsque deux électrons sont échangés de position. Ces relations se vérifient aisément en représentation matricielle. Notons aussi que l'on peut inclure un indice de spin à ces opérateurs et relations.

Modèle de Hubbard

Le modèle de Hubbard est le modèle standard le plus simple pour décrire les interactions de fermions, normalement des électrons, sur un réseau. Selon ce modèle, les électrons interagissent entre eux seulement lorsqu'ils sont placés sur le même site. Dans ce cas, ils possèdent donc des spins opposés. Autrement, les électrons peuvent sauter d'un site à l'autre. Par ailleurs, le modèle de Hubbard permet de décrire les transitions de phase entre métal et isolant. Effectivement, la compétition entre le mouvement des électrons et leur répulsion coulombienne détermine le caractère métallique ou isolant du matériau.

En seconde quantification, l'hamiltonien de Hubbard s'écrit de la façon suivante:

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} (c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} + c_{j,\sigma}^\dagger c_{i,\sigma}) + U \sum_i n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow}$$

Le premier terme correspond à l'énergie cinétique. Elle se fait sur des sites $\langle i,j \rangle$ qui sont voisins immédiats. Le terme $c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma}$ représente la destruction d'un électron de spin σ sur un site j et la création d'un autre électron de spin σ sur le site i . Bref, cela représente un saut d'un site à un autre. Le paramètre t est l'amplitude de saut, i.e. la probabilité pour que ce saut se produise. Il est également possible de considérer des sauts entre seconds voisins. Le paramètre t' est couramment utilisé dans ce cas.

Le second terme dans l'hamiltonien correspond pour sa part à l'énergie potentielle de répulsion électrostatique. Pour chaque site sur lequel se trouve à la fois un électron de spin up et un électron de spin down, une énergie U est ajoutée à l'hamiltonien.

À ces deux termes, on ajoute parfois un terme qui fait intervenir le potentiel chimique μ et qui contrôle le remplissage du système. Le remplissage correspond à la densité d'électrons dans le système. Lorsque le remplissage vaut 1, i.e. un seul électron par site, on dit que le modèle est à demi-rempli puisque chaque site ne peut accueillir qu'un maximum de deux électrons.

Le modèle de Hubbard peut être étudié à l'aide de différentes techniques comme des théories de champ moyen, des méthodes numériques, des simulations Monte Carlo quantiques, etc.

CDMFT

Les systèmes constitués d'un très grand nombre de particules, parfois appelés systèmes à N corps, présentent une grande difficulté à résoudre de façon exacte. Le problème survient dans le traitement des différentes combinaisons des termes d'interaction dans l'hamiltonien. Les théories de champ moyen permettent de surmonter cette difficulté en remplaçant toutes les interactions agissant sur une particule par une seule interaction opérante i.e. par un "champ moyen". Dans le cas qui nous intéresse, une théorie dérivée de la théorie de champ moyen (plus précisément, de la théorie de champ moyen dynamique) a été utilisée dans l'étude du modèle de Hubbard: la théorie de champ moyen dynamique cellulaire ou CDMFT. Les détails de cette théorie dépassent très largement les limites de ce rapport. Il suffit de mentionner que le réseau infini sur lequel on travaille est divisé en amas

identiques composés de N_c sites. On se concentre sur un amas tandis que les autres sont remplacés par un "bain" d'électrons sans interaction qui contient un certain nombre de sites. En spécifiant certains paramètres, tels que l'énergie potentielle U du réseau, le paramètre de saut, le potentiel chimique, etc., la CDMFT nous permet de calculer les propriétés de l'état correspondant, e.g. la densité d'électrons, l'énergie cinétique du réseau, le paramètre d'ordre supraconducteur (lorsqu'il y a lieu), etc.

CALCUL DU DIAGRAMME DE PHASE

Méthode

L'un des buts principaux de mon stage au sein de l'équipe du Dr Tremblay était de calculer le diagramme de phase d'un conducteur organique pour le modèle de Hubbard bidimensionnel à demi-remplissage sur un réseau carré 2×2 avec 8 sites de bain, dans l'état normal i.e. sans supraconductivité ni antiferromagnétisme.

À cet effet, j'ai utilisé le code de CDMFT écrit par M. Bumsoo Kyung, membre du groupe de recherche. Les calculs étaient lancés sur des grappes de calcul du Centre de calcul scientifique de l'Université de Sherbrooke. L'utilisation de ce code ne demandait que de spécifier les paramètres du réseau, notamment l'énergie potentielle U , le potentiel chimique μ et le paramètre de saut aux seconds voisins t' (le paramètre de saut aux voisins immédiats t avait une valeur de 1).

Pour explorer l'espace de phase, il suffisait de varier les paramètres U et t' . Or puisque l'étude du diagramme se faisait au demi-remplissage, ma tâche principale était de déterminer, pour U et t' donnés, la valeur du potentiel chimique μ correspondant au demi-remplissage, i.e. à la densité d'électrons égale à 1. Je me suis concentré sur la région $U = 5$ à 10 par saut de 0.25 et $t' = 0$ à -1 par saut de -0.1 . Pour un couple U et t' donné, différentes valeurs du potentiel chimique étaient utilisées. Lorsque la densité obtenue variait de façon plus ou moins linéaire, il suffisait de faire une interpolation linéaire pour trouver la valeur du potentiel chimique au demi-remplissage. Normalement, cette situation indiquait que l'on se trouvait dans une phase métallique. Si la densité obtenue à l'aide du potentiel interpolé n'arrivait pas exactement à 1 (du moins, à 3 ou 4 chiffres significatifs près), une seconde

interpolation était faite à partir du résultat précédent et ainsi de suite. A fortiori, il aurait été utile de programmer cette partie de la démarche directement dans le code, mais le temps ne nous a pas permis d'explorer cette possibilité.

De plus, lors du passage de la phase métallique à la phase isolante, la densité ne variait plus linéairement près du demi-remplissage. En effet, elle frappait un plateau et sa valeur demeurait constante pour une plus ou moins large plage de valeurs du potentiel chimique. Le potentiel chimique à utiliser dans ces situations correspondaient à la valeur au milieu du plateau.

Finalement, aux abords de certaines transitions, il était impossible d'obtenir une densité d'électrons égale à 1. Dans certains cas, la variation du potentiel chimique de seulement 0.0000001 faisait brusquement sauter la densité de 0.97 à 1.01. Ces instances révélèrent un état instable où se mélangeaient possiblement différentes phases.

Résultats

Les transitions observées étaient des transitions de métal à isolant. On les observait de deux façons différentes: par le graphe de la double occupation D en fonction de U/t et par le graphe du poids spectral $A(\mathbf{k}, \omega)$. Effectivement, toute variation drastique dans ces deux quantités était révélatrice d'un changement des propriétés du système. Signalons que la double occupation est un paramètre qui correspond à l'occupation d'un site par deux électrons. Le poids spectral par ailleurs contient l'information sur l'occupation d'un état d'onde plane $|\mathbf{k}\rangle$ et d'énergie ω . Plus précisément, en intégrant le poids spectral sur toutes les énergies, on obtient la distribution de quantité de mouvement $n(\mathbf{k})$. En faisant la somme sur tous les vecteurs d'onde, on obtient la densité d'états $D(\omega)$.

Pour les petites valeurs de t' , on observe une transition de métal à isolant continue, sans saut abrupt dans l'occupation double ou dans le poids spectral. Dans le cas de la double occupation, cela se voit au changement de la courbure (voir figure 1 en Annexes). Dans le graphe du poids spectral, la phase isolante est caractérisée par un gap centré sur la surface de Fermi correspondant à $\omega/t = 0$, tandis que la phase métallique ne présente pas cette caractéristique. Les valeurs de l'ordonnée correspondent aux sites dans la première zone de Brillouin du réseau. On voit que le poids spectral varie graduellement à mesure que U/t augmente (voir figure 2 en Annexes).

Or pour des valeurs de t' légèrement supérieures (par exemple, $t' = -0.6$), on observe une transition très abrupte, à la fois dans la double occupation et dans le poids spectral. La double occupation chute brusquement entre $U/t = 6.75$ et 7 (voir figure 3 en Annexes). Le poids spectral, quant à lui, est soudainement repoussé, laissant un gap caractéristique d'un isolant (voir figure 4 en Annexes). Ces caractéristiques sont normalement associées à des transitions dites de premier ordre.

Malheureusement, mon stage a pris fin avant de pousser plus loin notre étude du diagramme de phase. La version du code de CDMFT utilisée présupposait au départ une solution métallique. Il aurait été intéressant de partir d'une solution isolante. On aurait alors observé, selon toute vraisemblance, une courbe d'hystérèse associée à une transition de premier ordre dans le graphe de la double occupation.

COMPARAISON DE CODES

Mentionnons brièvement qu'une seconde tâche a également occupé une partie de mon temps lors de mon stage. Il s'agissait de comparer les résultats de deux codes de CDMFT différents. Le premier code était celui utilisé dans le calcul du diagramme de phase, écrit par Bumsoo Kyung. Le second code a été écrit par David Sénéchal, professeur au département de physique de l'Université de Sherbrooke.

Alors que les deux codes étaient en accord ($\sim 1\%$ d'écart) sur les propriétés telles que la densité, l'énergie cinétique du réseau et la double occupation pour les états normal et supraconducteur, une importante différence dans le paramètre d'ordre supraconducteur a été détectée. Le temps n'a pas permis de trouver la cause de cette anomalie.

Par ailleurs, l'analyse du poids spectral généré par les deux codes a révélé des oscillations anormales dans le graphe produit par le code de Dr Kyung et par une ancienne version du code de Dr Sénéchal. Or, la plus récente version du code de Dr Sénéchal, qui utilise la méthode de bandes de Lanczos dans les calculs préliminaires, ne présentait pas ce comportement.

CONCLUSION

Mon dernier stage coop m'a permis d'explorer de fascinants aspects de la physique du solide, notamment les systèmes d'électrons fortement corrélés. À cet égard, mon superviseur a pris grand soin de m'expliquer les bases théoriques des modèles utilisés en me donnant des références à lire. Il m'a aussi assigné des exercices afin de m'amener à comprendre intuitivement certains aspects du problème.

Cette préparation m'a permis de calculer une partie du diagramme de phase d'un conducteur organique pour le modèle de Hubbard à demi-remplissage sur un réseau carré. Une transition de premier ordre métal-isolant a été observée pour des valeurs suffisamment grandes du paramètre t' . Les défis théoriques restent encore d'expliquer les mécanismes intrinsèques de ces transitions.

Finalement, je désire remercier mon superviseur, Dr André-Marie Tremblay, de m'avoir donné la chance de contribuer à ses travaux et d'acquérir de l'expérience en recherche.

ANNEXES

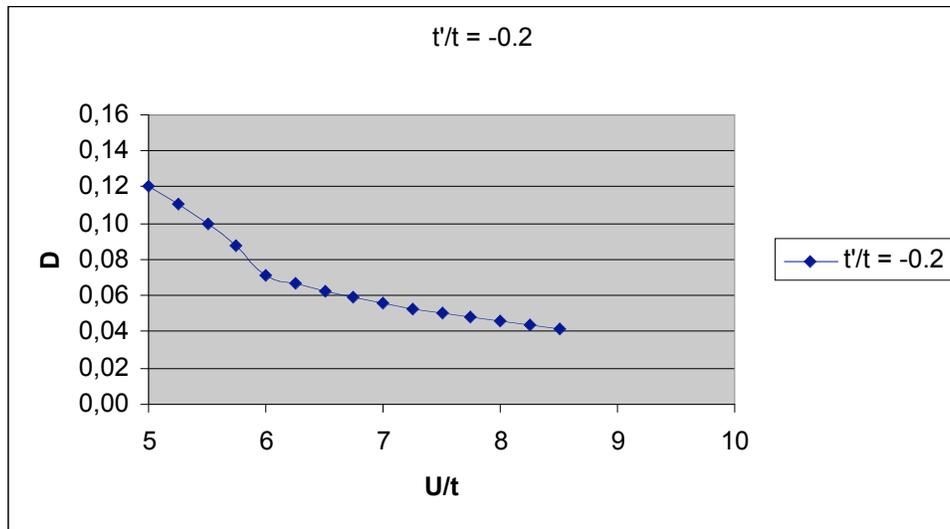


Figure 1 Graphe de la double occupation en fonction de U/t pour $t' = -0.2$

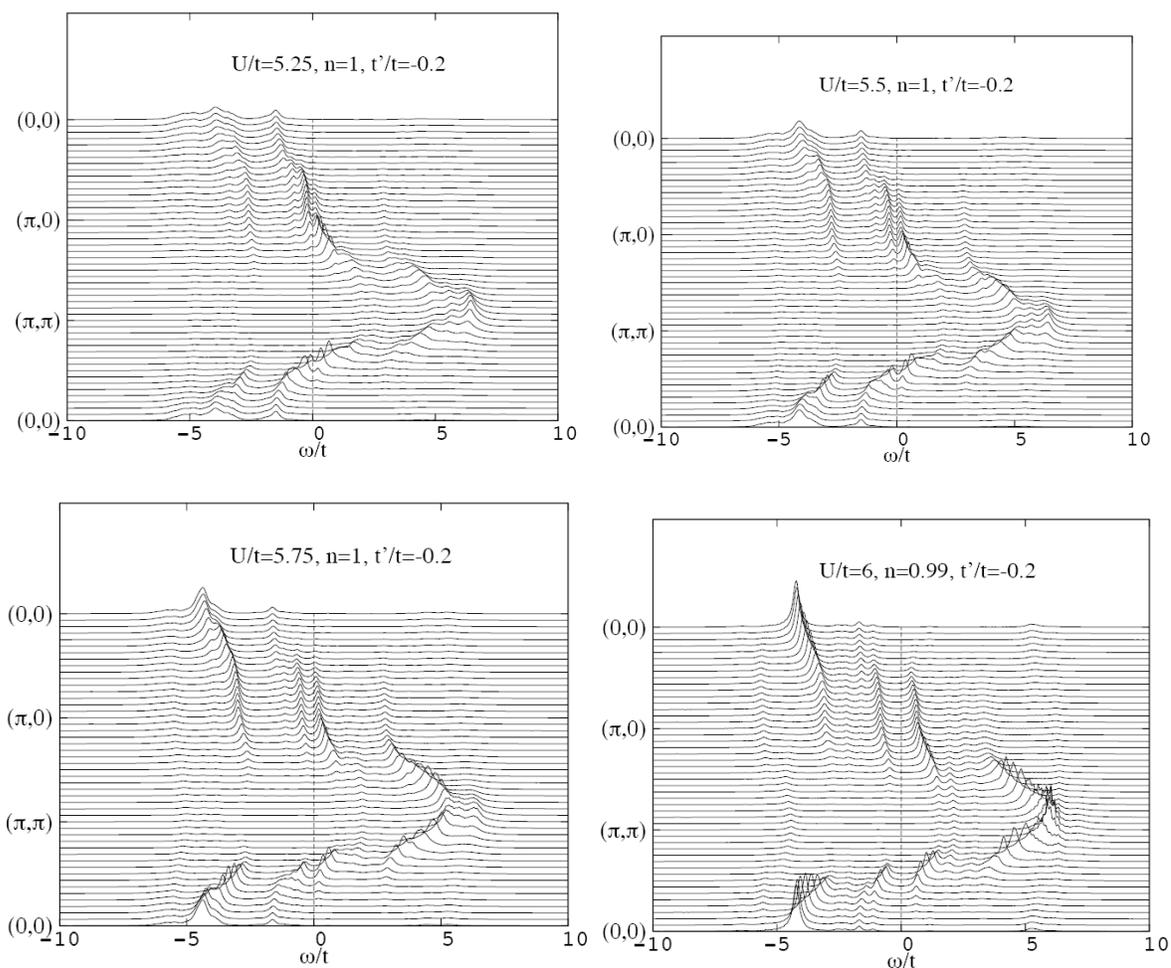


Figure 2 Graphes du poids spectral pour $t' = -0.2$: ouverture progressive du gap

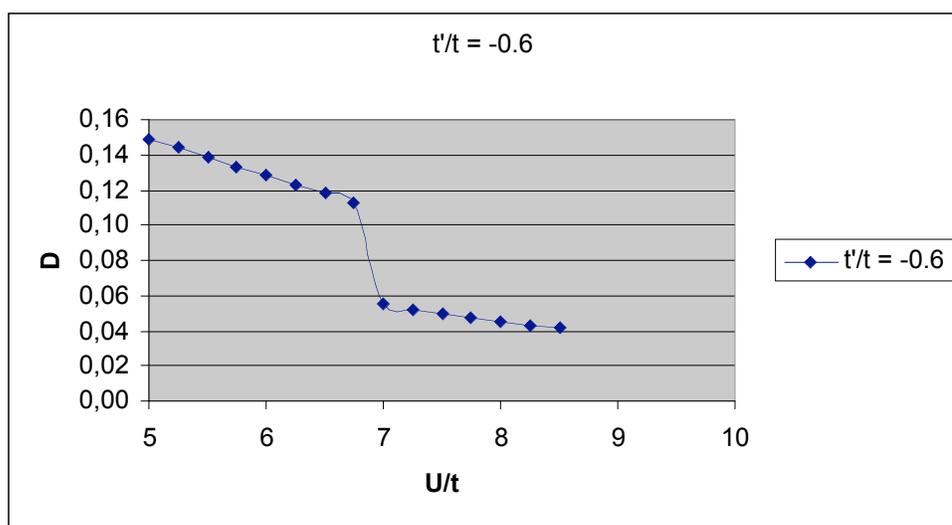


Figure 3 Graphe de la double occupation en fonction de U/t pour $t' = -0.6$

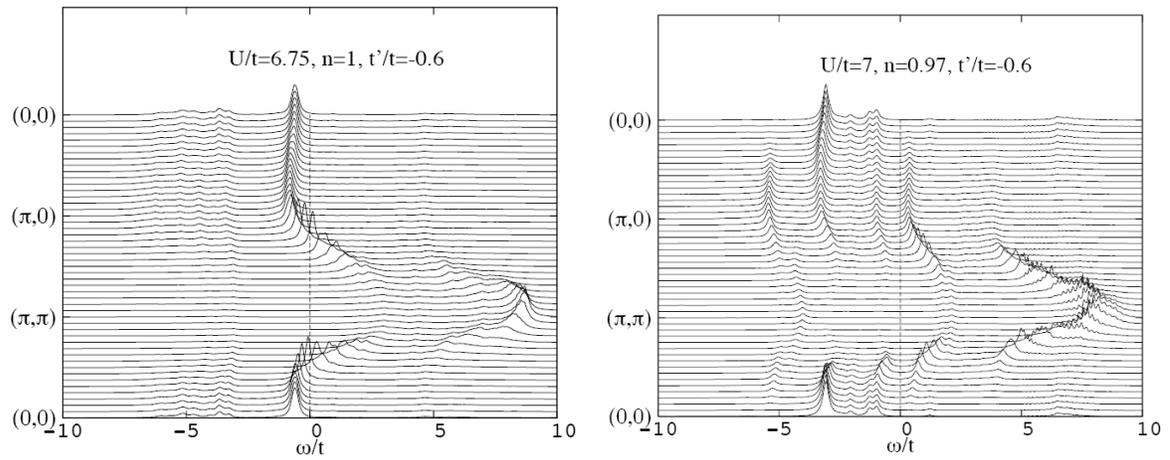


Figure 4 Graphes du poids spectral pour $t' = -0.6$: réarrangement massif observé

RÉFÉRENCES

- ANDERSON, P.W. *The Theory of Superconductivity in High-Tc Cuprates*, Princeton University Press, Princeton, 1997, 446 p.
- FOSSHEIM, Kristian et Asle SUDBO. *Superconductivity: physics and applications*, J. Wiley, Hoboken, 2004, 427 p.
- KYUNG, Bumsoo et André-Marie TREMBLAY. *Mott Transition, Antiferromagnetism, and d-wave Superconductivity in Two-Dimensional Organic Conductors*, cond-mat/0604377. (18 avril 2006)
- KYUNG, Bumsoo et al. *Quantum Monte Carlo Study of Strongly Correlated Electrons: Cellular Dynamical Mean-Field Theory*, cond-mat/0601271. (16 mai 2006)
- KYUNG, Bumsoo. *Novel Electronic Properties on a Triangular Lattice*, cond-mat/0608202. (10 août 2006)
- MARIANETTI, Chris A. *Electronic Correlations in Li_xCoO_2* , Ph.D. thesis, MIT, 2004, 123 p.
- SCALETAR, Richard T. *Elementary Introduction to the Hubbard Model*, [en ligne], [<http://leopard.physics.ucdavis.edu/rts/p210/hubbard7.pdf>]. (consulté le 26 août 2006)
- SHEAHEN, Thomas P. *Introduction to High-Temperature Superconductivity*, Plenum Press, New York, 1994, 580 p.

