

Supraconductivité dans des isolants de Mott dopés sur le réseau triangulaire anisotrope : un paradigme pour les supraconducteurs organiques

par

Charles-David Hébert

Mémoire présenté au département de physique
en vue de l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.)

FACULTÉ des SCIENCES
UNIVERSITÉ de SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 12 septembre 2023

Le 13 septembre 2023

le jury a accepté le mémoire de Monsieur Charles-David Hébert dans sa version finale.

Membres du jury

Professeur André-Marie Tremblay
Directeur de recherche
Département de physique

Professeur René Côté
Président-rapporteur
Département de physique

Professeur Patrick Fournier
Membre interne
Département de physique

À $(L-S)^2$ et Alexandra.
Nuit nuit les Choubis.

Sommaire

Dans ce mémoire, nous présentons des simulations numériques qui modélisent les supraconducteurs organiques en couches et plus particulièrement, leur diagramme de phases, leur rigidité superfluide et leur conductivité. Nous démontrons que les valeurs obtenues numériquement sont en accord avec l'expérience. Les relations entre la température critique, l'interaction et la rigidité superfluide sont analysées en lien avec les diagrammes de phases théoriques. Le pseudogap et la transition de Sordi sont de plus étudiés pour plusieurs valeurs de dopage, de frustration et d'interactions. La relation de Homes pour les supraconducteurs non conventionnels est explorée dans le cadre des modélisations physiques de ce présent mémoire.

Pour terminer, un logiciel de simulation numérique pour des interactions génériques électroniques et phononiques est développé dans le but de faire l'étude de la transition de Sordi sur des amas de tailles supérieures.

Remerciements

Un grand merci à André-Marie qui m'a accompagné durant mon parcours hautement non linéaire. Un merci particulier à mes amis qui ont vérifié et suggéré des corrections, Shaheen, Olivier ("We deliver L.A. Bite!") et Pierre-Olivier. Et surtout, merci à mes parents, mes amis et ma famille. Je suis également reconnaissant pour une bourse de recherche de deuxième cycle du Fonds de recherche du Québec – Nature et technologies (FRQNT).

Publications

- *Superconducting dome in doped quasi-two-dimensional organic Mott insulators : A paradigm for strongly correlated superconductivity*,
Charles-David Hébert, Patrick Sémon, and A.-M. S. Tremblay,
[Phys. Rev. B 92, 195112.](#)
Contribution : Les simulations, les analyses et l'écriture principale du manuscrit sont l'œuvre de l'auteur de ce mémoire.
- *Superfluid stiffness in cuprates : Effect of Mott transition and phase competition*,
O. Simard, **C.-D. Hébert**, A. Foley, D. Sénéchal, and A.-M. S. Tremblay,
[Phys. Rev. B 100, 094506.](#)
Contribution : Participation mineure à la rédaction du manuscrit. Participation importante dans l'élaboration des logiciels pour le calcul des quantités physiques tel la rigidité superfluide. Contribution dans les calculs de préimplémentation numériques.
- *Bad metallic transport in a cold atom Fermi-Hubbard system*,
PETER T. BROWN et al.,
[SCIENCE 6 Dec 2018 Vol 363, Issue 6425.](#)
Contribution : les calculs CT-QMC utilisés dans la comparaison à l'expérience proviennent des logiciels implémentés par l'auteur de ce mémoire.
- *Mott transition, Widom line, and pseudogap in the half-filled triangular lattice Hubbard model*,
P.-O. Downey, O. Gingras, J. Fournier, C.-D. Hébert, M. Charlebois, and A.-M. S. Tremblay,
[Phys. Rev. B 107, 125159.](#)
Contribution : les calculs CT-QMC utilisés proviennent des logiciels implémentés par l'auteur de ce mémoire.

Logiciels de simulations physiques

- *Continuous Time Multi-Orbital 2*,
[CTMO2](#), [Github](#), [C++](#)
Description : Un logiciel en C++ de haute performance de Monte Carlo en temps continu en expansion de l'interaction (CT-INT). Le logiciel prend en charge la DCA et la CDMFT sur plusieurs géométries d'amas. De plus, les phonons sont aussi pris en compte selon la modélisation de Holstein. Le solveur d'impureté prend en charge l'Hamiltonien décrit à l'[Eq. 2.84](#).
L'auteur de ce mémoire a écrit ces logiciels.
La documentation est disponible ici [doc ctmo2](#).
- *Continuous Time Tremblay Group*,
[CTTG6.0](#), [Github](#), [C++](#)
Description : Un logiciel en C++ de haute performance de Monte Carlo en temps continu en expansion de l'interaction (CT-INT + CT-AUX). Ce logiciel est l'ancêtre de *ctmo2*. Il inclut les optimisations (*submatrix updates*) de la référence [1] qui n'ont pas été reconduits dans *ctmo2*, car le gain est moindre qu'il y a plusieurs années et l'algorithme est plus instable. Ce logiciel est bien moins générique que *ctmo2*.
La version non terminée incluant la supraconductivité est disponible à l'URL suivante [CTTG5.4-SC](#), [Github](#), [C++](#) .
L'auteur de ce mémoire a écrit ces logiciels.
- *Maximum Entropy Analytical continuation and transport calculations*,
[mea](#), [Github](#), [Python mea.jl](#), [Github](#), [Julia](#)
Description : Les logiciels ici sont utilisés pour faire les prolongements analytiques des fonctions en fréquences de Matsubara pour les calculs de transports et de fonction spectrale. Les routines de périodisation et d'intégration s'y retrouvent également.
L'auteur de ce mémoire a écrit ces logiciels.
- *Ensemble de logiciels pour le Self learning Monte Carlo*,
[SLMC-cpp](#), [Github](#), [C++ slmc](#), [Github](#), [Python mlctmo](#), [Github](#), [Python pyctmo](#), [Github](#), [Python](#)
Description : Un ensemble de logiciels pour utiliser les configurations et poids du logiciel *ctmo2* dans le but de faire du self-learning Monte Carlo.
Ces logiciels ont été utilisés par des stagiaires et l'auteur principale, mais les résultats ne sont pas publiés. L'auteur de ce mémoire a écrit ces logiciels. Ces logiciels

ne sont pas des logiciels libres pour l'instant.

- *logiciel de statistiques*,
[statsfiles](#), [Github](#), [Python](#)

Description : Un logiciel python pour effectuer des statistiques sur les simulations produites par le logiciel *ctmo2*.

L'auteur de ce mémoire a écrit ces logiciels.

- *Petit tutoriel sur la dmft*,
[pydfmt](#), [Github](#), [Python](#)

Description : Un logiciel python sous forme de *Jupyter notebook* pour introduire la DMFT (avec un solveur Hubbard-I).

L'auteur de ce mémoire a écrit ces logiciels.

Nomenclature

| | |
|--------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| $\alpha_\kappa(s)$ | Fonction du spin auxiliaire (s) pour l'orbitale-spin κ |
| \hat{G} | chapeau : matrice dans l'espace des sites d'un amas |
| κ | $:= (\sigma, \nu)$ indice combiné de spin et d'orbitale |
| \mathcal{C} | Espace des configurations |
| ν | orbital |
| ρ | $:= (r, \nu)$ indice de supersite (indice combiné de site et d'orbitale) |
| σ | Spin fermionique demi-entier (Up/Down) |
| τ | temps imaginaire |
| $\hat{\mathbf{G}}$ | Gras + Majuscule : matrice dans l'espace κ et des sites d'un amas |
| \mathbf{G} | Gras : matrice dans l'espace κ |
| \mathbf{g} | lettre minuscule : vecteur au lieu d'une matrice (sauf pour deux exceptions, $\hat{\mu}$ et $\hat{\mathbf{t}}_{\text{Loc}}$ qui sont des matrices malgré le minuscule) |
| ξ | un type d'interaction |
| h | Constante de Plank |
| N_{Orb} | Nombre d'orbitales |
| N_{cl} | Nombre de sites dans un amas (cluster) |
| r | Site dans un amas/réseau |
| s | Spin auxiliaire de type Ising |
| CDMFT | Cluster Dynamical Mean Field Theory |
| CT-AUX | CT-QMC in the Auxiliary field expansion |
| CT-HYB | CT-QMC in the Hybridization expansion |
| CT-INT | CT-QMC in the Interaction expansion |
| CT-QMC | Continuous Time Quantum Monte Carlo |
| DCA | Dynamical Cluster Approximation |
| DMFT | Dynamical Mean Field Theory |
| MC | Monte Carlo |

Table des matières

| | |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------|
| Sommaire | iii |
| Remerciements | iv |
| Publications | v |
| Logiciels de Simulations Physique | vi |
| Notations | viii |
| 1 Introduction | 1 |
| 2 Théorie et Méthodologie | 6 |
| 2.1 Fonctions de Green | 6 |
| 2.2 Méthodes sur amas | 8 |
| 2.2.1 Modèles de Hubbard pour les conducteurs organiques | 8 |
| 2.2.2 CDMFT | 10 |
| 2.2.3 Restauration de l'invariance sous translation en CDMFT | 14 |
| 2.2.4 DCA | 15 |
| 2.3 Monte Carlo | 16 |
| 2.3.1 Rappel élémentaire de Monte Carlo : les grandes lignes | 16 |
| 2.3.2 L'algorithme de Metropolis-Hastings | 18 |
| 2.3.3 Monte Carlo quantique en temps continu (CT-QMC) | 20 |
| 2.3.4 Le problème de signe | 21 |
| 2.4 Implémentation multiorbital | 23 |
| 2.4.1 Introduction | 23 |
| 2.4.2 Notations | 23 |
| 2.4.3 Hamiltonien | 23 |
| 2.4.4 Processus de Markov Multiorbital avec interactions phononiques | 27 |
| 2.5 La rigidité superfluide | 29 |
| 2.6 Transport et conductivité électrique | 30 |
| 3 Résultats et discussion | 32 |
| 3.1 Superconducting dome in doped quasi-two-dimensional organic Mott insulators : A paradigm for strongly correlated superconductivity | 32 |
| 3.2 Résultats additionnels pour la phase normale : le pseudogap | 51 |

| | |
|---------------------------------------------------------------------|------------|
| 3.3 Loi de Homes sur le modèle triangulaire anisotrope | 58 |
| Conclusion | 59 |
| A Diagrammes de phases supplémentaires | 62 |
| B Self learning Monte Carlo et auto-apprentissage | 65 |
| C Documentation pour le logiciel <i>ctmo2</i> | 68 |
| D Susceptibilité magnétique uniforme et choix de l'amas | 87 |
| E La chaleur spécifique en CDMFT | 89 |
| F Prolongement analytique en CDMFT | 92 |
| G Cartographie entre CT-AUX et CT-INT | 93 |
| H Lien entre Submatrix et normal | 94 |
| I Densité d'états dans la phase supraconductrice | 95 |
| J Rigidité superfluide sur le réseau triangulaire anisotrope | 96 |
| J.1 Rigidité superfluide à demi remplissage | 96 |
| J.2 Rigidité superfluide à dopage fini | 98 |
| J.3 Rigidité superfluide selon la pression | 100 |
| Bibliographie | 103 |

Liste des tableaux

| | | |
|-----|--------------------------------------------------------------------------|----|
| G.1 | Valeur de la fonction auxiliaire pour le développement CT-INT ou CT-AUX. | 93 |
|-----|--------------------------------------------------------------------------|----|

Table des figures

| | | |
|-----|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 1.1 | i.) Diagramme de phase pour le composé organique κ -(ET) ₂ Cu ₂ (CN) ₃ . Figure tirée de [21]. ii.) Diagramme de phase pour le composé organique κ -(ET) ₂ Cu[N(CN) ₂]Cl . Figure tirée de [22]. iii.) (a) Description schématique de la composition générique des composés κ -(ET) ₂ X et (b) de la modélisation effective sur le réseau triangulaire qui en découle. (c) Le composé dopé en trous κ -(ET) ₄ Hg _{2.89} Br ₈ . Figure tirée de [14]. | 4 |
| 2.1 | Schématisation du partitionnement du réseau en amas en CDMFT. Dans le texte, les vecteurs positions dans l'espace réel sont notés par la lettre r (x dans la présente figure). Figure tirée de [32]. | 10 |
| 3.1 | Densité d'états à température finie pour le modèle triangulaire anisotrope pour plusieurs dopages calculés en CDMFT dans la phase normale paramagnétique. (a) Densité d'états pour une valeur de dopage en trou de 1%. Nous observons une formation d'un pseudogap avec l'augmentation de la valeur de l'interaction. Cette observation est compatible avec la traversée de la transition entre un métal conventionnel et un mauvais métal continuement connecté à l'isolant de Mott à demi-remplissage. (b) Densité d'états à demi remplissage : la formation du gap de Mott est visible subitement lorsque la transition métal-isolant est franchie. (c) Densité d'états pour une valeur de dopage de 1% en électrons. Les mêmes observations qu'en a s'appliquent ici également. (d) Densité d'états pour une valeur de dopage de 2% en électrons. Les mêmes observations qu'en a s'appliquent ici également. | 52 |

3.2 **(a)** Conductivité électrique normalisée pour le réseau triangulaire anisotrope ($t' = 0.4t$) calculée en CDMFT à température finie selon l'Eq. 2.144 pour la phase normale. **(b)** Densité d'états pour une plus grande frustration ($t' = 0.8t$) et une valeur de remplissage de 1.01 (dopage de 1% en électrons) dans la phase normale. **(c.)** Diagramme de phase du supraconducteur organique κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈. La valeur de la résistivité en fonction de la température est présentée pour un champ magnétique nul. La valeur alpha répond à l'équation : $\rho - \rho_0 \sim T^\alpha$. La valeur de la résistivité est calculée dans le plan conducteur. Figure tirée de [13]. **(d.)** Diagramme de phase du supraconducteur organique κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈ sous un champ magnétique de 9 Tesla. La phase normale paramagnétique et la transition mauvais-métal (pseudo-gap) au métal (liquide de Fermi) par le biais d'un crossover dans l'effet Nernst est observé. Ce crossover se situe très près du maximum du dôme supraconducteur. Figure tirée de [14]. 55

3.3 **a.)** Diagramme expérimental de la relation de Homes dans les supraconducteurs non conventionnel. Figure tirée de [16]. **b.)** Diagramme théorique de la relation de Homes sur le réseau triangulaire anisotrope en CDMFT. Les valeurs des paramètres sont prises à la valeur de pression (d'interaction) à laquelle T_c est maximale, soit T_c^m . Cette valeur d'interaction associée à T_c^m est notée U_c^m 58

A.1 Diagrammes de phase à dopages finie pour le réseau triangulaire anisotrope ($t' = 0.4t$) en CDMFT à température finie. Le diagramme b.) est un supplément à l'article *Superconducting dome in doped quasi-two-dimensional organic Mott insulators : A paradigm for strongly correlated superconductivity* [62]. Les autres diagrammes sont reproduits ici par fin de complétude. L'Acronyme SC définit la phase supraconductrice. Les points rouges délimitent la température de Néel. Les valeurs des températures de Néel sont décrites en détail dans l'article précédemment cité et ne sont pas exposées sur tous les graphiques pour fin de visibilité des autres phases. Les spinodales bleus délimitent une zone de coexistence entre deux phases métalliques, dont l'une possède un pseudogap à basse pression et l'autre non à plus haute pression.

(a) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en trous de 10%. Le point brun ainsi que la ligne brune sont des extrapolations.

(b) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en trous de 1%.

(c) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en électrons de 1%.

(d) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en électrons de 10%. 63

A.2 Diagrammes de phase à dopages finie pour le réseau triangulaire anisotrope ($t' = 0.8t$) en CDMFT à température finie. Ces diagrammes sont des suppléments à l'article *Superconducting dome in doped quasi-two-dimensional organic Mott insulators : A paradigm for strongly correlated superconductivity* [62]. Les valeurs des températures de Néel sont décrites en détail dans l'article précédemment cité et ne sont pas exposées sur tous les graphiques pour fin de visibilité des autres phases.

(a) Diagramme de phase à demi remplissage avec toute l'étendu de l'AFM démontré graphiquement.

(b) Diagramme de phase à demi remplissage.

(c) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en électrons de 1%. Il faut noter que les simulations étaient particulièrement pénibles dans ce régime et que le diagramme de phase doit être vu seulement comme une estimation ici, les valeurs d'incertitudes étant bien plus importantes que toutes les autres mesures dans ce mémoire.

(d) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en électrons de 10%. 64

| | |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <p>D.1 Susceptibilité locale de spin en fonction de la température pour divers paramètres de remplissage, d'interaction et de configuration d'amas.</p> <p>(a) Susceptibilité pour l'amas triangulaire anisotrope à trois sites avec saut au deuxième voisin de valeur $t' = 0.8t$ à demi remplissage pour la valeur d'interaction $U/t = 10.0$. Le comportement caractéristique de la relation de Curie-Weiss est clairement visible.</p> <p>(b) Susceptibilité pour l'amas triangulaire isotrope à trois sites avec saut au deuxième voisin de valeur $t' = t$ à demi remplissage pour la valeur d'interaction $U/t = 11.00$. Le comportement caractéristique de la relation de Curie-Weiss est clairement visible.</p> <p>(c) Susceptibilité pour l'amas triangulaire anisotrope à quatre sites avec saut au deuxième voisin de valeur $t' = 0.8t$ à demi remplissage pour la valeur d'interaction $U/t = 8.50$.</p> <p>(d) Susceptibilités pour l'amas triangulaire isotrope à quatre sites avec saut au deuxième voisin de valeur $t' = t$ à demi remplissage pour la valeur d'interaction $U/t = 8.80$.</p> | <p>88</p> |
| <p>E.1 Chaleur Spécifique pour différents amas et divers paramètres, provenant de calculs CT-QMC.</p> | <p>91</p> |
| <p>I.1 Densité d'états à température finie pour le modèle triangulaire anisotrope pour des dopages, frustrations et températures diverses calculées en CDMFT à température finie dans la phase supraconductrice.</p> <p>(a) Densités d'états à interaction constante pour plusieurs valeurs de températures inverses. En diminuant la température, la formation du gap supraconducteur est observée.</p> <p>(b) Densités d'états pour diverses valeurs d'interactions, de frustration et de dopage.</p> | <p>95</p> |

J.1 Rigidité superfluide calculée en CDMFT à température finie et à demi remplissage pour deux valeurs de frustration. Les trois méthodologies de périodisation sont représentées : ρ_{tr} est la valeur calculée en n’effectuant aucune périodisation, mais simplement en effectuant la trace sur la matrice de Nambu de l’amas, ρ_C est calculé selon la périodisation cumulant et finalement ρ_G est calculé selon la périodisation Green. Les détails de périodisation sont fournis dans plusieurs références dont [39].

(a) Rigidité superfluide pour une valeur d’anisotropie de $t' = 0.4t$ et une valeur d’interaction de $U/t = 5.90$.

(b) Rigidité superfluide pour trois périodisations différentes et pour une valeur d’anisotropie de $t' = 0.8t$. Le comportement linéaire à haute température semble aussi saturer vers les températures plus basses, de façon analogue au comportement de la rigidité superfluide à plus faible frustration (Fig a.).

J.2 Rigidité superfluide calculée en CDMFT à température finie et à dopage finie pour deux valeurs de frustration. Les trois méthodologies de périodisation sont représentées : ρ_{tr} est la valeur calculée en n’effectuant aucune périodisation, mais simplement en effectuant la trace sur la matrice de Nambu de l’amas, ρ_C est calculé selon la périodisation cumulant et finalement ρ_G est calculé selon la périodisation Green. Les détails de périodisation sont fournis dans plusieurs références dont [39]. Les valeurs de rigidité superfluide sont prises à interaction constante en abaissant la température. La valeur de l’interaction est prise près de la valeur maximale de la température critique (T_c^m).

(a) Rigidité superfluide en fonction de la température inverse pour une valeur d’anisotropie de $t' = 0.8t$, une valeur d’interaction de $U/t = 14.50$ et un dopage de 10% en électrons.

(b) Rigidité superfluide en fonction de la température inverse pour une valeur d’anisotropie de $t' = 0.4t$, une valeur d’interaction de $U/t = 6.50$ et un dopage de 1% en électrons. Nous observons que pour une faible valeur de dopage et de frustration la rigidité superfluide sature très rapidement en fonction de la température. Ceci est également en accord avec le comportement du gap supraconducteur en fonction du dopage et de la frustration présenté dans la **Sec. I**. En revanche, en s’éloignant du demi-remplissage, la saturation est repoussée à plus basse température, davantage en accord avec un gap d-wave (**Sec. I**).

(c) Rigidité superfluide en fonction de la température inverse pour une valeur d’anisotropie de $t' = 0.4t$, une valeur d’interaction de $U/t = 10.50$ et un dopage de 10% en électrons. La rigidité superfluide s’approche de ce qui est observé pour le cas expérimental dopé aux trous, présenté à la **Fig. J.4**.

| | | |
|-----|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| J.3 | Rigidité superfluide selon l'axe c obtenue par simulations en CDMFT avec le solveur CT-HYB pour plusieurs valeurs de remplissage et de frustration. La périodisation Green est représentée par la couleur verte, la périodisation cumulant par la couleur bleue et finalement la périodisation trace est représentée par la couleur rouge foncé. Tous les points de rigidité superfluide sont calculés à la température $T/t = 1/60$ et un balayage est effectué en fonction de la pression. | |
| | (a) Rigidité superfluide calculée à demi remplissage pour la frustration $t' = 0.4t$. | |
| | (b) Rigidité superfluide calculée pour un dopage de 10% en électrons pour la frustration $t' = 0.8t$. | |
| | (c) Rigidité superfluide calculée pour un dopage de 10% en électrons pour la frustration $t' = 0.4t$. | |
| | (d) Rigidité superfluide calculée pour un dopage de 1% en électrons pour la frustration $t' = 0.4t$. La transition entre un métal et un métal corrélé (possédant un pseudogap) dans la phase normale est représentée par la ligne avec la légende MMT (metal-metal transition). | 100 |
| J.4 | Rigidité superfluide expérimentale du composé κ -(ET) ₄ Hg _{2.89} Br ₈ . Figure tirée de [14]. | 102 |

Introduction

La mécanique quantique est à l'origine de nombreuses applications technologiques. Un exemple important de technologie quantique découverte au 20e siècle est le transistor, un petit objet électronique essentiel utilisé universellement dans tous les engins connectés d'aujourd'hui, allant des haut-parleurs intelligents jusqu'aux satellites. Un des inventeurs du transistor, John Bardeen, est le même chercheur qui, en coauteur, établit la théorie BCS (du nom des trois chercheurs) [2,3]. Cette dernière théorie explique la supraconductivité par un appariement des électrons en paires, les paires de *Cooper*. Les chercheurs supposaient que cet appariement provenait de l'interaction des phonons avec les électrons, bien que leur théorie phénoménologique ne permet pas de prouver une telle affirmation. L'explication microscopique détaillée fut apportée par la théorie de Migdal et Eliashberg [4].

Les théories de BCS et d'Eliashberg sont à l'origine de la théorie de la supraconductivité conventionnelle, c'est-à-dire de la supraconductivité médiée par des excitations collectives du réseau, soit les phonons qui peuvent être vus en quelque sorte comme des particules de vibration du réseau.

La théorie d'Eliashberg prédisait une limite supérieure à la température critique d'un matériau (environ 23K pour un matériau à une bande électronique [5]). Cette constatation provoqua un ralentissement considérable des recherches sur le sujet de la supraconductivité.

Nonobstant, en 1987, des chercheurs découvrirent que certains types de céramiques (les cuprates) possèdent une température critique supérieure à la valeur prédite par la supraconductivité conventionnelle [6]. Ces matériaux présentent également de très nombreuses phases de la matière en étroite cohabitation, telles des phases magnétiques, métalliques et supraconductrices [7]. Cette découverte ne peut être expliquée par la théorie de la supraconductivité conventionnelle et marque une nouvelle époque d'effervescence de recherche tant expérimentale que théorique ayant pour but de percer les mystères de ces nouveaux matériaux.

Un autre classe de matériaux appartenant eux aussi, comme les cuprates, dans la classe des supraconducteurs non conventionnels, sont les conducteurs organiques quasi bidimensionnels. La découverte de la supraconductivité dans les cuprates généra un nouvel élan dans l'étude de ces conducteurs organiques qui présentent des caractéristiques analogues aux cuprates et offrent quelques avantages, tels que leur pureté. De

nombreux auteurs raisonnèrent que les diagrammes de phases de ces matériaux étaient contrôlés par la physique des interactions électroniques fortes [8–10]. De plus, certains de ces composés organiques sont même des candidats de liquide de spin quantique (une caractéristique clé d'un liquide de spin quantique étant l'absence d'ordre magnétique de longue portée) [11]. Le diagramme de phase d'un tel candidat est présenté à la **Fig. 1.1i**. Ces matériaux organiques présentent un champ d'études captivant et complémentaire aux cuprates pour les compétitions de phases et surtout la supraconductivité non conventionnelle.

Plus précisément, les conducteurs organiques en couches de la famille des κ -(BEDT-TTF)₂X (κ -(ET)₂X)¹ présentent un diagramme de phase comportant une transition de Mott, de l'ordre magnétique, ainsi que de la supraconductivité (voir par exemple la **Fig. 1.1ii**). De nouveaux composés dopés aux trous de ces conducteurs organiques présentent une ligne de Widom autour de laquelle une phase de liquide de Fermi subit, sous l'effet de pression, une transition vers une phase de mauvais métal [13, 14].

Le lien entre l'état normal, plus précisément de la ligne de Widom et les états magnétiques, paramagnétiques et supraconducteurs dans ces matériaux est encore le sujet de nombreuses études récentes [13–18].

Alors que les cuprates possèdent un diagramme de phase contrôlé par la température et la concentration en électrons (phénomène nommé le dopage en trous ou en électrons dans le jargon), les conducteurs organiques détiennent un diagramme de phase gouverné par la température et la pression. Effectivement, les conducteurs organiques sont plus difficilement dopés, par contre ils sont hautement compressibles. Dans les faits, la pression sur ces conducteurs organiques fait varier leur ratio d'interaction par rapport à leur largeur de bande [8]. Ces deux types de matériaux sont donc complémentaires dans les observations expérimentales dans l'espace tridimensionnel composé par la température, la pression, ainsi que de la densité de porteurs (T-P-n).

Quelques exemples de prototypes de la famille des supraconducteurs organiques sont présentés aux figures 1.1i, 1.1ii et 1.1iii. Tout d'abord, le composé κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ est présenté à la **Fig. 1.1i**. Ce composé présente une haute frustration, duquel découle un candidat très sérieux pour un liquide de spin. À basse température, une transition de premier ordre entre l'isolant de Mott non magnétique et la supraconductivité est déclenchée par un changement de pression. Ensuite, le composé κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl est présenté à la **Fig. 1.1ii**. Ce composé possède une frustration moindre ([19, 20]) que κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃, et par conséquent possède une phase magnétique à basse température.

1. κ -(ET)₂X est l'abréviation que nous utiliserons pour les composés dont les plans conducteurs sont formés de molécules de bis(ethylenedithio)tetrathiafulvalene (ET) et d'un anion complexe X tel que présenté dans la **Fig. 1.1iii**. Davantage d'informations détaillés sur la composition chimique de ces matériaux est disponible dans les références suivantes : [8, 12].

Cet isolant de Mott magnétique à basse pression donne lieu à une phase supraconductrice par une transition de premier ordre lorsque le composé est sujet à une pression croissante. Les composés $\kappa\text{-(ET)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ et $\kappa\text{-(ET)}_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Cl}$ sont demi-remplis.

Il existe des composé dopé aux trous, tel que le $\kappa\text{-(ET)}_4\text{Hg}_{2.89}\text{Br}_8$ (dont l'équivalent à demi rempli est le $\kappa\text{-(ET)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$), exposé à la **Fig. 1.iii**. $\kappa\text{-(ET)}_4\text{Hg}_{2.89}\text{Br}_8$ diffère du composé $\kappa\text{-(ET)}_2\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ par le fait de la présence d'une transition entre deux phases métalliques. De plus, la forme de la phase supraconductrice s'étend sous forme de dôme autour d'une ligne de Widom, alors que pour le composé à demi remplissage, une transition de premier ordre entre l'isolant de Mott de type liquide de spin et la phase supraconductrice survient lorsque la pression est augmentée à basse température.

En raison de l'équivalence pour les matériaux organiques entre la pression et les changements du ratio de l'interaction à la largeur de bande, l'espace tridimensionnel accessible aux expérimentations est cartographié dans l'espace T-U-n d'un point de vue de la modélisation physique sous le modèle de Hubbard, modèle prototype de la physique des interactions électroniques fortes.

Une théorie pouvant, au moins qualitativement, capter les éléments clés de ces diagrammes de phase représenterait une avancée importante dans la compréhension de ces matériaux. Plusieurs bonnes études ont fait un tel pas à notre avis, et le corps de ce mémoire présente un tel article dont le principal auteur est aussi l'auteur de ce présent mémoire.

C'est dans l'optique de mieux comprendre d'un point de vue théorique ces matériaux organiques que s'organise la structure de ce mémoire.

Premièrement, nous exposons la théorie et méthodologie nécessaire à l'implémentation d'un logiciel de simulations numériques portant sur le Monte Carlo quantique en temps continu (CT-QMC) avec interactions génériques de type électroniques et phononiques aux **Sec. 2.3** et **2.4**. La création de ce logiciel avait comme un de ces objectifs principaux l'étude approfondie de la transition de Sordi dans le réseau triangulaire pour des amas de plus grandes tailles. La réussite de cet objectif est décrite en détail dans l'article [23] et dans le mémoire de Pierre-Olivier Downey [24].

Deuxièmement, nous visons à expliquer par une théorie les résultats expérimentaux surprenants de Oike et collab. [13] et de Suzuki et collab. [14]. Ces résultats expérimentaux sur un composé organique dopé en trous, expose un dôme supraconducteur autour duquel des propriétés électroniques présentent des comportements critiques surprenants. Nous présentons, dans l'article joint, une analyse d'un point de vue théorique des résultats expérimentaux énoncés précédemment à la **Sec. 3.1**.

Troisièmement, nous travaillons à produire des résultats de simulations numériques

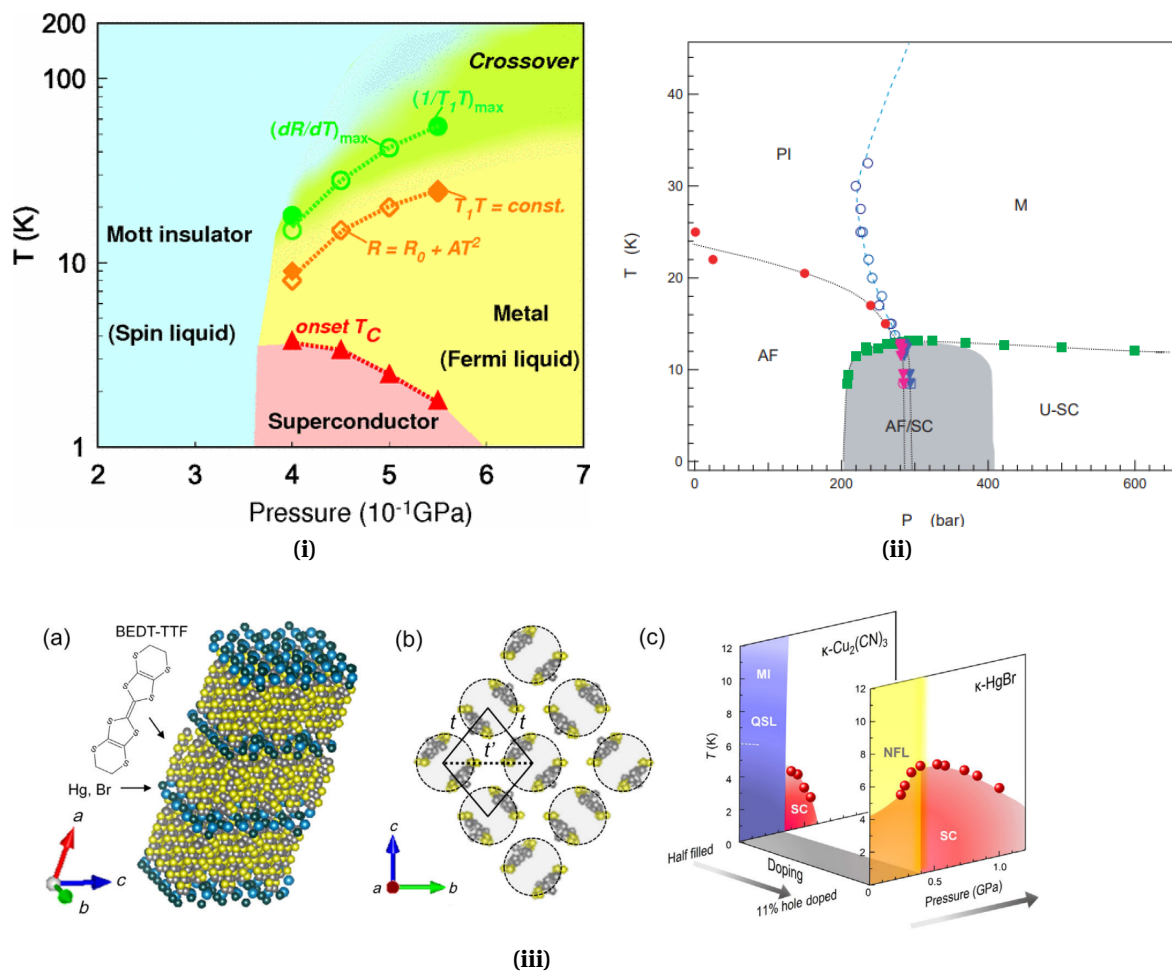


FIGURE 1.1 **i.)** Diagramme de phase pour le composé organique κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃. Figure tirée de [21].

ii.) Diagramme de phase pour le composé organique κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl. Figure tirée de [22].

iii.) (a) Description schématique de la composition générique des composés κ -(ET)₂X et (b) de la modélisation effective sur le réseau triangulaire qui en découle.

(c) Le composé dopé en trous κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈. Figure tirée de [14].

provenant de logiciels CT-QMC dans le but de jeter un œil nouveau sur la phase supraconductrice et normale par l'étude du pseudogap, de la conductivité et de la rigidité superfluide aux **Sec. 3.2, 3.3** et J.

Quatrièmement, les résultats théoriques de ce mémoire, notamment le modèle de Hubbard sur le réseau triangulaire anisotrope en CDMFT à température finie, sont confrontés à la loi de Homes expérimentale à la **Sec. 3.3**. Cette dernière loi fait état d'une relation de proportionnalité universelle entre la température critique, la conductivité et la rigidité superfluide pour l'ensemble des supraconducteurs non conventionnels.

Théorie et Méthodologie

2.1 Fonctions de Green

Dans la présente section, nous exposons les outils nécessaires à l'étude du problème à N-Corps quantique, c'est-à-dire l'étude de systèmes avec un nombre typique de particules (de l'ordre du nombre d'Avogadro 6.0×10^{23}). L'équation clé à résoudre est nul doute celle de Schrödinger dépendente du temps t , qui décrit l'évolution de la fonction d'onde ψ (le «système») sous l'influence d'un Hamiltonien H («l'environnement»)

$$i\hbar \frac{\partial |\psi\rangle}{\partial t} = \hat{H} |\psi\rangle . \quad (2.1)$$

L'équation de Schrödinger étant une équation différentielle, il est tentant d'appliquer la méthodologie des fonctions de Green pour la résoudre [25–27]

$$\mathcal{L} = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H(\mathbf{r}) \quad (2.2)$$

$$\mathcal{L}G(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\delta(t - t') \quad (2.3)$$

$$\Rightarrow \psi(\mathbf{r}, t) \sim \int d^3\mathbf{r}' G(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') \psi^0(\mathbf{r}', t') \quad (2.4)$$

avec G la fonction de Green et $\psi^0(\mathbf{r}', t')$ la fonction d'onde initiale. Nous n'avons pas posé l'égalité à l'Eq. 2.4, car nous avons omis des détails pour fin de simplicité. Les détails peuvent être trouvés dans les références [25–28].

Dans le même ordre d'idées que pour le problème d'une particule plus haut, pour le problème à N-Corps, une des fonctions de corrélations les plus pertinentes et pragmatiques est la fonction de Green à N-Corps pour les fermions. Pour un état quantique représenté par l'ensemble des nombres quantiques a et un autre état quantique représenté par les nombres quantiques b , la fonction de Green régissant l'évolution du système d'un temps t' à t s'écrit

$$G_{ab}(t, t') := -i \left\langle \left\{ c_a(t), c_b^\dagger(t') \right\} \right\rangle \theta(t - t') \quad (2.5)$$

$$\langle O(t) \rangle := \frac{\text{Tr}[e^{-\beta K} e^{iHt} O e^{-iHt}]}{Z} \quad (2.6)$$

$$Z := \text{Tr}[e^{-\beta H}] \quad (2.7)$$

$$K := H - \mu N . \quad (2.8)$$

Dans les dernières équations, nous avons introduit la température inverse $\beta = \frac{1}{k_B T}$ avec k_B la constante de Boltzmann, la fonction de Partition Z , le potentiel chimique μ et le nombre de particules N . De plus, les opérateurs $c_a(t)$ et $c_b^\dagger(t')$ sont analogues aux opérateurs d'échelle pour l'oscillateur harmonique quantique. Respectivement, ils détruisent un fermion dans l'état a au temps t et crée un fermion dans l'état b au temps t' . D'un point de vue des représentations quantiques, ces opérateurs sont exprimés dans la représentation de Heisenberg.

À température finie, une méthodologie davantage pratique est le formalisme de Matsubara (en temps imaginaire, $\tau = it$)

$$\mathcal{G}_{ab}(\tau) := - \left\langle T_\tau c_a(\tau) c_b^\dagger(0) \right\rangle \quad (2.9)$$

$$G_{ab}(i\omega_n) = \int_0^\beta d\tau \mathcal{G}_{ab}(\tau) e^{i\omega_n \tau} \quad (2.10)$$

$$\mathcal{G}_{ab}(\tau) = \frac{1}{\beta} \sum_{n \in \mathbb{Z}} e^{-i\omega_n \tau} G_{ab}(i\omega_n) \quad (2.11)$$

$$\omega_n := \frac{(2n + 1)\pi}{\beta} \quad (2.12)$$

avec T_τ l'opérateur d'ordonnement dans le temps [27, 28].

Cette fonction de Green de Matsubara, notée \mathcal{G} , est liée à la fonction de Green en temps réel G par prolongement analytique [27–31]. De plus, la fonction de Green de Matsubara en fonction du temps imaginaire est antipériodique. Par conséquent, une analyse de Fourier démontre que les fréquences de Matsubara définies à l'Eq. 2.12 doivent être impaires. Ces résultats découlent du principe de Pauli.

Un autre résultat important de la théorie quantique concerne les développements perturbatifs des opérateurs. En effet, en appliquant les méthodes de résolution itératives, un développement perturbatif permet d'écrire la valeur moyenne d'une observable selon l'équation suivante [27, 29, 31]

$$\langle O(\tau) \rangle = \frac{Z_0}{Z} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n!} \int_0^\beta d\tau_1 \dots \int_0^\beta d\tau_n \langle T_\tau H_I(\tau_n) \dots H_I(\tau_1) O(\tau) \rangle_0 \quad (2.13)$$

$$H := H_0 + H_I \quad (2.14)$$

avec H_0 le Hamiltonien non interagissant (au repos) et H_I la partie interagissante (la perturbation).

Le Hamiltonien est donc séparé en une partie dont la solution est connue (facilement calculable, souvent la partie non interagissante) et l'autre partie est la perturbation qui est plus difficile à résoudre. La valeur moyenne dans l'Eq. 2.13 est définie par la valeur

moyenne de l'Eq. 2.6 en appliquant la transformation (rotation de Wick ou prolongement analytique) et en notant que $\tau = it$.

2.2 Méthodes sur amas

Nous considérons le modèle de Hubbard à une bande comme Hamiltonien de modélisation pour les systèmes à l'étude. Nous nous intéressons plus particulièrement au réseau triangulaire anisotrope en deux dimensions. Effectivement, ce modèle est une représentation effective proposée pour les conducteurs organiques de la famille des κ -(ET)₂X [8].

2.2.1 Modèles de Hubbard pour les conducteurs organiques

Les conducteurs organiques de la famille des κ -(BEDT-TTF)₂X (κ -(ET)₂X) sont formés de cristaux de couches alternantes de donneurs d'électrons (BEDT-TTF) et d'accepteurs d'électrons (les anions X). La couche organique de ces matériaux est fortement dimérisée, tel que présenté à la Fig. 1.1iii. Ces dimères forment un agencement de sites effectifs localisé sur un réseau bidimensionnel triangulaire anisotrope [8].

Dans le cas typique, tel que pour κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ et κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl (pour le cas des anions monovalent), les dimères (BEDT-TTF)₂ transfère un électron à l'anion X. Les calculs de la structure de bande par les équipes de Kandpal et collab. [19] et de Nakamura et collab. [20] prédisent que les couches organiques devraient être métalliques, alors que les couches des anions devraient être isolantes. Ceci est en forte opposition aux diagrammes de phase très riches de ces matériaux. Par conséquent, plusieurs modèles prenant en compte les interactions électroniques ont été proposés pour expliquer cette disparité. Le modèle de Hubbard à une bande sur le réseau bidimensionnel triangulaire anisotrope est un de ces modèles qui prend en compte la structure de bande et les interactions électroniques sur les sites effectives (Fig. 1.1iii).

Pour le réseau triangulaire anisotrope, la relation de dispersion est donnée par (avec un pas du réseau défini comme l'unité) [8]

$$\epsilon_0(\mathbf{k}) = 2t (\cos(k_x) + \cos(k_y)) + 2t' \cos(k_x + k_y) \quad (2.15)$$

avec t le paramètre de saut entre les plus proches voisins sur le réseau effectif formé par les dimères, alors que t' est le saut au deuxième voisin.

Le modèle de Hubbard s'écrit

$$H = \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i,\sigma} . \quad (2.16)$$

Ici, le terme t_{ij} correspond à l'amplitude de saut entre sites voisins, $c_{i\sigma}$ et $c_{i\sigma}^\dagger$ annihile et crée un électron de spin σ au site i respectivement. De plus $n_{i\sigma}$ est le nombre d'occupations pour l'électron de spin σ au site i , μ est le potentiel chimique et U est la répulsion coulombienne sur site. Le modèle de Hubbard constitue un des modèles les plus simples pour des électrons interagissant sur un réseau. Pourtant, sa résolution est loin d'être triviale et nécessite des méthodologies poussées [27].

2.2.2 CDMFT

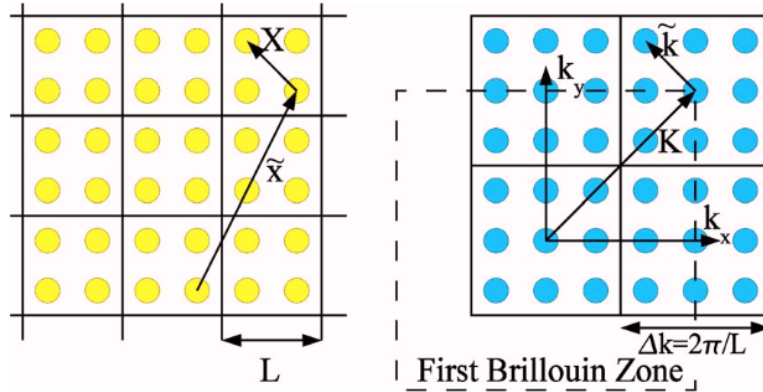


FIGURE 2.1 Schématisation du partitionnement du réseau en amas en CDMFT. Dans le texte, les vecteurs positions dans l'espace réel sont notés par la lettre r (x dans la présente figure). Figure tirée de [32].

La théorie de champ moyen dynamique sur amas (CDMFT) est une approche auto-cohérente dans laquelle le réseau est partitionné en un super-réseau et en un amas. Les quantités physiques sont calculées sur l'amas et le reste du réseau est substitué par un bain d'électrons non interagissant. Une relation d'autocohérence reliant la fonction de Green de l'amas et la fonction de Green du réseau détermine les valeurs de paramètres du bain.

Cette méthode est une extension à la DMFT (Dynamical Mean Field Theory) [33]. L'approximation clé de cette méthode consiste à considérer que la self-énergie¹ est locale à chaque amas et que la self-énergie du réseau est la même que la self-énergie d'un amas. D'excellentes revues sont disponibles sur le sujet [32, 34, 35]. Nous présentons ici une vue d'ensemble caricaturale et schématique de la méthode.

Le réseau est d'abord partitionné en amas de taille L_x par L_y par L_z , soient les longueurs en sites selon les axes correspondants. Nous définissons par la suite le nombre de sites de l'amas par $N_{cl} = L_x L_y L_z$. Cette séparation du réseau en amas définit un super-réseau et la répétition des amas dans l'espace partitionne totalement le réseau original.

Nous devons désormais définir le réseau réciproque pour un amas donné ainsi que pour le super-réseau. Pour définir un site dans un amas, deux indices spatiaux associés à l'espace et/ou à l'espace réciproque sont nécessaire [32, 35]

— r_j : vecteur position sur le réseau total d'un site $j \rightarrow \mathbf{k}$.

1. la self-énergie noté Σ représente l'effet des interactions pour un électron dans un environnement complexe. Simplement, la partie réel déplace les énergies propres comparativement au cas sans interactions et la partie imaginaire est reliée à la diffusion d'un électron dans l'environnement représenté par les autres particules.

- \mathbf{R}_j : vecteur de position du site j dans un amas donné $\rightarrow \mathbf{K}$.
- $\tilde{\mathbf{r}}$: vecteur de position associé au super-réseau (position des origines des amas) $\rightarrow \tilde{\mathbf{k}}$.

Les notations précédentes sont schématisées à la **Fig. 2.1**. La zone de Brillouin réduite (réduite d'un facteur N_{cl} , le nombre de sites de l'amas) est définie par les vecteurs d'ondes $\tilde{\mathbf{k}}$ et les vecteurs d'ondes totaux sont reliés à ces vecteurs d'ondes réduits modulo les vecteurs d'ondes intra-amas \mathbf{K} . En somme

$$\mathbf{r}_i = \mathbf{R}_i + \tilde{\mathbf{r}} \rightarrow \sum_{\mathbf{r}} = \sum_{\mathbf{R}} \sum_{\tilde{\mathbf{r}}} \quad (2.17)$$

$$\mathbf{k} = \mathbf{K} + \tilde{\mathbf{k}} \rightarrow \int \frac{d^d \mathbf{k}}{(2\pi)^d} = \sum_{\mathbf{K}} \int \frac{d^d \tilde{\mathbf{k}}}{(2\pi)^d} . \quad (2.18)$$

Pour obtenir la valeur d'un observable sur un amas, nous devons intégrer (projection) cette même observable sur la zone de Brillouin réduite. En prenant un exemple avec la fonction de Green de l'amas, celle-ci s'obtient par le biais de la fonction de Green du réseau par les équations

$$\hat{G}_{cl}(i\omega_n) = N_{cl} \int \frac{d^d \tilde{\mathbf{k}}}{(2\pi)^d} \hat{G}_{latt}(i\omega_n, \tilde{\mathbf{k}}) \quad (2.19)$$

$$= \frac{1}{N} \sum_i \hat{G}_{latt}(i\omega_n, \tilde{\mathbf{k}}_i) . \quad (2.20)$$

L'intégrale de l'**Eq. 2.19** est sur la zone de Brillouin réduite et d est la dimensionnalité du système à l'étude. L'**Eq. 2.20** est la version discrétisée de l'**Eq. 2.19**. Le chapeau sur les symboles (tel que \hat{G}_{cl}) spécifie qu'il s'agit de quantités matricielles dans la base des indices de sites de l'amas. L'indice cl dénote un amas (cluster) et l'indice $latt$ indique le réseau (lattice).

En fréquences de Matsubara, et sur des indices de sites ainsi que dans la zone de Brillouin réduite, la fonction de Green du réseau s'écrit [32]

$$\hat{G}_{latt}^{-1}(i\omega_n, \tilde{\mathbf{k}}) = (i\omega_n + \mu) \hat{\mathbb{I}} - \hat{t}(\tilde{\mathbf{k}}) - \hat{\Sigma}_{cl}(i\omega_n) \quad (2.21)$$

où $\tilde{\mathbf{k}}$ est le vecteur d'onde associé à l'invariance de translation d'amas en amas (l'espace réciproque du super-réseau), μ est le potentiel chimique, $\hat{t}(\tilde{\mathbf{k}})$ est la matrice de saut totale et $\hat{\Sigma}_{cl}(i\omega_n)$ est la self-énergie d'un amas, imposée égale à la self-énergie du réseau. La définition du terme de saut est quant à elle donnée par

$$\hat{t}_{ij}(\tilde{\mathbf{k}}) := \frac{1}{N_{cl}} \sum_{\mathbf{K}} e^{i(\tilde{\mathbf{k}}+\mathbf{K}) \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \epsilon(\tilde{\mathbf{k}} + \mathbf{K}) . \quad (2.22)$$

Bien évidemment, la self-énergie est reliée à la fonction de Green de l'amas par le biais de l'équation de Dyson

$$\hat{G}_{cl}^{-1} = \hat{\mathcal{G}}_0^{-1} - \hat{\Sigma}_{cl} . \quad (2.23)$$

Dans cette dernière équation, nous avons défini le propagateur libre (analogue à un champ de Weiss dans le sens usuel de la physique statistique [34]) de l'amas par la relation

$$\hat{\mathcal{G}}_0^{-1}(i\omega_n) = (i\omega_n + \mu) \hat{\mathbb{I}} - \hat{h}_{loc}^0 - \hat{\Delta}_{cl}(i\omega_n), \quad (2.24)$$

avec \hat{h}_{loc}^0 (la notation $\hat{\mathbf{t}}_{Loc}$ est aussi utilisée), la partie à une particule de l'Hamiltonien de l'amas et $\hat{\Delta}_{cl}$ est la fonction d'hybridation qui définit le couplage entre l'amas et le bain d'électrons non interagissants. La valeur exacte de \hat{h}_{loc}^0 est obtenue par projection du terme de saut total sur l'amas, et ceci se prouve par un développement à haute fréquence de la relation d'autocohérence ²

$$\hat{h}_{loc}^0 = N_{cl} \int \frac{d^d \tilde{\mathbf{k}}}{(2\pi)^d} \hat{t}(\tilde{\mathbf{k}}) . \quad (2.26)$$

Par la suite, la projection de la fonction de Green du réseau sur l'amas mène à la relation d'autocohérence pour la fonction d'hybridation selon l'**Eq. 2.19**.

Effectivement, une simulation commence à partir d'un choix de départ pour la fonction d'hybridation (par exemple la valeur donnée par Hartree-Fock). Ceci donne ainsi le champ moyen dynamique défini à l'**Eq. 2.24**, soit le propagateur libre de l'amas. En supposant que le problème d'impureté peut être résolu, l'équation de Dyson (**Eq. 2.23**) fournit alors la self-énergie qui est nécessaire pour obtenir la fonction de Green du réseau de l'**Eq. 2.23**, entrant dans le côté droit de la relation d'autocohérence de l'**Eq. 2.19**. En utilisant l'équation de Dyson une nouvelle fois sur le côté gauche de la relation d'autocohérence, nous obtenons une nouvelle valeur pour la fonction d'hybridation. Cette procédure est bien évidemment itérée jusqu'à la convergence. Il va sans dire que la partie particulièrement difficile de cet algorithme est le calcul de la fonction de Green de l'amas. Ceci est effectué dans notre cas par la méthode de Monte Carlo en temps continu dans la

2. La relation entre le premier moment de la fonction d'hybridation et \hat{h}_{loc}^0 est donnée dans la référence suivante [36] et est obtenue par un développement à haute fréquence. Effectivement, nous trouvons que le premier moment de la fonction d'hybridation possède la forme d'une variance du terme de saut total par rapport au super-réseau

$$\hat{\Delta}_1 = N_{cl} \int \frac{d^d \tilde{\mathbf{k}}}{(2\pi)^d} [\hat{t}(\tilde{\mathbf{k}})]^2 - [\hat{h}_{loc}^0]^2 . \quad (2.25)$$

saveur de développement en puissance de la fonction d'hybridation. En ce qui concerne ces dernières méthodes, il est possible de se référer aux ressources suivantes [37, 37, 38].

2.2.3 Restauration de l'invariance sous translation en CDMFT

La restauration de l'invariance sous translation en CDMFT est un sujet épineux et de nombreux auteurs s'y sont intéressés [35,39]. La restauration qui semble la plus naturelle pour nous se nomme la périodisation de Green. Effectivement, la périodisation de Green est particulièrement attrayante pour plusieurs raisons. La plus importante aux yeux du présent auteur est que le calcul de la densité d'états est le même avec la fonction de Green de l'amas que celle calculée avec la périodisation Green

$$G(\mathbf{k}) = \frac{1}{N_{cl}} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} [\hat{G}_{latt}(\tilde{\mathbf{k}})]_{ij} \quad (2.27)$$

$$= V_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{G}_{latt}(\tilde{\mathbf{k}}) V_{\mathbf{k}} \quad (2.28)$$

$$V_{\mathbf{k}}^\dagger := \frac{1}{\sqrt{N_{cl}}} (e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_0}; e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_1}; \dots; e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_{N_{cl}}}) \quad (2.29)$$

avec $V_{\mathbf{k}}^\dagger$ un vecteur ligne et $\hat{G}_{latt}(\tilde{\mathbf{k}})$ définie à l'Eq. 2.21. Cette périodisation semble naturelle, car la densité d'états calculée sur l'amas devrait être en principe égale à la densité d'états sur le réseau, qui elle-même doit être identique à la densité d'états calculée par la fonction de Green périodisée.

Démontrons que cette dernière affirmation est valide dans le cas de la CDMFT avec la restauration de l'invariance sous translation définie à l'Eq. 2.27. La densité d'états est simplement reliée à la partie imaginaire de la quantité suivante

$$\int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} G(\mathbf{k}) . \quad (2.30)$$

Maintenant, nous pouvons utiliser l'Eq. 2.27 pour réécrire l'Eq. 2.30

$$\int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} G(\mathbf{k}) = \int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} \frac{1}{N_{cl}} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} [\hat{G}_{latt}(\tilde{\mathbf{k}})]_{ij} \quad (2.31)$$

$$= \sum_{\mathbf{K}} \int \frac{d^d \tilde{\mathbf{k}}}{(2\pi)^d} \frac{1}{N_{cl}} \sum_{ij} e^{-i(\mathbf{K}+\tilde{\mathbf{k}})\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} [\hat{G}_{latt}(\tilde{\mathbf{k}})]_{ij} \quad (2.32)$$

Or, une forme de la relation de fermeture est la suivante

$$\frac{1}{N_{cl}} \sum_{\mathbf{K}} e^{-i\mathbf{K}\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} = \delta_{ij} . \quad (2.33)$$

L'Eq. 2.33 dans Eq. 2.32 implique

$$\int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} G(\mathbf{k}) = \int \frac{d^d \tilde{\mathbf{k}}}{(2\pi)^d} \sum_i e^{-i\tilde{\mathbf{k}} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_i)} [\hat{G}_{latt}(\tilde{\mathbf{k}})]_{ii} \quad (2.34)$$

$$= \text{Tr} \left[\int \frac{d^d \tilde{\mathbf{k}}}{(2\pi)^d} \hat{G}_{latt}(\tilde{\mathbf{k}}) \right]. \quad (2.35)$$

Finalement, en utilisant maintenant la relation d'autocohérence de l'Eq. 2.19, nous trouvons effectivement que la périodisation Green impose l'égalité de la densité d'états sur le réseau et sur l'amas

$$\int \frac{d^d k}{(2\pi)^d} G(\mathbf{k}) = \frac{1}{N_{cl}} \text{Tr} [\hat{G}_{cl}]. \quad (2.36)$$

2.2.4 DCA

Une autre généralisation sur amas du champ moyen dynamique (DMFT) est la DCA (Dynamical cluster approximation) [32, 40]. Cette généralisation en est une qui impose l'invariance sous translation du cristal. Entrons davantage dans les détails. La différence principale entre la CDMFT et la DCA est dans la définition du terme de saut [32, 41]

$$t_{ij}^{DCA}(\tilde{\mathbf{k}}) = e^{-i\tilde{\mathbf{k}} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} t_{ij}^{CDMFT}(\tilde{\mathbf{k}}) \quad (2.37)$$

$$= \frac{1}{N_{cl}} \sum_{\mathbf{K}} e^{i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \epsilon(\tilde{\mathbf{k}} + \mathbf{K}). \quad (2.38)$$

La relation d'autocohérence est très similaire à celle que nous retrouvons pour la CDMFT. Il suffit cette fois-ci de définir des parcelles («patches» dans la jargon anglophone) autour des points \mathbf{K} . Ces parcelles doivent couvrir dans son entièreté le domaine de la zone de Brillouin réduite, déterminé par l'Eq. 2.19.

$$G_{\mathbf{K}}^c(i\omega_n) = \frac{1}{N} \sum_{\tilde{\mathbf{k}} \in \mathcal{P}} G_{\mathbf{K}}^L(i\omega_n, \tilde{\mathbf{k}}) \quad (2.39)$$

avec la notation c pour l'amas et la notation L pour le réseau.

2.3 Monte Carlo

2.3.1 Rappel élémentaire de Monte Carlo : les grandes lignes

Le Monte Carlo (MC) est une méthode stochastique qui cherche à évaluer des intégrales de la forme suivante

$$\langle A \rangle = \int_{\mathcal{C}(\mathbf{x})} d\mathbf{x} p(\mathbf{x}) A(\mathbf{x}) . \quad (2.40)$$

Dans la dernière équation, $\mathcal{C}(\mathbf{x})$ est l'espace des configurations ou des phases, dont les indices continus et/ou discrets (positions, spins, orbitales, etc.) sont inclus dans le super-vecteur \mathbf{x} . La distribution de probabilité de la variable aléatoire \mathbf{x} est donnée par $p(\mathbf{x})$. En utilisant une notation inspirée de [37, 42–44] la version discrète de l'Eq. 2.40 est

$$\langle A \rangle_p = \sum_{\mathcal{C}_n} p(\mathcal{C}_n) A_n . \quad (2.41)$$

L'indice p dans l'Eq. 2.41 fait référence à la valeur moyenne calculée avec la distribution de probabilité définie par

$$p(\mathcal{C}_n) = \frac{W(\mathcal{C}_n)}{\sum_{\mathcal{C}_n} W(\mathcal{C}_n)} \quad (2.42)$$

$$\frac{Z}{Z_0} = \sum_{\mathcal{C}_n} W(\mathcal{C}_n) \quad (2.43)$$

Une configuration en langage diagrammatique est un ensemble de vertex

$$\mathcal{C}_n = \{v_1, v_2, \dots, v_n\} \quad (2.44)$$

$$v_j = \{r_j, \kappa_j, \tau_j; r_{j'}, \kappa_{j'}, \tau_{j'} | s_j\} \quad (2.45)$$

$$:= \{j; j' | s_j\} . \quad (2.46)$$

Un vertex v_j possède un début j et une fin j' . Dans les Eq. 2.44, 2.45, 2.46, r_i est le site pour l'électron i , κ_i est l'indice qui encapsule le spin i (σ_i) et l'orbital i (ν_i), les s_i sont des spins auxiliaires de type Ising introduit de façon purement mathématique pour amoindrir le problème de signe [37, 45]. Un exemple est explicitement donné pour le modèle de Hubbard à une bande à la Sec. 2.3.3.

Ainsi, la somme sur les configurations s'exprime comme une somme sur tous les ensembles distincts de vertex [42, 43, 46]

$$\sum_{\mathcal{C}_n} = \sum_{s_1 \dots s_n} \int d1d1' d2d2' \dots dndn' \quad (2.47)$$

$$\int dj = \int_0^\beta d\tau_j \sum_{r_j \kappa_j} . \quad (2.48)$$

Les sommes du type de l' **Eq. 2.41** sont réécrites par un ensemble fini de points choisis stochastiquement pour suivre fidèlement la distribution de probabilité de l' **Eq. 2.42** par une marche aléatoire

$$\langle A \rangle = \frac{\sum_{\mathcal{C}_n} W(\mathcal{C}_n) A(\mathcal{C}_n)}{\sum_{\mathcal{C}_n} W(\mathcal{C}_n)} \quad (2.49)$$

$$\approx \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N A(\mathcal{C}_i) \quad (2.50)$$

$$= \langle A \rangle_{MC} . \quad (2.51)$$

Ce processus de réécriture des valeurs moyennes de cette façon se nomme l'échantillonnage en importance. Les observables sont ainsi exprimées comme des variables aléatoires dans l'espace $\mathcal{C} := \bigcup_{n=0}^{\infty} \mathcal{C}_n$. Pour obtenir des estimations des observables, la distribution de probabilité est échantillonnée via une chaîne de Markov.

2.3.2 L'algorithme de Metropolis-Hastings

Une chaîne de Markov est entièrement définie par une matrice de probabilité de transition $P(\mathcal{C}_n \rightarrow \mathcal{C}_i)$ [37, 44, 47]. Un élément de cette matrice renferme la probabilité de transiter d'un état donné à un autre. En débutant d'un état arbitraire \mathcal{C}_n , la chaîne de Markov converge exponentiellement vers la distribution cible \mathcal{C}_i sous quelques conditions : i.) l'ergodicité ii.) la condition de bilan global. Cette matrice de probabilité de transition est normalisée

$$\sum_{\mathcal{C}_i} P(\mathcal{C}_n \rightarrow \mathcal{C}_i) = 1 \quad (2.52)$$

car la probabilité de transiter vers n'importe quelle configuration en partant d'une configuration donnée est l'unité. L'ergodicité s'exprime comme suit :

$$\forall x, y \in \mathcal{C} \exists N > 0 \text{ tel que } n \geq N : P^n(x \rightarrow y) \neq 0$$

La condition de bilan global, quant à elle s'écrit

$$\sum_{\mathcal{C}_n} p(\mathcal{C}_n) P(\mathcal{C}_n \rightarrow \mathcal{C}_i) = p(\mathcal{C}_i) . \quad (2.53)$$

Cette condition de bilan globale signifie de façon vulgarisée et imagée que si nous voulons effectuer une marche aléatoire dans la distribution de probabilité cible, nous devons transiter d'une configuration à une autre en suivant globalement cette même distribution cible.

Une condition suffisante, mais non nécessaire de satisfaire la condition de bilan globale, est la condition de bilan détaillé. Cette dernière s'exprime mathématiquement comme suit à une étape i de la chaîne [48]

$$\frac{P(\mathcal{C}_i \rightarrow \mathcal{C}_{i+1})}{P(\mathcal{C}_{i+1} \rightarrow \mathcal{C}_i)} = \frac{W(\mathcal{C}_{i+1})}{W(\mathcal{C}_i)} . \quad (2.54)$$

De façon imagée, cette condition démontre que de suivre globalement la distribution cible peut être atteint en la suivant au pas-à-pas. Nous pouvons réécrire l'équation ci-

dessus et montrer facilement qu'elle satisfait la condition de bilan globale

$$P(\mathcal{C}_i \rightarrow \mathcal{C}_{i+1})W(\mathcal{C}_i) = P(\mathcal{C}_{i+1} \rightarrow \mathcal{C}_i)W(\mathcal{C}_{i+1}) \quad (2.55)$$

$$\Rightarrow \sum_{\mathcal{C}_i} P(\mathcal{C}_i \rightarrow \mathcal{C}_{i+1})W(\mathcal{C}_i) = \sum_{\mathcal{C}_i} P(\mathcal{C}_{i+1} \rightarrow \mathcal{C}_i)W(\mathcal{C}_{i+1}) \quad (2.56)$$

$$\Rightarrow \sum_{\mathcal{C}_i} P(\mathcal{C}_i \rightarrow \mathcal{C}_{i+1})W(\mathcal{C}_i) = W(\mathcal{C}_{i+1}) \sum_{\mathcal{C}_i} P(\mathcal{C}_{i+1} \rightarrow \mathcal{C}_i) \quad (2.57)$$

$$\sum_{\mathcal{C}_i} P(\mathcal{C}_i \rightarrow \mathcal{C}_{i+1})W(\mathcal{C}_i) = W(\mathcal{C}_{i+1}) . \quad (2.58)$$

Ainsi, la condition d'équilibre globale de l'Eq. 2.53 est satisfaite.

Ensuite, la matrice de transition est factorisée en une probabilité de proposer une nouvelle configuration et une probabilité d'accepter la nouvelle configuration [49]

$$P(a \rightarrow b) = P_{prop}(a \rightarrow b)P_{acc}(a \rightarrow b) . \quad (2.59)$$

La condition de bilan détaillé est garantie en utilisant le ratio d'acceptation de Metropolis-Hastings

$$P_{acc}(a \rightarrow b) = \text{Min}[1, R(a \rightarrow b)] \quad (2.60)$$

$$R(a \rightarrow b) = \frac{p(b)P_{prop}(b \rightarrow a)}{p(a)P_{prop}(a \rightarrow b)} \quad (2.61)$$

$$R(b \rightarrow a) = [R(a \rightarrow b)]^{-1} . \quad (2.62)$$

2.3.3 Monte Carlo quantique en temps continu (CT-QMC)

Rappelons comment nous pouvons écrire la fonction de partition en termes de variables de Grassmann [28]

$$Z = \int D[\bar{c}_x c_x] \exp[-S] \quad (2.63)$$

$$= \int D[\bar{c}_x c_x] e^{-S_0} e^{-S_I} \quad (2.64)$$

$$= \sum_m \int D[\bar{c}_x c_x] e^{-S_0} \left[\frac{(-1)^m}{m!} (S_I)^m \right] \quad (2.65)$$

$$= Z_0 \langle \exp(-S_I) \rangle_0 \quad (2.66)$$

où S est l'action qui est décomposable en une partie quadratique (S_0) et une partie interagissante (S_I). Ici, c et \bar{c} sont des variables de Grassmann conjuguées. Nous référons le lecteur aux références suivantes qui démontrent et appliquent cette machinerie [28, 30, 47]. Les notations sont une hybridation originale des références précédentes et des références [42–44, 46]. La valeur moyenne d'une observable est donnée par

$$\langle A(c_a^\dagger c_b) \rangle = \frac{1}{Z} \int D[\bar{c}_x c_x] \exp[-S] A(\bar{c}_a c_b) . \quad (2.67)$$

Par exemple, pour des interactions de type seulement densité-densité

$$S = S_0 + S_I \quad (2.68)$$

$$= \sum_{r\kappa, r'\kappa'} \int d\tau d\tau' \left(\bar{c}_{r\kappa}(\tau) [g_{r\kappa r'\kappa'}^0(\tau, \tau')]^{-1} c_{r'\kappa'}(\tau') + \sum_s \frac{V_{\kappa\kappa'}(\tau, \tau')}{2} [n_{r\kappa}(\tau) - \alpha_\kappa(s)] [n_{r'\kappa'}(\tau') - \alpha_{\kappa'}(s)] \right) . \quad (2.69)$$

Les fonctions $\alpha_\kappa(s)$ qui proviennent des spins auxiliaires de type Ising (pour éliminer le problème de signe provenant de l'interaction répulsive [37, 42]) doivent être choisies judicieusement et les détails sont fournis à la **Sec. 2.4**.

Nous pouvons maintenant écrire l'**Eq. 2.66** avec la définition 2.48

$$\frac{Z}{Z_0} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(-1)^m}{m! 2^m} \sum_{s_1 \dots s_m} \int d1 d1' \dots d m d m' V_{11'} \dots V_{m m'} \quad (2.70)$$

$$\langle A(c_a^\dagger c_b) \rangle = \frac{Z_0}{Z} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(-1)^m}{m! 2^m} \sum_{s_1 \dots s_m} \int d1 d1' \dots d m d m' V_{11'} \dots V_{m m'} \quad (2.71)$$

$$\langle T_\tau [n_1 - \alpha_1(s_1)] [n_{1'} - \alpha_{1'}(s_1)] \dots [n_m - \alpha_m(s_m)] [n_{m'} - \alpha_{m'}(s_m)] A(\bar{c}_a c_b) \rangle_0 .$$

Dans presque tous les cas, les interactions densité-densité de type Hubbard peuvent s'écrire

$$V_{jj'} := V_{\kappa_j \kappa_{j'}} \delta_{r_j, r_{j'}} \delta(\tau_j - \tau_{j'}) \delta_{\kappa_j, \kappa_{j'}} \quad (2.72)$$

$$\delta_{\kappa_j, \kappa_{j'}} := \begin{cases} 0 & ; \kappa_j = \kappa_{j'} \\ 1 & ; \kappa_j \neq \kappa_{j'} \end{cases} \quad (2.73)$$

Les **Eq. 2.66, 2.69** impliquent, avec l'utilisation du théorème de Wick

$$\frac{Z}{Z_0} = \sum_{C_n} W(C_n) \quad (2.74)$$

$$W(C_n) = \frac{(-1)^n}{n! 2^n} \left(\prod_{i=1}^n V_{\kappa_i \kappa_{i'}}(\tau_i, \tau_{i'}) \right) \text{Det}[M(C_n)] \quad (2.75)$$

$$[M(C_n)]_{ij} = g_{r_i \kappa_i r_j \kappa_j}^0(\tau_i, \tau_j) - \delta_{ij} \alpha_{\kappa_i}(s_i) \quad (2.76)$$

avec, $\text{Det}[M(C_n)]$ un déterminant qui encapsule toutes les contractions de Wick à un ordre n donné.

En explicitant tous les indices, écrivons le modèle de Hubbard à une bande :

$$\frac{Z}{Z_0} = \sum_{m=0}^{\infty} \left(\frac{-U}{2} \right)^m \frac{1}{m!} \sum_{s_1 \dots s_m} \sum_{\mathbf{r}_1 \dots \mathbf{r}_m} \int_0^\beta d\tau_1 \dots d\tau_m \quad (2.77)$$

$$\langle T_\tau [n_{\mathbf{r}_1 \uparrow}(\tau_1) - \alpha_\uparrow(s_1)] [n_{\mathbf{r}_1 \downarrow}(\tau_1) - \alpha_\downarrow(s_1)] \dots [n_{\mathbf{r}_m \uparrow}(\tau_m) - \alpha_\uparrow(s_m)] [n_{\mathbf{r}_m \downarrow}(\tau_m) - \alpha_\downarrow(s_m)] \rangle_0$$

$$\alpha_\sigma(s) = \frac{1}{2} + \sigma s \epsilon \quad (2.78)$$

$$\epsilon = \frac{1}{2} + 0^+ \quad (2.79)$$

Pour garder la même action avec et sans spin auxiliaire, nous pouvons simplement absorber un terme dans le potentiel chimique $\mu \rightarrow \mu - U/2$ [46].

2.3.4 Le problème de signe

Le problème de signe en physique statistique quantique réfère au fait que les méthodes de Monte Carlo quantique possèdent une limite intrinsèque pour obtenir des observables pour des systèmes fermioniques comparativement aux systèmes bosoniques [50, 51]. En effet, l'écriture de la fonction de partition pour un système fermionique selon

l' Eq. 2.74 comporte un signe qui s'exprime à travers le déterminant (principe de Pauli). Ainsi, nous obtenons des poids de phases (signes) alternants, ce qui nous oblige à considérer la valeur absolue des poids dans la fonction de partition et de transférer le signe vers les observables [37]

$$\langle A \rangle_p = \frac{\sum_{\mathcal{C}_n} W(\mathcal{C}_n) A(\mathcal{C}_n)}{\sum_{\mathcal{C}_n} W(\mathcal{C}_n)} \quad (2.80)$$

$$\rightarrow \frac{\sum_{\mathcal{C}_n} \text{sgn}[W(\mathcal{C}_n)] |W(\mathcal{C}_n)| A(\mathcal{C}_n)}{\sum_{\mathcal{C}_n} \text{sgn}[W(\mathcal{C}_n)] |W(\mathcal{C}_n)|} \quad (2.81)$$

$$= \frac{\langle \text{sgn} A \rangle_{|p|}}{\langle \text{sgn} \rangle_{|p|}}. \quad (2.82)$$

En revanche, les poids des bosons ne font qu'intervenir des permanents et donc le problème de signe y est absent. Il est possible de démontrer que le signe est fonction d'une exponentielle décroissante en fonction de β et du nombre de degrés de liberté. Ainsi, le numérateur et le dénominateur approche de zéro exponentiellement, ce qui cause une variance des observables qui devient rapidement hors de contrôle

$$\langle \text{sgn} \rangle_{|p|} \sim \exp(-\beta * N * \Delta F) \quad (2.83)$$

avec ΔF la différence de densité d'énergie libre entre le véritable système de fermions et celui avec les poids absolus [50, 51]. L'avantage des simulations Monte Carlo qui ont une difficulté computationnelle polynomiale sans problème de signe est donc complètement perdu.

2.4 Implémentation multiorbital

2.4.1 Introduction

La présente section s'intéresse à la théorie nécessaire pour l'implémentation d'un solveur Monte Carlo avec la saveur CT-INT³ pour un Hamiltonien multiorbital avec des interactions phononiques de type Holstein. En apparence, ceci est une section qui est quelque peu redondante par rapport à la section précédente. En revanche, les explications exposées ici s'avèrent davantage pratiques lorsqu'il vient le temps de mettre en pratique la théorie en vue d'une implémentation numérique.

2.4.2 Notations

Une des premières observations par rapport à la modélisation à une bande est le fait que les quantités physiques, telles les fonctions de Green seront maintenant des matrices de dimensions $(2N_{cl}N_{Orb}) \times (2N_{cl}N_{Orb})$, avec N_{cl} le nombre de sites dans l'amas et N_{Orb} est le nombre d'orbitales. Le facteur deux provient des deux valeurs de spins. Un chapeau définit une matrice dans l'espace des sites et une lettre grasse définit une matrice dans l'espace combiné des orbitales (ν) et des spins (σ). L'indice combiné orbital et spin est défini par la lettre κ . Une lettre grasse avec un chapeau est par conséquent une matrice dans l'espace κ et des sites.

2.4.3 Hamiltonien

L'Hamiltonien que nous considérons est de type Hubbard-Kanamori-Holstein et possède la forme suivante [53, 54]

$$H = \sum_{\kappa\kappa'r'r'} t_{\kappa r\kappa'r'} c_{\kappa r}^\dagger c_{\kappa'r'} + \sum_{r,\nu} U_{\nu,\nu} n_{r\nu\uparrow} n_{r\nu\downarrow} + \sum_{r\sigma,\nu<\nu'} U'_{\nu,\nu'} n_{r\nu\sigma} n_{r\nu'\bar{\sigma}} + \sum_{r\sigma,\nu<\nu'} (U'_{\nu,\nu'} - J_{\nu,\nu'}^H) n_{r\nu\sigma} n_{r\nu'\sigma} + H_{\text{Phonons}} \quad (2.84)$$

$$H_{\text{Phonons}} = \sum_{\mathbf{q}\lambda\kappa} \omega_{\mathbf{q}\lambda\kappa} b_{\mathbf{q}\lambda}^\dagger b_{\mathbf{q}\lambda} + \sum_{\mathbf{q}\lambda\kappa} g_{\mathbf{q}\lambda} (\rho_{\mathbf{q}\kappa} b_{\mathbf{q}\lambda}^\dagger + \rho_{\mathbf{q}\kappa}^\dagger b_{\mathbf{q}\lambda}) \quad (2.85)$$

$$\rho_{\mathbf{q}\kappa} = \rho_{\mathbf{q}\kappa} [c_{\mathbf{q}\kappa}^\dagger, c_{\mathbf{q}\kappa}]. \quad (2.86)$$

Démystifions les notations utilisées dans les équations précédentes. D'abord, σ représente un spin fermionique. Ensuite, l'indice ν est utilisé pour les orbitales. La notation

3. La présente section présente la dérivation CT-QMC qui est compatible avec les deux méthodologies CT-AUX et CT-INT, alors que la section 2.3.3 présente la forme usuelle de CT-INT [37, 42, 52]. CT-AUX et CT-INT sont en fait complètement équivalents (voir l'Annexe G).

pour la dernière ligne est empruntée de la référence [42]. Notons que le potentiel chimique est inclus dans le terme de saut. Écrivons maintenant l'action correspondante à ce Hamiltonien en introduisant immédiatement les spins auxiliaires de type Ising (s). De plus, nous ne prendrons qu'un couplage avec des phonons optiques de type Einstein (diagonal dans l'espace réel et une seule branche λ qui se couple identiquement à toutes les orbitales). La généralisation à des Hamiltoniens plus complexes est certes possible⁴, mais ceux-ci ne seront pas présentés dans ce mémoire. En utilisant l'Eq. 2.84, l'action sur amas peut être écrite de la façon suivante [28]

$$S = S_0 + S_I \quad (2.87)$$

$$S_0 = \int d\tau d\tau' \hat{c}^\dagger(\tau) [\hat{\mathcal{G}}_0(\tau - \tau')]^{-1} \hat{c}(\tau') \quad (2.88)$$

$$S_I = \int d\tau \sum_{s=\pm 1} \left[\sum_{r\nu} \frac{U_{\nu\nu}}{2} \prod_{\sigma} [n_{r\nu\sigma}(\tau) - \alpha_{\nu\sigma}(s)] \right] \quad (2.89)$$

$$+ \sum_{r,\nu < \nu',\sigma} \frac{U'_{\nu\nu'}}{2} [n_{r\nu\sigma}(\tau) - \alpha_{\nu\sigma}(s)] [n_{r\nu'\bar{\sigma}}(\tau) - \alpha_{\nu'\bar{\sigma}}(s)] \quad (2.90)$$

$$+ \sum_{r,\nu < \nu',\sigma} \frac{(U'_{\nu\nu'} - J_{\nu\nu'}^H)}{2} [n_{r\nu\sigma}(\tau) - \alpha_{\nu\sigma}(s)] [n_{r\nu'\sigma}(\tau) - \alpha_{\nu'\sigma}(s)] \quad (2.91)$$

$$- \int d\tau' \frac{g^2}{4\omega_0^2 M} \sum_{r,\nu,\nu',\sigma,\sigma'} \mathcal{P}(\tau - \tau') [n_{r\nu\sigma}(\tau) - \zeta_{\nu}(s)] [n_{r\nu'\sigma'}(\tau') - \zeta_{\nu'}(s)] \quad (2.92)$$

$$\hat{\mathcal{G}}_0(i\omega_n) := \left(i\omega_n \hat{\mathbf{I}} + \hat{\mu} - \hat{\mathbf{t}}_{\text{Loc}} - \hat{\Delta} \right)^{-1}. \quad (2.93)$$

La première partie interagissante 2.89 correspond au terme de Hubbard intraorbitales. Le second terme 2.90 correspond aux interactions interorbitales de spins opposés, alors que le dernier terme électronique 2.91 correspond aux interactions interorbitales de mêmes spins⁵. Le dernier terme 2.92 est l'interaction électrons-phonons. La matrice $\hat{\mu}$ est diagonale dans l'espace des sites-orbitales-spins. Cette matrice correspond au potentiel chimique qui est décalé en raison de la nouvelle factorisation de l'interaction avec les spins d'Ising (s) pour les interactions électroniques (les fonctions $\alpha_{\nu\sigma}(s)$) et les interactions phononiques (les fonctions $\zeta_{\nu}(s)$). De plus, dans les cas simples où la partie non interagissante est diagonale en spin, alors tous les termes dans la fonction de Green non interagissante de l'Eq. 2.93 seront également diagonaux en spin. Nous prendrons $M := 1$ comme l'unité de masse. Définissons le propagateur de phonon normalisé pour le mo-

4. Il est aisé de généraliser à des interactions qui dépendent des sites en ajoutant simplement un indice de site r au tenseur d'interaction électronique.

5. Ce terme constitue le couplage de Hund, mais sans les parties saut de paires ni de renversement de spin [52].

dèle de Holstein

$$\mathcal{P}(\tau - \tau') = \frac{\omega_0}{2} (e^{-\omega_0 \tau} (n_B(\beta, \omega_0) + 1) + e^{\omega_0 \tau} n_B(\beta, \omega_0)) \quad (2.94)$$

$$= \frac{\omega_0}{2} \frac{\cosh((\tau - \beta/2)\omega_0)}{\sinh(\frac{\beta\omega_0}{2})} \quad (2.95)$$

$$\int_0^\beta \mathcal{P}(\tau) d\tau = 1 \quad (2.96)$$

$$\Phi(\Delta\tau) = \int_0^{\Delta\tau} \mathcal{P}(\tau) d\tau. \quad (2.97)$$

La définition à l'**Eq. 2.97** est utile pour échantillonner la distribution de probabilité pour le propagateur de phonon selon la technique décrite plus en détail dans l'article suivant [55].

Il est important de noter que la définition des fonctions alpha est très stricte

$$\alpha_\kappa(s) = \alpha_{\nu\sigma}(s) \quad (2.98)$$

$$= \frac{1}{2} + \sigma s \left(\frac{1}{2} + \delta_\nu \right) \quad (2.99)$$

$$\delta_\nu = 0^+ \quad (2.100)$$

$$\sum_{s=\pm 1} \alpha_\kappa(s) = 1 \quad (2.101)$$

$$\zeta_\kappa(s) = \zeta_\nu(s) \quad (2.102)$$

$$= \frac{1}{2} + s \left(\frac{1}{2} + \delta_\nu \right) \quad (2.103)$$

Puisque le Hamiltonien doit être identique avec et sans spins auxiliaires, nous obtenons la valeur suivante pour le potentiel chimique décalé (renormalisation de Hartree)

$$\hat{\mu}_{\{r_i, \nu_m, \sigma_o\}, \{r_j, \nu_n, \sigma_p\}} = \delta_{r_i r_j} \delta_{\nu_m \nu_n} \delta_{\sigma_o \sigma_p} \left(\mu_{\nu_n} - \frac{U_{\nu_n \nu_n}}{2} - \sum_{\nu'} \frac{2U'_{\nu_n \nu'} - J^H_{\nu_n \nu'}}{2} \right) \quad (2.104)$$

Par la suite, dans le but d'appliquer la machinerie Monte Carlo à un tel système multiorbital, nous définissons une configuration comme étant l'ensemble des vertex

$$\mathcal{C}_k = \{v_1, v_2, \dots, v_k\}. \quad (2.105)$$

Les vertex étant quant à eux définis par

$$v := \{x; y|s\} \quad (2.106)$$

$$= \{r_x, \tau_x, \kappa_x; r_y, \tau_y, \kappa_y | s\xi\} \quad (2.107)$$

avec ξ le type d'interaction, soit électronique ou phononique. En lien avec ces vertex et ces configurations, nous définissons les fonctions

$$f_{\kappa}(s) = \begin{cases} \frac{\alpha_{\kappa}(s)}{\alpha_{\kappa}(s)-1} ; s = \pm 1 \\ 1 ; s = 0 \end{cases} \quad (2.108)$$

$$K_{xy\xi}(s) = \frac{-\beta N_{cl} V_{xy\xi}}{(f_{\kappa_x}(s) - 1)(f_{\kappa_y}(s) - 1)} . \quad (2.109)$$

La valeur de l'interaction $V_{xy\xi}$ est définie par l'**Eq. 2.89**. Ce tenseur d'interaction possède la forme suivante lorsque nous explosons les indices de vertex x et y (notons les interactions électroniques par ξ_{ee} et les interactions électrons-phonons par ξ_{ph})

$$V_{xy\xi} = \delta_{r_x r_y} \delta_{\nu_x \nu_y} \delta(\tau_x - \tau_y) \delta_{\sigma_x \sigma_y} \frac{U_{\nu_x \nu_y}}{2} \delta_{\xi, \xi_{ee}} \quad (2.110)$$

$$+ \delta_{r_x r_y} \delta_{\nu_x \nu_y} \delta(\tau_x - \tau_y) \delta_{\sigma_x \sigma_y} \frac{U'_{\nu_x \nu_y}}{2} \delta_{\xi, \xi_{ee}} \quad (2.111)$$

$$+ \delta_{r_x r_y} \delta_{\nu_x \nu_y} \delta(\tau_x - \tau_y) \delta_{\sigma_x \sigma_y} \frac{U'_{\nu_x \nu_y} - J_{\nu_x \nu_y}^H}{2} \delta_{\xi, \xi_{ee}} \quad (2.112)$$

$$+ \delta_{r_x r_y} \frac{g^2}{4\omega_0^2 M} \mathcal{P}(\tau_x - \tau_y) \delta_{\xi, \xi_{ph}} \quad (2.113)$$

avec $\delta_{\sigma_x \sigma_y}$ défini à l'**Eq. 2.73**. En utilisant l'équation décrivant l'action **Eq. 2.87**, la fonction de partition s'écrit maintenant (en utilisant la méthodologie usuelle des intégrales fonctionnelles [28, 42])

$$\frac{Z}{Z_0} = \sum_{C_n} W(C_n) \quad (2.114)$$

$$W(C_n) = \left(\prod_{i=1}^n \frac{K_{x_i y_i \xi_i}(s_i)}{2N_{cl}\beta} \right) \mathbf{Det}[\hat{\mathbf{A}}(C_n)] \quad (2.115)$$

$$\hat{\mathbf{A}}(C_n) := \hat{\mathbf{F}} - \hat{\mathcal{G}}_0(\hat{\mathbf{F}} - \hat{\mathbf{I}}) \quad (2.116)$$

$$(\hat{\mathbf{F}})_{ij} = \delta_{ij} f_{\kappa_i}(s_i) \quad (2.117)$$

avec la matrice $\hat{\mathcal{G}}_0$ définie à l'**Eq. 2.93**. Pour la suite du manuscrit, nous simplifions la fonction $K_{x_i y_i \xi_i}(s_i)$ par l'abréviation K_i .

2.4.4 Processus de Markov Multiorbital avec interactions phononiques

Considérons d'abord le processus de Markov multiorbital en l'absence d'interactions électrons-phonons. Alors, le ratio d'acceptation est défini par les quantités suivantes

$$R(a \rightarrow b) = \frac{p(b)P_{prop}(b \rightarrow a)}{p(a)P_{prop}(a \rightarrow b)}. \quad (2.118)$$

Par exemple, avec l'ajout d'un vertex, alors selon l'**Eq. 2.115** et la sous-section 2.3

$$p(n+1) = \left(\prod_{i=1}^{n+1} \frac{K_i(s)}{(2\beta N_{cl})} \right) \mathbf{Det}[\hat{\mathbf{A}}(\mathcal{C}_{n+1})] \quad (2.119)$$

$$p(n) = \left(\prod_{i=1}^n \frac{K_i(s)}{(2\beta N_{cl})} \right) \mathbf{Det}[\hat{\mathbf{A}}(\mathcal{C}_n)] \quad (2.120)$$

$$P_{prop}(n \rightarrow n+1) = \frac{1}{C_{ee}N_{cl}\beta 2} \quad (2.121)$$

$$P_{prop}(n+1 \rightarrow n) = \frac{1}{n+1} \quad (2.122)$$

$$\Rightarrow R(n \rightarrow n+1) = \frac{K_{n+1}C_{ee} \mathbf{Det}[\hat{\mathbf{A}}(\mathcal{C}_{n+1})]}{(n+1)\mathbf{Det}[\hat{\mathbf{A}}(\mathcal{C}_n)]} \quad (2.123)$$

où $C_{ee} = 2 \times 2 \times N_{orb}^2/2 - N_{orb}$ compte le nombre d'interactions électroniques (il faut choisir deux spins et deux orbitales, tout en ne comptant pas deux fois les paires). Le dernier terme découle du principe de Pauli. Le facteur 2 dans l'**Eq. 2.121** découle du choix de la valeur du spin d'Ising.

Considérons maintenant une possibilité d'interaction phonons-électrons. Les poids $p(n+1)$ et $p(n)$ sont calculés de la même façon que précédemment aux **Eq. 2.119, 2.120**. Par contre, les probabilités de propositions doivent être changées conséquemment

$$P_{prop}(n \rightarrow n+1) = p_{ee}P_{prop}^{ee}(n \rightarrow n+1)\delta_{\xi_{n+1}, \xi_{ee}} + \quad (2.124)$$

$$(1 - p_{ee})P_{prop}^{Ph}(n \rightarrow n+1)\delta_{\xi_{n+1}, \xi_{ph}} \quad (2.125)$$

$$P_{prop}(n+1 \rightarrow n) = \frac{1}{n+1} \quad (2.126)$$

Avec p_{ee} la probabilité de proposer l'insertion d'un vertex électron-électron, par exemple $1/2$. $P_{prop}^{ee}(n \rightarrow n+1)$ est donnée précédemment à l'**Eq. 2.121**.

En ce qui concerne la probabilité de proposition pour la partie interaction phononique, la façon la plus naïve de proposer l'insertion est de tirer au hasard les deux temps

imaginaires

$$P_{prop}^{Ph}(n \rightarrow n + 1) = \frac{1}{C_{Ph} N_{cl} \beta^2 2} . \quad (2.127)$$

En effet, il faut choisir une des deux valeurs de spins auxiliaires, deux temps uniformément, un site et une interaction électron-électron retardé provenant des phonons et il y en a $C_{Ph} = N_{orb}^2 \times 2 \times 2$, car il faut choisir deux orbitales et deux spins. Le principe de Pauli ici ne s'applique pas, car les deux temps sont différents.

Par contre, il est plus ingénieux d'échantillonner la différence de temps selon la distribution du propagateur de phonon normalisé [55]. L'implémentation dans le programme *ctmo2* utilise la méthodologie décrite dans l'article cité précédemment.

Le calcul des déterminants apparaissant dans les équations précédentes est une opération dispendieuse. Il existe des méthodologies ingénieuses pour calculer ces ratios de façon plus efficace. Les détails des optimisations de calculs se retrouvent dans de nombreuses références dont [37, 37, 43, 44, 47, 52]. La plupart de ces optimisations sont implémentées dans le logiciel *ctmo2*. D'autres optimisations étaient incluses dans l'ancêtre du logiciel *ctmo2*, mais n'ont pas été reconduites, car elles ne sont plus aussi pertinentes avec les ordinateurs d'aujourd'hui et sont plus instables (Sumbatrix updates).

2.5 La rigidité superfluide

Les phases de la matière qui présentent des ordres à longues portées développent des propriétés émergentes, telles des rigidités généralisées, [56, 57]. Un exemple d'une telle rigidité est la rigidité superfluide pour la phase supraconductrice. Cette rigidité superfluide est à l'origine de la cohérence de phase d'un supraconducteur. Elle est aussi associée à l'intensité de l'effet Meissner [12, 30].

Effectivement, puisque le paramètre d'ordre du supraconducteur est un nombre complexe, l'invariance de jauge de l'énergie libre fait émerger un coût énergétique associé à la variation de cette phase. La rigidité superfluide est proportionnelle à ce terme dans l'énergie libre⁶.

La rigidité superfluide peut être directement calculée en fréquences de Matsubara. La dérivation de cette quantité en fonction des fonctions de Green est faite dans plusieurs bonnes références [30, 56, 58, 59].

$$\rho_{s,\perp} = -\frac{1}{\beta} \sum_n \int \frac{d^d \mathbf{k}}{(2\pi)^d} t_\perp(\mathbf{k})^2 \text{Tr} [\sigma_3 \mathcal{G}(k, ik_n) \sigma_3 \mathcal{G}(k, ik_n) - \mathcal{G}(k, ik_n) \mathcal{G}(k, ik_n)] \quad (2.128)$$

avec τ_3 la matrice de Pauli dans l'espace de Nambu et $\mathcal{G}(k, ik_n)$ la fonction de Green de Nambu. Cette dernière est définie par l'équation

$$\mathcal{G}(k, \tau) = -\langle T_\tau \Psi(\tau) \Psi^\dagger \rangle \quad (2.129)$$

$$\Psi^\dagger = (c_{\uparrow, \mathbf{k}}^\dagger; c_{\downarrow, -\mathbf{k}}) . \quad (2.130)$$

6. Ce terme de rigidité de phase dans l'énergie libre est associé au mécanisme d' Anderson-Higgs, pour lequel un champ de jauge (le quadrivecteur potentiel) se couple à la phase du condensat (ici un condensat supraconducteur formé de paires de Cooper). Le terme de masse du champ de jauge apparaît suite à l'absorption du terme de phase du paramètre d'ordre [30]. Ce terme de masse apparaît dans la relation de dispersion du champ électromagnétique. La longueur de pénétration de London est donc simplement reliée à l'inverse de la masse du champ de jauge électromagnétique.

2.6 Transport et conductivité électrique

La quantité de transport à laquelle nous nous intéressons principalement est la conductivité électrique selon l'axe c . Cette observable est intéressante à plusieurs points de vue. Effectivement, cette quantité démontre bien les signatures du pseudogap [60]. De plus, elle est plus aisément calculée, car en première approximation, aucune correction de vertex n'est nécessaire pour l'obtenir [60].

La fonction de corrélation courant-courant selon l'axe c (que nous noterons de façon équivalente par l'axe z) est donnée par

$$\chi_{j_z j_z}(\mathbf{q}, iq_n) = \frac{-e^2}{\beta} \sum_{\sigma, ik_n} \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^3} v_z(\mathbf{k})^2 G_{\sigma}(\mathbf{k} + \mathbf{q}, ik_n + iq_n) G_{\sigma}(\mathbf{k}, ik_n). \quad (2.131)$$

Dans la dernière équation, k_n sont des fréquences de Matsubara fermioniques et q_n sont des fréquences de Matsubara bosoniques. Dans le cas où les fonctions de Green ne sont que fonctions de k_x et k_y (k_{\parallel}), et en ne prenant qu'un couplage interplan constant pour simple but de démonstration, nous obtenons la forme suivante pour l'intégrale sur $k_z = k_{\perp}$

$$\epsilon_{k_z} = -2t_{\perp} \cos(k_z) \quad (2.132)$$

$$\int \frac{dk_z}{2\pi} v_z^2 = \int \frac{dk_z}{2\pi} \left(-2t_{\perp} \frac{\partial \cos(k_z)}{\partial k_z}\right)^2 \quad (2.133)$$

$$\Rightarrow \int \frac{dk_z}{2\pi} v_z^2 = 2t_{\perp}^2. \quad (2.134)$$

Ainsi puisque les spins sont équivalents sans brisure de symétrie de renversement du temps, nous obtenons en introduisant l'Eq. 2.134 dans l'Eq. 2.131 (pour la suite des calculs, nous utilisons la notation quelque peu abusive que $\mathbf{k}_{\parallel} = \mathbf{k}$ puisque toutes les dépendances en k_z sont prises en compte par l'Eq. 2.134)

$$\chi_{j_z j_z} = \frac{-4e^2 t_{\perp}^2}{\beta} \sum_{ik_n} \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} G(\mathbf{k} + \mathbf{q}, ik_n + iq_n) G(\mathbf{k}, ik_n). \quad (2.135)$$

Maintenant, la valeur de la conductivité est donnée par une relation avec la partie imaginaire de cette fonction de corrélation

$$\sigma(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi''_{j_z j_z}(\mathbf{q}, \omega)}{\omega} \quad (2.136)$$

$$\sigma_{DC} = \lim_{\omega \rightarrow 0} \sigma(\omega, \mathbf{q} = 0) \quad (2.137)$$

Il faut donc effectuer le prolongement analytique de la fonction de corrélation courant-

courant. À cette fin, nous utilisons les représentations spectrales des fonctions de Green

$$\chi_{j_z j_z}(\mathbf{q}, iq_n) = \frac{-4e^2 t_{\perp}^2}{\beta} \sum_{ik_n} \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{d\omega''}{2\pi} \frac{A(\mathbf{k} + \mathbf{q}, \omega'')}{ik_n + iq_n - \omega''} \frac{A(\mathbf{k}, \omega')}{ik_n - \omega'}. \quad (2.138)$$

De façon usuelle dans ce genre de calcul, nous effectuons la somme sur les fréquences de Matsubara en réarrangeant les termes et en effectuant une décomposition en fractions partielles

$$\chi_{j_z j_z}(\mathbf{q}, iq_n) = -4e^2 t_{\perp}^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{d\omega''}{2\pi} \frac{A(\mathbf{k} + \mathbf{q}, \omega'')A(\mathbf{k}, \omega')}{iq_n - (\omega'' - \omega')} \quad (2.139)$$

$$\frac{1}{\beta} \sum_{ik_n} \left(\frac{1}{ik_n - \omega'} - \frac{1}{ik_n + iq_n - \omega''} \right) \\ = 4e^2 t_{\perp}^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{d\omega''}{2\pi} \frac{A(\mathbf{k} + \mathbf{q}, \omega'')A(\mathbf{k}, \omega')}{iq_n - (\omega'' - \omega')} [f(\omega'') - f(\omega')] \quad (2.140)$$

En effectuant d'abord le prolongement analytique, en prenant d'abord $q = 0$ [27], nous obtenons

$$\chi(\mathbf{q} = \mathbf{0}, \omega) = 4e^2 t_{\perp}^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{d\omega''}{2\pi} \frac{A(\mathbf{k}, \omega'')A(\mathbf{k}, \omega')}{\omega + i\eta - (\omega'' - \omega')} [f(\omega'') - f(\omega')] . \quad (2.141)$$

La partie imaginaire est par la suite obtenue par le théorème de Sokhatsky-Weierstrass

$$\chi''(\mathbf{q} = \mathbf{0}, \omega) = 4e^2 t_{\perp}^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{d\omega''}{2\pi} A(\mathbf{k}, \omega'')A(\mathbf{k}, \omega') \quad (2.142)$$

$$[-\pi\delta(\omega - (\omega'' - \omega'))] [f(\omega'') - f(\omega')] \\ = -2e^2 t_{\perp}^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \frac{d\omega'}{2\pi} A(\mathbf{k}, \omega + \omega')A(\mathbf{k}, \omega') [f(\omega + \omega') - f(\omega')] \quad (2.143)$$

Et finalement, nous obtenons le résultat final pour le calcul de la conductivité

$$\sigma_{DC} = -2e^2 t_{\perp}^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \frac{d\omega'}{2\pi} A(\mathbf{k}, \omega')^2 \left[\frac{\partial f}{\partial \omega} \right]_{\omega'}. \quad (2.144)$$

La section suivante expose des résultats obtenus en utilisant les méthodologies présentées précédemment. Plus précisément, comme discuté à la **Sec. 1**, le modèle de Hubbard sur le réseau triangulaire anisotrope est étudié comme modèle effectif pour les conducteurs organiques. Effectivement, la théorie de champ moyen dynamique sur amas (**Sec. 2.2.2**), jumelée au Monte Carlo quantique en temps continu (**Sec. 2.3**), nous donne accès aux diagrammes de phases théoriques de ces matériaux. Également, ces méthodologies permettent les calculs de la rigidité superfluide et de la conductivité électrique de ces matériaux. Ces dernières sont respectivement présentées aux **Sec. 3.2** et **3.3**.

Résultats et discussion

3.1 Superconducting dome in doped quasi-two-dimensional organic Mott insulators : A paradigm for strongly correlated superconductivity

La section suivante présente un article qui porte sur l'étude des conducteurs organiques d'un point de vue théorique en utilisant les méthodologies présentées précédemment. En utilisant le modèle de Hubbard à une bande sur le réseau triangulaire anisotrope, nous démontrons que les caractéristiques clés des diagrammes de phases des conducteurs organiques tels que κ -(ET)₂X peuvent être reproduites surprenamment fidèlement.

L'effet radical du dopage sur la plage d'existence de la supraconductivité en fonction de la pression qui est observé expérimentalement est reproduit dans l'article. De plus, la proximité entre l'isolant de Mott et la phase supraconductrice se révèle être un paradigme dans le modèle étudié dans l'espace T-P-n.

Il est important de souligner qu'un *erratum* concernant l'article suivant sera publié. Effectivement, l'Eq. 1 était en fait défini avec un signe négatif pour la partie à un corps dans le logiciel de simulation, alors qu'il est défini positivement dans l'article. Dans le cas des calculs effectués à demi remplissage, ceci n'affecte en rien les résultats, car le Hamiltonien est invariant sous transformation particule-trou.

En revanche, à dopage fini, il faut interchanger le dopage en trou et le dopage en électron. Stipulé autrement, si nous définissons le demi-remplissage (défini comme étant $n = 1.00$ dans l'article) à $n = 0.00$ (un simple déplacement du zéro de cet axe), alors cette erreur revient à multiplier l'axe de remplissage par le facteur -1 (une réflexion de cet axe). Ainsi, pour donner un exemple concret, une figure portant le remplissage $n = 0.90$ dans l'article suivant devrait être correctement identifiée comme ayant un remplissage de $n = 1.10$.

Hormis l'article qui suit, cette erreur est corrigée dans le reste du mémoire. Notons que cette erreur était répandue dans la littérature, notamment dans l'article de définition des paramètres de saut [20], pour lequel la partie à un corps de l'Hamiltonien possède une erreur de signe. De plus, plusieurs autres publications possèdent cette même erreur, comme discuté dans la référence [61].

Superconducting dome in doped quasi-2d organic Mott insulators: a paradigm for strongly-correlated superconductivity

Charles-David Hébert¹, Patrick Sémon¹, and A. -M. S. Tremblay^{1,2}
¹*Département de physique and Regroupement québécois sur les matériaux de pointe,
 Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Québec, Canada, J1K 2R1*
²*Canadian Institute for Advanced Research, Toronto, Ontario, M5G 1Z8, Canada **

(Dated: November 1, 2021)

Layered organic superconductors of the BEDT family are model systems for understanding the interplay of the Mott transition with superconductivity, magnetic order and frustration, ingredients that are essential to understand superconductivity also in the cuprate high-temperature superconductors. Recent experimental studies on a hole-doped version of the organic compounds reveals an enhancement of superconductivity and a rapid crossover between two different conducting phases above the superconducting dome. One of these phases is a Fermi liquid, the other not. Using plaquette cellular dynamical mean field theory with state of the art continuous-time quantum Monte Carlo calculations, we study this problem with the two-dimensional Hubbard model on the anisotropic triangular lattice. Phase diagrams as a function of temperature T and interaction strength U/t are obtained for anisotropy parameters $t' = 0.4t$, $t' = 0.8t$ and for various fillings. As in the case of the cuprates, we find, at finite doping, a first-order transition between two normal-state phases. One of these phases has a pseudogap while the other does not. At temperatures above the critical point of the first-order transition, there is a Widom line where crossovers occur. The maximum (optimal) superconducting critical temperature T_c^m at finite doping is enhanced by about 25% compared with its maximum at half-filling and the range of U/t where superconductivity appears is greatly extended. These results are in broad agreement with experiment. Also, increasing frustration (larger t'/t) significantly reduces magnetic ordering, as expected. This suggests that for compounds with intermediate to high frustration, very light-doping should reveal the influence of the first-order transition and associated crossovers. These crossovers could possibly be even visible in the superconducting phase through subtle signatures. We also predict that destroying the superconducting phase by a magnetic field should reveal the first-order transition between metal and pseudogap. Finally, we predict that electron-doping should also lead to an increased range of U/t for superconductivity but with a reduced maximum T_c . This work also clearly shows that the superconducting dome in organic superconductors is tied to the Mott transition and its continuation as a transition separating pseudogap phase from correlated metal in doped compounds, as in the cuprates. Contrary to heavy fermions for example, the maximum T_c is definitely not attached to an antiferromagnetic quantum critical point. That can also be verified experimentally.

PACS numbers: 74.70.Kn, 71.10.Fd, 71.30.+h, 74.20.Mn

I. INTRODUCTION

In organic charge transfer salts, such as κ -(BEDT-TTF)₂X (κ -(ET)₂X) or Et_nMe_{4-n}Pn[Pd(dmit)₂]₂ (Pd(dmit)₂), a first-order phase transition between a superconductor and a Mott insulator is induced by pressure [1–5]. These materials also present a wide range of intriguing phenomena such as unconventional superconductivity, magnetic ordering [5], pseudogap [6] valence-bond solid phases [3] and some of them are even spin-liquid candidates. [7, 8]. Excellent reviews are available. [9, 10]

The presence of the Mott transition and of spin-liquid states in the phase diagram suggests that strong electronic correlations and electronic frustration are key to the physics of the organics. The one-band Hubbard model on an anisotropic triangular lattice near half-filling is the simplest model that captures this physics [9–11], although consensus has not yet been completely reached [12, 13] on this point.

Unraveling the physics of these layered materials should also be helpful to shed light on cuprate high-temperature

superconductors. Indeed, these two classes of materials give a complementary perspective on the crucial role of the Mott transition. In the organics, the Mott transition is bandwidth-controlled whereas it is doping-controlled in the cuprates. [14, 15] The analogy between these two classes of materials has been reinforced through recent experimental studies [16] of doped organics [17, 18] that show a superconducting dome [19] as a function of pressure as well as a rapid change from non-Fermi liquid (pseudogap) to Fermi-liquid like metal at a critical pressure in the normal state. [16, 20] These analogies motivate our work. In short, our calculations explain these different features just as calculations performed with the same methods explain many of the key features of the cuprate phase diagram. [21] In particular a first-order transition at finite doping and its associated Widom line play a crucial role as in the cuprates. [22, 23] We define superconductivity as strongly-correlated when it arises in the presence of interactions larger than, or of the order of, those necessary to lead to a Mott transition at half-filling.

Some of the striking experimental results that we address and understand theoretically in this paper come from recent work on κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈ by Oike *et al.* [16]. That compound is considered as a 10% doped analog of κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃. The main observation is that maximally

* charles-david.hebert@usherbrooke.ca
 andre-marie.tremblay@usherbrooke.ca

enhanced superconductivity and a normal-state crossover to a non-Fermi liquid phase appear concomitantly around a pressure where mobile carriers decrease rapidly. Also, the range of pressures spanned by the superconducting dome in κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈ is about six times the range where it appears in the half-filled analog κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃.

We work with the Hubbard model on the anisotropic triangular lattice as a function of temperature, interaction strength U/t and filling n , for different values of frustration characterized by the ratio of near-neighbor hopping t'/t in different directions. Values for t'/t are inspired from Kandpal *et al.* [24] and from Nakamura *et al.* [25] who found, using *ab initio* density functional theory, that κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl could be modeled by $t' = 0.4t$ and κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ by $t' = 0.8t$. Comparing the results for two values of t'/t helps understand the effect of magnetic frustration on the phase diagram.

We use a cluster generalization of dynamical mean-field theory. [26–29] This approach has already led to numerous results that can be confronted with experiments, thus permitting to address important issues in cuprates, Pd(dmit)₂ and κ -(ET)₂X such as the pseudogap, superconductivity, Mott transition, magnetic ordering, thermodynamic properties, and unusual criticality in organic compounds. [15] The assumption inherent in our approach is that the main physics of the organics originates from strong correlations that occur at short distances due to on-site repulsion U and near-neighbor superexchange J that are present in the Hubbard model. This is the assumption behind the state of the art method that we use for a 2×2 cluster embedded in a self-consistent dynamical mean-field. Larger cluster calculations would be necessary if this assumption was proven incorrect. The agreement between our results at low temperature and those obtained recently through variational Monte Carlo methods helps establish the validity of the approach. [30] Agreement with several experimental facts strongly suggests that our approach is relevant for experiment. We make predictions for experiment that can falsify the theory. In the absence of an exact solution to the Hubbard model, we are making a minimum number of assumptions and suggesting experiments that can falsify them by disagreeing with the consequences.

The link between the normal state of high-temperature cuprate superconductors and that of the organics is illustrated schematically [31] in Fig. I. Disregarding temperature, the relevant variables are interaction strength U/t , doping δ , and frustration as measured by the ratio of second to first nearest-neighbor hopping t'/t . Cuprate superconductors, in the red region, are easily doped but are little influenced by pressure and the range of t'/t varies little between different compounds. Layered organic compounds on the other hand are half-filled, with a broad range of possible values of frustration t'/t from compound to compound, and their bandwidth to interaction ratio is strongly influenced by pressure. A pseudogap appears through a second-order transition when doping is increased from the yellow region containing the Mott insulating phase at half-filling. The pseudogap phase ends in a first-order manner on the magenta surface in Fig. I. The latter first order transition extends from the first-order Mott insulator-metal tran-

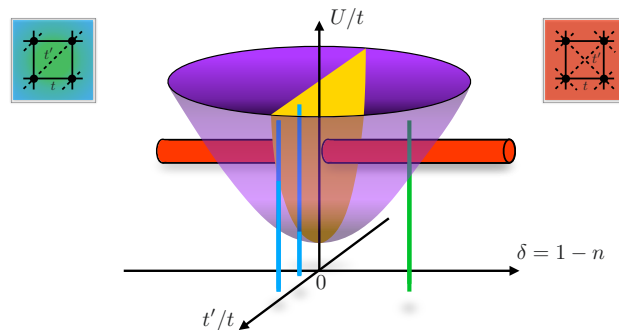


FIG. 1. Schematic generalized normal state phase diagram for the cuprates and the layered organics, in the limit of low temperature neglecting broken-symmetry phases. The yellow surface represents the Mott insulating phase at zero hole-doping $\delta = 0$, or half-filling $n = 1$. Leaving the Mott insulating phase by increasing doping yields a second-order transition to a pseudogap phase up to the magenta surface where a first-order transition to a correlated metal occurs (at least close to half-filling). That first-order transition extends from the first-order Mott metal-insulator transition that occurs at the boundary of the yellow region. Cuprate superconductors are found in the red region at negative t'/t . The half-filled layered organics are found for different t'/t along the blue regions in the zero hole-doping plane. They are strongly influenced by pressure, whose effect is represented vertically, although the ratio t'/t will generally also be influenced by pressure. A doped layered organic is found in the green region. It allows one to expand the analogy between organics and cuprates. The organic and cuprate lattices are different, as illustrated respectively by the left and right insets. Nevertheless, the physics of interactions, frustration and doping is present in both types of compounds. Superconductivity and antiferromagnetism are broken symmetry phases that are strongly influenced by the underlying normal state illustrated by this figure. In particular, the superconducting phase has a maximum T_c in the vicinity of the boundary of the magenta region.

sition occurring at half-filling at the boundary of the yellow region.

The range of parameters that could be relevant for the doped organic compound κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈ is indicated by the green region in Fig. I. This compound then offers the interesting possibility to investigate the pseudogap to correlated metal transition in the normal state by cutting the first-order magenta surface along a direction different from that of the cuprates. The effect of this transition on the superconducting state is also a key question that we address here.

The Hubbard model and the Cellular Dynamical Mean-Field Theory on a plaquette with Continuous-Time Quantum-Monte-Carlo impurity solver are presented in Sec. II. This work would not have been possible without recent improvements of this solver related to sign problem minimization, [32] ergodicity [33], and speedup. [34] We begin in Sec. III with a short summary of some previous results for the cuprates. We then present in Sec. IV results for the normal state, showing the Widom line that emerges from the first-order transition [35, 36] between a pseudogap phase and a metal. [22] This plays a crucial role for the cuprates. [21] The results in Sec. V are for two different lattice anisotropies, t'/t , or

equivalently, frustration. We investigate the Néel antiferromagnetism (AFM) and d-wave superconductivity (SC) on the same footing but the relative stability of the phases is not studied. For $t'/t = 0.4$, half-filling, 1%, 10% hole-doping and 10% electron-doping are investigated. We find for a 1% hole-doping that the maximum (optimal) superconducting critical temperature (T_c^m) as a function of pressure or (interaction strength) is enhanced by approximately 25% and the range of superconductivity is multiplied by a factor of six on the pressure axis (t/U). The range of pressure where superconductivity exists for 10% doping is similar. We also obtain the T_c^m line in the $T - U - n$ phase diagram. The case $t'/t = 0.8$ is considered only for the 10% hole-doped case and at half-filling due to a worse sign problem. Discussions in Sec. VI include the role of long wave-length fluctuations on broken-symmetry phases, the role of antiferromagnetic quantum critical points and of the Mott transition on the superconducting dome, contact with experiment, predictions, limitations of the approach, and perspectives. The most important conclusions are summarized in Sec. VII.

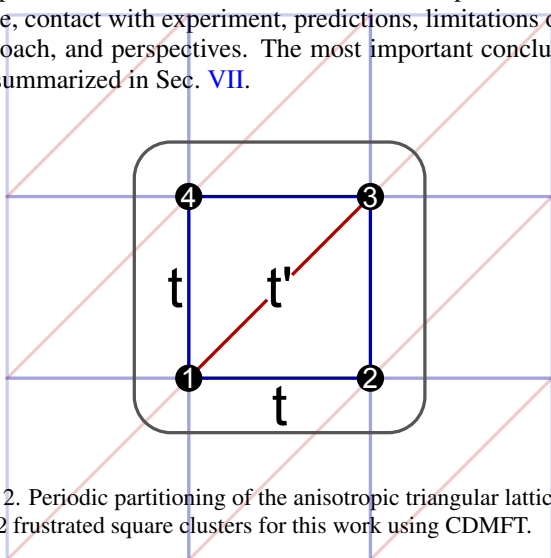


FIG. 2. Periodic partitioning of the anisotropic triangular lattice into 2×2 frustrated square clusters for this work using CDMFT.

II. MODEL AND METHOD

We consider the single band Hubbard Hamiltonian on the anisotropic triangular lattice in two dimensions

$$H = \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - \mu \sum_{i,\sigma} n_{i,\sigma} \quad (1)$$

where t_{ij} is the hopping amplitude between neighboring sites, $c_{i\sigma}$ and $c_{i\sigma}^\dagger$ respectively destroy and create an electron of spin σ at site i , $n_{i\sigma}$ is the density of electrons of spin σ at site i , μ is the chemical potential and U is the on-site Coulomb repulsion. This model was proposed several decades ago for the organics. [11] Its validity has been revisited recently for specific compounds. [37] In particular, it has been argued that near-neighbor repulsion V was important. Since previous studies for the cuprates have shown that V does not influence the phase diagram in a dramatic way in the strong-correlation limit, [38] we neglect this term in this initial study.

As illustrated in Fig. 2, we take $t_{ij} = t$ for nearest-neighbor bonds, and $t_{ij} = t'$ for the diagonal bond. The isotropic triangle is recovered for $t' = t$. The ratio t'/t is both an anisotropy parameter and a measure of magnetic frustration. The two expressions are used interchangeably. In the figures, inverse temperature β is given in units of $1/t$.

T_c stands for the superconducting critical temperature. It was called T_c^d in Ref. 39 to emphasize that it is the dynamical mean-field transition temperature, that differs from the true superconducting transition temperature. We use T_c^m for the maximum value that this quantity takes at a given doping as a function of pressure or interaction strength.

A. CDMFT

In two dimensions, momentum-dependence of the self-energy is important. Cellular dynamical mean field theory [40] (CDMFT) for the Hubbard model takes into account short-range correlations in addition to interaction-induced dynamical correlations; single-site DMFT [26] is not appropriate to study the momentum-dependence associated to d-wave superconductivity. The key approximation is to restrict the self-energy to a local cluster and neglect its spatial dependence beyond the cluster [28, 29, 41, 42].

In practice, CDMFT embeds a cluster of finite size in a non-interacting electronic bath. The impurity problem (cluster and bath) is then solved and the bath is determined self-consistently by demanding that the lattice Green function projected on the cluster equal the Green function obtained from the impurity problem.

To be more specific, the lattice Green function in Matsubara frequencies is obtained from

$$\hat{G}_{latt}^{-1}(i\omega_n, \tilde{\mathbf{k}}) = (i\omega_n + \mu) \hat{\mathbb{I}} - \hat{t}(\tilde{\mathbf{k}}) - \hat{\Sigma}_{cl}(i\omega_n) \quad (2)$$

where $\tilde{\mathbf{k}}$ is the wave vector associated with translational invariance from cluster to cluster, μ is the chemical potential, $\hat{t}(\tilde{\mathbf{k}})$ the full hopping matrix (including intra-cluster and inter-cluster hoppings) and $\hat{\Sigma}_{cl}(i\omega_n)$ is the self-energy of the cluster, imposed to be equal to the self-energy of the lattice in the CDMFT approximation. The hat on symbols specifies that they are matrices in the basis of cluster Wannier states.

The self-energy is related to the Green function of the cluster through Dyson's equation

$$\hat{G}_{cl}^{-1} = \hat{G}_0^{-1} - \hat{\Sigma}_{cl} \quad (3)$$

where the free propagator on the cluster is defined by

$$\hat{G}_0^{-1}(i\omega_n) = (i\omega_n + \mu) \hat{\mathbb{I}} - \hat{h}_{loc}^0(i\omega_n) - \hat{\Delta}_{cl}(i\omega_n), \quad (4)$$

with \hat{h}_{loc}^0 the one-body part of the Hamiltonian and $\hat{\Delta}_{cl}$ the hybridization function that defines the bath and its coupling to the cluster.

The projection of the lattice Green function on the cluster leads to the self-consistent equation for the hybridization function

$$\hat{G}_{cl}(i\omega_n) = N_{cl} \int \frac{d\tilde{\mathbf{k}}}{(2\pi)^2} \hat{G}_{latt}(i\omega_n, \tilde{\mathbf{k}}), \quad (5)$$

where N_{cl} is the number of sites on the cluster and the integral is over the reduced Brillouin zone. A high frequency expansion of both sides of this equation proves that \hat{h}_{loc}^0 is the hopping matrix within the cluster. [43]

The uniform spin susceptibility, or Knight shift, is defined by

$$S_z = \frac{1}{2} (N_\uparrow - N_\downarrow)$$

$$\chi_z(q=0, \omega=0) = \int_0^\beta \langle S_z(\tau) S_z(0) \rangle d\tau, \quad (6)$$

with N_\uparrow and N_\downarrow the total number of up and down spins, respectively, on the cluster.

The calculation starts from a guess for the hybridization function $\hat{\Delta}_{cl}$. This gives the so-called dynamical mean-field, Eq. 4, namely the free propagator for the cluster. Assuming that the impurity problem can be solved, Dyson's Eq. 3 then gives the self-energy which is needed to obtain the lattice Green function, Eq. 2, entering the right-hand side of the self-consistency Eq. 5. Using Dyson's equation again on the left-hand side of that self-consistency equation leads to a new guess for the hybridization function. This process is iterated until convergence.

Calculating the cluster impurity Green function \hat{G}_{cl} is the difficult problem. This is done here using a continuous-time quantum Monte Carlo method (CTQMC).

B. Hybridization-Expansion Continuous-Time Quantum Monte Carlo

CTQMC provides a statistically exact solution of the impurity problem exempt from imaginary-time discretization error. The large values of U/t , low temperatures and large frustration that we need can be attained only with the hybridization expansion algorithm (CT-HYB). [44] Extensive reviews of CTQMC solvers are available. [45–47]

The cluster that tiles the infinite anisotropic triangular lattice is illustrated in Fig. 2. It allows a singlet ground state. To speedup the calculations, one chooses a single-particle basis that transforms as the irreducible representations of the cluster-Hamiltonian symmetries. [47] The point group symmetry C_{2v} of the anisotropic cluster as well as charge and spin conservation lead to the following single-particle basis

$$c_{A_1\sigma} = \frac{1}{\sqrt{2}} (c_{1\sigma} + c_{3\sigma})$$

$$c'_{A_1\sigma} = \frac{1}{\sqrt{2}} (c_{2\sigma} + c_{4\sigma}) \quad (7)$$

$$c_{B_1\sigma} = \frac{1}{\sqrt{2}} (c_{1\sigma} - c_{3\sigma})$$

$$c_{B_2\sigma} = \frac{1}{\sqrt{2}} (c_{2\sigma} - c_{4\sigma}),$$

where the indices are those of Fig. 2 and where A_1, B_1, B_2 are irreducible representations of C_{2v} , A_2 being empty. In this basis, the hybridization function $\hat{\Delta}$ and cluster Green function

are both block diagonal. The largest block is 2×2 because the A_1 representation occurs twice. The calculations presented here are possible only if the angle defining rotations in this 2×2 block is chosen to minimize the sign problem. [32] In addition it is necessary to use a modification of the original algorithms to ensure ergodicity in the presence of d-wave superconductivity. [33] We also speedup the calculation with the Lazy Skip List algorithm. [34]

In normal phase studies, this basis respects the symmetries of the lattice that are compatible with the partitioning. In broken symmetry phases, such as magnetically ordered or d-wave SC, symmetry-breaking is allowed only for the hybridization function. The cluster continues to respect the original Hamiltonian symmetries. There is no mean-field factorization on the cluster.

Other popular continuous-time quantum Monte Carlo impurity solvers involve expansion in powers of the interaction. They have better scaling than CT-HYB with cluster size. However, they need very large order expansion at large U/t , which makes them converge slowly, and they have a severe sign problem at large interaction strengths U/t and frustration t'/t . [45]

C. Broken symmetry phases

The Green function for superconductivity is written in Nambu notation as

$$-\langle \mathcal{T}_\tau \Psi \Psi^\dagger(\tau) \rangle = \begin{pmatrix} \hat{G}_\uparrow(\tau) & \hat{F}(\tau) \\ \hat{F}^\dagger(\tau) & -\hat{G}_\downarrow(-\tau) \end{pmatrix}, \quad (8)$$

with $\Psi^\dagger = (c_\uparrow^\dagger, c_\downarrow)$ where c_\uparrow^\dagger and c_\downarrow are row vectors as defined by equation Eq. 7. The d-wave superconducting order parameter transforms as the A_2 representation of the C_{2v} symmetry group. Hence only entries in the Gork'ov function $\hat{F}(\tau)$ transforming as A_2 can be finite, e.g. for singlet pairing

$$\begin{aligned} \mathcal{F}_{B_1, B_2}(\tau) &:= -\langle \mathcal{T}_\tau c_{B_1\uparrow}(\tau) c_{B_2\downarrow} \rangle \\ &= -\langle \mathcal{T}_\tau c_{B_2\uparrow}(-\tau) c_{B_1\downarrow} \rangle \\ &=: \mathcal{F}_{B_2, B_1}(-\tau) \end{aligned} \quad (9)$$

To determine the region where the SC phase is allowed we calculate the order parameter

$$d_{SC} := \mathcal{F}_{B_1, B_2}(0^+). \quad (10)$$

Since antiferromagnetism does not break C_{2v} symmetry, no additional entry is needed in the Green function matrix. We only need to let up and down spins take independent values.

III. A BRIEF REVIEW OF QUANTUM CLUSTER RESULTS FOR THE CUPRATES

In this section we only briefly summarize some of the main results obtained with cluster generalizations of DMFT for the

cuprates and give a few representative references. A more detailed but not exhaustive review can be found in Ref. 15.

There are two cluster generalizations [28, 29, 41] of DMFT. We described CDMFT above. In the Dynamical Cluster Approximation (DCA) [48] the clusters are built in momentum space. Whatever the method used, all groups have found a pseudogap in the normal state near half-filling. [22, 49–54] The Mott transition at half-filling is first-order, [55, 56] and large cluster studies find [27] a d-wave superconducting transition temperature T_c at finite doping. The zero-temperature order parameter has a dome shape instead of increasing monotonously towards half-filling when the interaction strength is large enough that there is a Mott insulator at half-filling or when antiferromagnetism is allowed to compete with superconductivity. [57–63] The larger cluster studies [62] find that the dome ends at a finite doping away from half-filling.

All methods agree with the existence of crossovers at high-temperature associated with the opening of a pseudogap as doping is reduced towards half-filling. On 2×2 clusters with the CT-HYB solver it was possible to reach lower temperatures than previous studies. Scanning chemical potential over a very fine mesh allowed the discovery of a first-order transition in the normal state at finite doping. [22] That first-order transition ends at a critical point that is continued as a Widom line in the supercritical region. That first-order transition with its Widom line then becomes an organizing principle for the observed crossovers and for the superconducting dome. The Widom line is described in more details in the following section that begins our discussion of organics. Earlier work on normal state first-order transitions at finite-doping is discussed at the end of that section.

IV. NORMAL STATE PSEUDOGAP, FIRST-ORDER TRANSITION, AND WIDOM LINE

The first-order Mott transition at half-filling is well documented. [64, 65] The blue shaded region in Fig. 5(a) identifies the region of parameter space where normal-state hysteresis is found. Metallic and insulating states there can coexist. The results are similar to those obtained at half-filling in the unfrustrated case $t' = 0$. [55, 56] The positive slope of the transition in the $T - U$ plane (negative in the $T - t/U$ plane) comes from the smaller entropy of the insulating phase compared with the metallic phase, as deduced from Clausius-Clapeyron arguments. [1, 36] Indeed, from $dG = -SdT + DdU + \mu dn$, where G is the Gibbs free energy, S the entropy, D double occupancy, and n the filling, we find that the slope of the transition line is

$$\frac{dT}{dU} = \frac{D_I - D_M}{S_I - S_M} \quad (11)$$

where index I is for the insulating phase and M for the metallic one. The smaller entropy of the insulating phase comes from the tendency to form local singlets. [1, 22, 35, 36]

In this section, we focus on the less familiar first-order transition found at finite doping. Consider the case $t' = 0.4t$

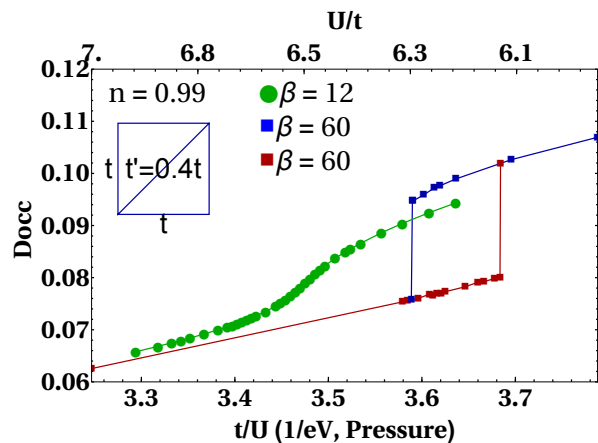


FIG. 3. Double occupancy D_{occ} as a function of pressure (bottom horizontal axis) or interaction strength U/t (top horizontal axis) for fixed filling, $n = 0.99$. The value $t = 0.044$ eV is used to convert to physical units. [64] The lower horizontal axis is labeled t/U to suggest the pressure dependence, but the numbers on that horizontal axis are given by the value of $1/U$ expressed in electron-Volt using the above conversion factor. At $T = t/60$ there is a first-order hysteresis region: the brown squares are obtained from the insulating solution and the blue squares for the conducting solution. At $T = t/12$, there is no hysteresis, only an inflexion point that determines the Widom line.

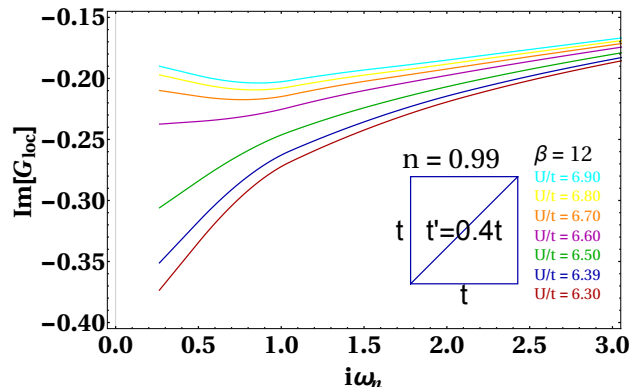


FIG. 4. The imaginary part of the Matsubara Green function $\text{Im} G(i\omega_n)$ plotted as a function of Matsubara frequency gives information about the density of states at the Fermi level, $-2\text{Im} G(i\omega_n \rightarrow i\eta)$ with $\eta \rightarrow 0$. The behavior differs depending on the value of U/t . The decrease towards zero or the density of states at larger U/t indicates a pseudogap, while its increase at smaller U/t indicates a metallic phase.

at 1% doping, namely $n = 0.99$. Fig. 3 shows two jumps of double-occupancy delimiting a coexistence region at low temperature, and a smooth dependence on U/t at high temperature. The jumps at low-temperature define the hysteresis region of a first-order transition. The low pressure phase exhibits a pseudogap while the high-pressure phase is a more standard metal. The inflexion point at high temperature defines a crossover. The locus of these inflexion points is associated with the so-called Widom line of the first-order transition.

In the theory of fluids, the Widom line is defined as the line where the maxima of different thermodynamic response functions touch each other asymptotically as one approaches the critical point of the first-order transition. [66] Investigations on the phase diagram of fluids have shown drastic changes in the dynamics upon crossing the Widom line. [66, 67] By analogy, in the cuprates the Widom line has been identified as the organizing principle for the pseudogap and resulting phase diagram of the high-temperature superconductors. [21–23, 68]

In the present context, along the Widom line a crossover from a metallic state to a pseudogap metal is also seen. This is illustrated by the frequency dependence of the imaginary part of the *local* Matsubara Green function $\text{Im}(G(i\omega_n))$ in Fig. 4 at T slightly above the critical point of the first-order transition. For large values of U/t , $\text{Im}(G(i\omega_n))$ aims upwards as frequency decreases, indicating a small density of states at the Fermi level, consistent with a pseudogap. By contrast, for smaller values of U/t , $\text{Im}(G(i\omega_n))$ extrapolates to a finite density of states at the Fermi level, consistent with an ordinary metal. We suggest that this crossover corresponds to the one seen experimentally in doped organics. [16, 20] At lower temperature, the transition between the pseudogap metal and the more ordinary metallic phase occurs discontinuously through the first-order transition illustrated in Fig. 3.

Fig. 5(b) displays the normal state phase diagram at 1% doping. There is a coexistence region, in blue, coming from the first-order transition and a Widom line that extends above the critical point of that first-order transition. There is also a Widom line in the half-filled case (not shown). In the context of the cuprates, this first-order transition was found at fixed U/t as a function of doping. [22, 35, 36] The results in those papers [22, 35, 36] clearly show a surface of first-order transitions that is continuously connected to the Mott transition at half-filling. [69] The results of Fig. 5(b) are in a way a constant doping cut of the finite t' version of that first-order surface. The critical point in Fig. 5(b) occurs at a temperature about 60% lower than the corresponding temperature at $n = 1$. That rapid drop is also observed in the square-lattice results.

We end this section with brief comments on early work on the doping-induced Mott transition of the Hubbard model. In single-site DMFT, [70] it was found for $t' = 0$ that upon doping there is a first order transition between a half-filled Mott insulator and a finite-doping metal. Essentially the same result was found with DCA for the square lattice and various positive t'/t (electron-doped case in the language of cuprates). [71] Later work with the same methods [72] suggested that at $t' = 0$ there is a quantum-critical point instead of a first-order transition but the lowest temperature reached was large compared to those where the first-order transition was found in CDMFT with CTQMC solver. [22, 35, 36] CDMFT studies with an exact diagonalization solver [52] also found a clear first-order transition for positive t'/t on the cuprate square lattice. As in Refs. [22, 35, 36], that first-order transition separates a pseudogap phase and a metal instead of a separating a Mott insulator and a metal as found in the above early DCA study. [71] In that study, [71] it was noted that the phase transition appeared only for U/t larger than the bandwidth. How-

ever, it was in the work of Refs. 22, 35, and 36 that the critical end line of the finite-doping surface of first-order transitions in the (U, T, δ) space of parameters was shown to be connected to the critical end point of the Mott transition at half-filling. This is an important step to differentiate strong and weak correlation effects. [15] The pseudogap phase appears at finite doping only if there is a Mott insulator at half-filling. At zero temperature the transition between the Mott insulator and the pseudogap phase is second order. [35, 36] The pseudogap is then different from the Mott gap even though they both appear in the generalized phase diagram. [22] The significance and existence of the Widom line was noted in Refs. 22, 23, and 68.

V. PHASE DIAGRAM, INCLUDING SUPERCONDUCTIVITY AND ANTIFERROMAGNETISM

We present phase diagrams for the normal state, Néel antiferromagnetism (AFM) and d -wave superconductivity (SC). In CDMFT, AFM and SC fluctuations are treated on equal footing both on the cluster and in the bath but we only allowed one symmetry-breaking at a time. Values for t'/t are inspired from Kandpal and *al.* [24] and from Nakamura and *al.* [25] Using *ab initio* density functional theory, they found that κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl could be modeled by $t' = 0.4t$ and κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃ by $t' = 0.8t$. However, extensive Hückel calculations had previously found higher frustration (t'/t) values for these compounds [73]. We have to keep in mind these uncertainties when we make contact with real materials.

We present first the case $t' = 0.4t$, then $t' = 0.8t$. The intermediate frustration $t' = 0.4t$ results are presented first because the sign problem is less severe in that case, allowing a more thorough investigation of the SC phase diagram. Even though the SC phase would be mostly hidden by antiferromagnetism in this case, we find that the results for the pure SC phase (forbidding AFM) are qualitatively similar to the results we discuss for larger frustration $t' = 0.8t$. In the later case, AFM is generally sufficiently suppressed that its neglect is justified. We are restricted to commensurate antiferromagnetism. We also did not allow non-collinear spin order. A more in-depth discussion of magnetic order and its impact on the presence of SC in real compounds can be found in subsections VB and VIA.

A. $t' = 0.4t$

Our results for the phase diagrams at different dopings are summarized in Fig. 5. A few more properties for the SC phase are displayed in Fig. 8. Let us discuss the various phases in turn.

The phase diagram at half-filling Fig. 5(a) depicts the phase diagram at half-filling. The blue region delimits the metal-insulator coexistence region associated with the first-order Mott transition in the normal phase. The critical value of U/t agrees within error bars with previous results. [12, 74] The d -wave SC phase is observed in proximity to the normal-

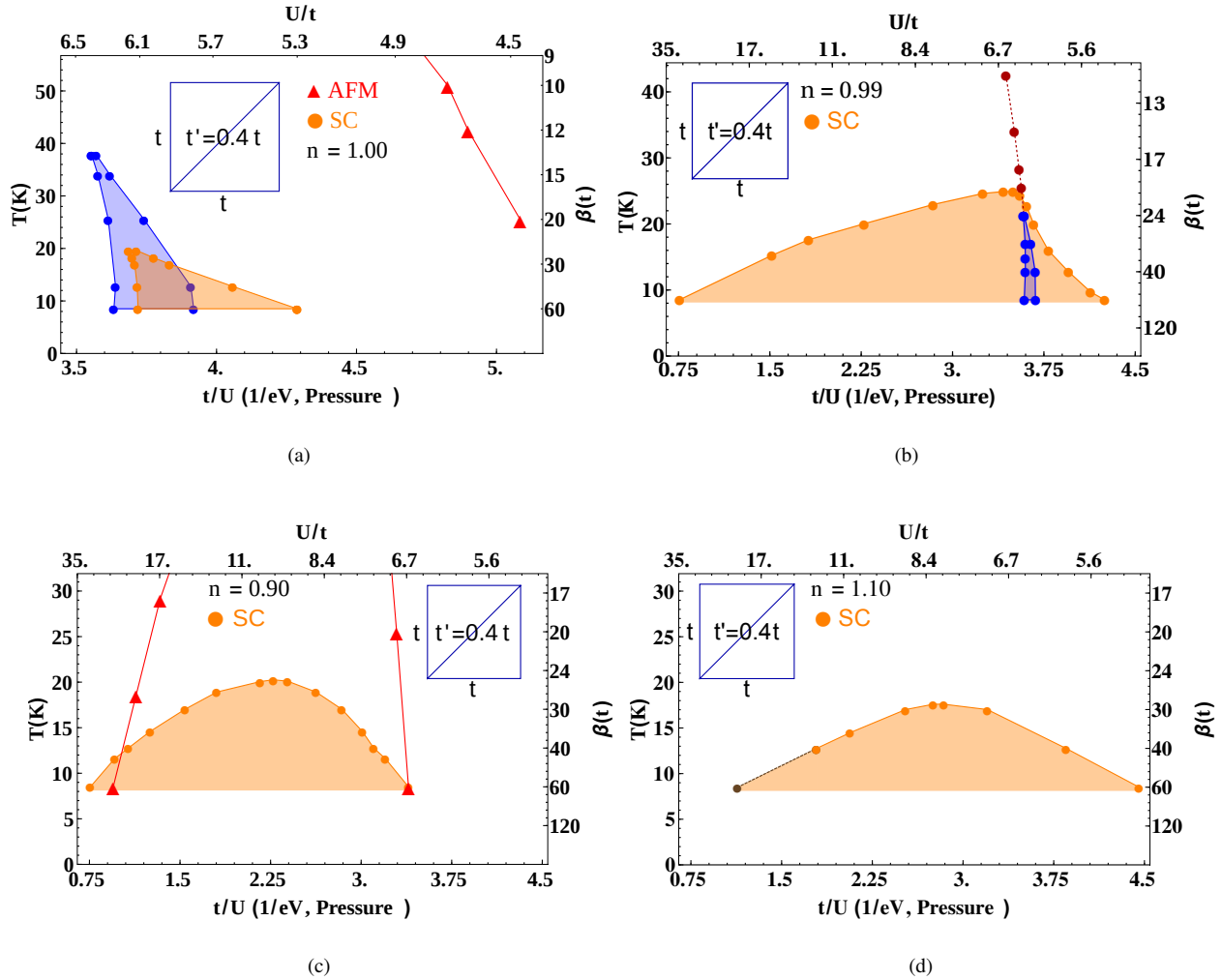


FIG. 5. (color online) Phase diagrams for the Hubbard model on the anisotropic triangular lattice with $t' = 0.4t$ for various fillings. The antiferromagnetic state has been studied for the half-filled case and for 10% doping. The value $t = 0.044$ eV is used to convert to physical units. [64] The lower horizontal axis is labeled t/U to suggest the pressure dependence, but the numbers on that horizontal axis are given by the value of $1/U$ expressed in electron-Volt using the above conversion factor. The same convention is used throughout the paper. Lines are guides to the eye.

(a) Phase diagram for the half-filled case. In the blue region, the Mott insulator and the metallic state coexist. At the blue points, we find a first-order jump in the normal state double occupancy. The lines between the points can be identified as the spinodal lines. d-wave superconductivity occurs in the orange region: Decreasing pressure, we find a first-order jump of the SC order parameter to zero at the orange points while upon increasing pressure we find a second-order transition. The AFM phase occurs below the red line that interpolates between the triangles where we find the Néel second-order transition.

(b) Phase diagram for the 1% hole-doped case. The colors have the same meaning as for the half-filled case, except that in the blue region two different metallic states are found instead of a metallic and an insulating state like at half-filling. First-order jumps are observed at the blue points. There is coexistence in the blue region. Also, the red dots connected to the blue region indicate a strong crossover (Widom line) between a pseudogap state at small pressure (large U/t) and a metallic state at large pressure (small U/t). Orange points denote where we detect a second-order transition from the SC state to the normal state.

(c) Phase diagram for the 10% hole-doped case. The transitions between the normal and SC state (orange circles) are second-order. The AFM phase is between the red lines. These lines interpolate between the second-order Néel transition that we find where the triangles are located.

(d) Phase diagram for the 10% electron-doped Hubbard model. The brown dot and line are extrapolations. The transitions between the normal and SC state (orange circles) are second-order.

state first-order Mott transition. When pressure is increased in the SC phase, (interaction strength is decrease), it disappears in a second-order manner. The zero-temperature results obtained previously [74] suggest that in that limit the SC phase in Fig. 5(a) will extend beyond the phase boundary for AFM. When pressure is decreased, SC gives way to the insulating phase through a first-order jump. The maximum SC critical temperature (T_c^m) is attained close to the Mott transition to the insulator. All the qualitative results agree with previous theoretical studies on the unfrustrated square lattice at finite temperature [39] as well as with experimental observations in various organic compounds of the κ -(ET)₂X family and of the Pd(dmit)₂ family [1–3].

Note that the low-pressure boundary (spinodal line) where the metastable metallic phase disappears discontinuously in favor of a stable insulator does not coincide with the low pressure boundary where the SC phase disappears discontinuously. The two boundaries are however in very close proximity. There is no reason for the regions of metastability of the normal and superconducting phases to exactly coincide.

When AFM order is permitted, it dominates a wide area in the temperature-pressure ($T - P$) plane. The maximum of the SC dome does not coincide with an AFM quantum critical point, as can be seen for example in 5(c). Further results on AFM appear in Fig. 9(a) and are discussed in Secs. VB and VIA. Zero-temperature studies obtained with CDMFT [74] and with other methods [75, 76] do suggest that for this value of t'/t AFM is the most stable magnetic phase.

Phase transition between pseudogap phase and metallic phase For small hole doping (1% in Fig. 5(b)) one finds the first-order transition discussed in Sec. IV. The region where hysteresis is found is indicated by the blue region in Fig. 5(b). Comparison with half-filling in Fig. 5(a) demonstrates that this transition is continuously connected to the first-order metal-insulator Mott transition and that it occurs at larger interaction strength as doping is increased, as suggested by the border of the magenta region in Fig. I. In other words, upon doping, the Mott insulator evolves continuously into a conducting pseudogap phase different from the metallic phase at larger pressure. This is in complete analogy with the results found previously [35, 36] for the unfrustrated square lattice. [77] Our results are qualitatively similar to those of Fig. 1 of Ref. 35 for the square lattice. We indeed also find that the first-order transition occurs at lower temperatures as doping is increased and is not accessible to our simulations for hole-dopings as small as 4% for temperatures down to $T/t = 1/60$ and interaction strength up to $U/t = 20$.

The type of pseudogap discussed here is a strong-correlation effect as follows from the fact that it appears in a phase that exists only for values of U/t large enough for a Mott insulator to exist at half-filling. This pseudogap is however very different from the Mott gap. [15, 22, 50]

AFM We did not systematically study the effect of doping on the AFM phase. Nevertheless, Table I is suggestive. Hole-doping pushes the AFM phase to lower pressures (higher interaction strengths U/t). For example, at 10% hole-doping, the critical pressure for the Néel transition at $T/t = 1/20$ is decreased by about 35% (Fig. 5(c)) compared to the half-filled

case. By contrast, electron-doping brings the Néel transition to higher pressure values (to lower interaction strengths U/t) (not shown here). A calculation of the Lindhard function shows that this can in part be attributed to better nesting in the electron-doped case.

| n | 1.10 | 1.00 | 0.99 | 0.90 |
|------------|-------------|---------------|-------------|-------------|
| U/t | 3.20 ± 0.05 | 4.465 ± 0.005 | 4.60 ± 0.05 | 6.9 ± 0.1 |

TABLE I. Filling dependence of U_N/t for $T/t = 1/20$. For $U/t > U_N/t$ the AFM phase is stable at that temperature

The SC State Fig. 5 illustrates the dramatic effects of doping on the SC phase. For 1% hole-doping (Fig. 5(b)), the SC dome is extended by a factor of six on the pressure axis at $T/t = 1/60$ compared with the half-filled case shown in Fig. 5(a), while T_c^m (the maximum T_c) is enhanced by approximately 25%. Suppressing the Mott insulating phase by doping allows the SC state to extend its stability far beyond the critical interaction strength for the Mott transition at half-filling (U_{MIT}). Comparison of Fig. 5(b) and Fig. 5(c), reveals that increasing hole-doping moves T_c^m to lower pressures. At 10% hole doping, T_c^m decreases slightly (by about 1%) compared to the half-filled case. By contrast, Fig. 5(d) shows that electron-doping (10%) displaces T_c^m to significantly lower temperature compared to half-filling (about 15%). The value of T_c^m as a function of doping appears in Table II. As suggested by this Table and Figs. 5(b), 5(c), the maximum doping for T_c^m is found for intermediate hole-doping at a value of U/t that is doping dependent. This is illustrated in Figs. 6 and 7. Too much hole-doping (10%) or electron-doping (10%) effectively reduces T_c^m . Nevertheless, every doping that we studied exhibits an enhancement of the range where the SC state appears on the pressure axis when compared with half-filling.

| n | $(U_c^m/t; \beta_c^m), t' = 0.4t$ | $(U_c^m/t; \beta_c^m), t' = 0.8t$ |
|----------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| 1.10 | (8.3 ± 0.2; 29.0 ± 0.2) | — |
| 1.00 | (6.15 ± 0.02; 25.0 ± 0.5) | (7.78 ± 0.02; 35.0 ± 0.5) |
| 0.99 | (6.6 ± 0.2; 20.5 ± 0.5) | — |
| 0.98 | (6.8 ± 0.2; 18.9 ± 0.1) | — |
| 0.97 | (7.2 ± 0.3; 19.2 ± 0.5) | — |
| 0.96 | (7.3 ± 0.2; 19.5 ± 0.5) | — |
| 0.94 | (8.0 ± 0.5; 20.8 ± 0.3) | — |
| 0.92 | (9.0 ± 0.5; 22.5 ± 0.5) | — |
| 0.90 | (10.5 ± 0.5; 25.2 ± 0.2) | (14.5 ± 0.5; 37.0 ± 0.5) |

TABLE II. Estimated CDMFT values of the maximum superconducting transition temperature and corresponding interaction strength ($U_c^m/t; \beta_c^m$) ($T_c^m = 1/\beta_c^m$) for various fillings and two values of frustration t'/t .

The general aspect of the dome near the triangular right part of Figs. 5(a) and 5(b) shows that this section of the SC state for the 1% hole-doped case is continuously connected to the SC phase at half-filling. For the range of U/t that is insulating at half-filling, the SC transition temperature as a function of doping at fixed U seems however to vanish extremely steeply between 1% and 0% doping, by analogy with cuprates. [33, 39, 63] Larger cluster calculations for the

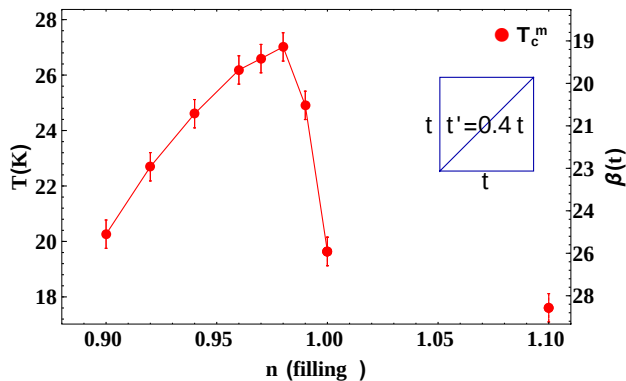


FIG. 6. Superconducting T_c^m as a function of filling and U/t projected in the $T - n$ plane. The actual values of T, U, n are listed in Table II.

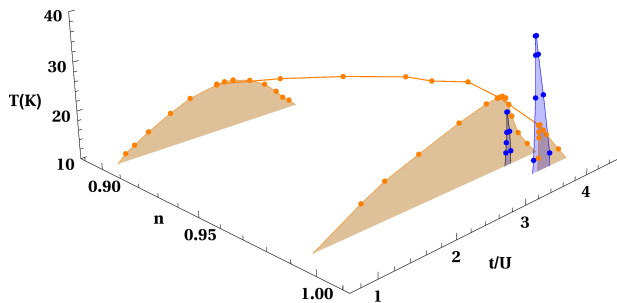


FIG. 7. Superconducting phase diagram combining in $T - U - n$ space the constant-doping $T - U$ planes of Fig. 5. The line of T_c^m in Fig. 6 also appears on this plot.

cuprates [78] suggest the existence of a smooth maximum. The overall qualitative shape of the SC phase diagram as a function of $T - U - n$ shown in Fig. 7 combines the results of Fig. 5. The line of T_c^m from Fig. 6 also appears on this plot. The constant doping scans of this plot are complementary to the constant U/t scans of Refs. 35 and 36.

The order parameter and the uniform susceptibility in the SC state (discussed below) illustrate in more detail the evolution from half-filling to finite doping.

Order parameter and magnetic susceptibility in the SC state Fig. 8 displays the d-wave SC order parameter (d_{SC}) calculated using Eq. 10 for $t' = 0.4t$. As seen in Fig. 8(a) for half-filling, d_{SC} is largest near the first-order transition to the insulating phase. This confirms previous $T = 0$ results [74]. Also, as one would expect, as the temperature is raised, the magnitude of d_{SC} and the range of pressure where it is non-zero decrease. Furthermore, d_{SC} obtained at $T = 0$ in Ref. [74] and at low T in Fig. 8(a) follows qualitatively the same pressure dependence as T_c obtained here.

Fig. 8(b) indicates that the pressure dependence of d_{SC} at low temperatures also follows qualitatively that of T_c for all other fillings studied, except for the 1% hole-doped case, where an anomaly is present near the pseudogap to metal tran-

sition (Fig. 8(c)). This is analog with the unfrustrated square lattice where the doping dependence of the low T value of d_{SC} does not follow that of T_c in the under-doped regime [23, 39].

The pseudogap to metal transition leaves some traces in the SC state at 1% doping through signatures in certain observables, such as the uniform susceptibility, $\chi_z(q = 0, \omega = 0) = \chi_z$ Eq. 6. Indeed, as shown in Fig. 8(c), near the value $U = U_{MMT}$ where the transition between pseudogap and metal phases occurs in the normal state, the uniform susceptibility in the SC phase (blue squares) shows a large variation, suggesting a crossover in the fundamental metallic properties of the system, even in the SC state: over a small range of U/t (0.3), χ_z varies by a factor of 4.3 when U_{MMT} is crossed. Upon decreasing pressure, d_{SC} (green diamonds) also starts to weaken. This last characteristic is reminiscent of the half-filled case, where d_{SC} dies out at the first-order transition to the insulating phase (Fig. 8(a)). Note by comparing Fig. 5(b) and Fig. 8(c) that T_c does not change as drastically as $\chi_z(q = 0, \omega = 0)$ or d_{SC} upon crossing $U = U_{MMT}$. The value U_c^m , corresponding to the maximum T_c , differs slightly from the value where d_{SC} is maximum.

For the 10% hole-doped case (and 10% electron-doped case, not shown), d_{SC} is anti-correlated to χ_z . This is illustrated in Fig. 8(d). This behavior is expected since it becomes more difficult to align the spin of the electrons along a magnetic field when more singlet pairs are formed. By contrast with the 1% doping case, for 10%, the first-order pseudogap to metal transition is not found at accessible T and U/t , so χ_z shows no peculiar behavior.

The $T = 0$ extrapolations of our results are consistent with the variational Monte Carlo results of Watanabe *et al.* [30] for the same model. In the normal state they find a rapid crossover between two different metallic states at finite-doping. They also find that the SC phase for $t' = 0.4t$ is stable between $U/t = 5$ and $U/t = 30$ for a hole-doping of 8.3%. Our numbers are $U/t = 6.70$ and $U/t = 30$ for 10% hole-doping at $T/t = 1/60$.

B. $t' = 0.8t$

We move to the case $t' = 0.8t$, contrasting the results with the less frustrated case $t' = 0.4t$ just considered. We expect that for larger frustration, both SC and AFM will be negatively affected, leaving more room to effects related to the Mott transition. However, as we shall see, the effects of frustration are much stronger on the AFM than on the SC and normal states.

For compounds with $t' = 0.4t$, Fig. 9(a) shows that $T = 0$ AFM order would mask the Mott transition, and leave either a small region of SC at large pressure and very low temperature, or coexisting AFM and SC phases.

Figs. 10(a) and 9(b) at half-filling demonstrate that larger frustration, $t' = 0.8t$, is more detrimental to AFM order than to SC order. The maximum Néel transition temperature for the AFM phase occurs at ($T/t \sim 1/3.5$, $U/t \sim 8.2$) for intermediate frustration, $t' = 0.4t$ Fig. 9(a), whereas for $t' = 0.8t$

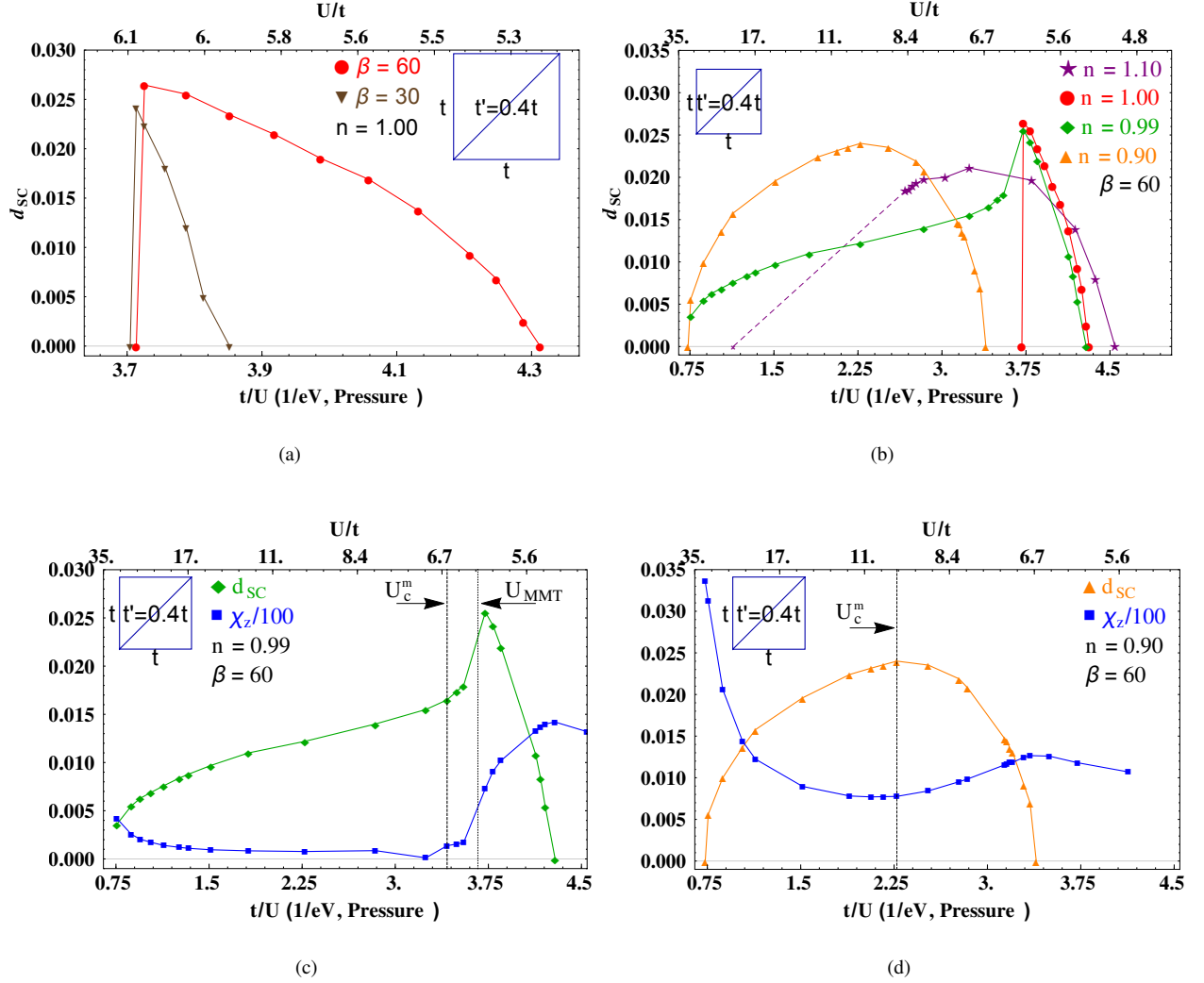


FIG. 8. (color online) Order parameter (d_{SC}) and uniform susceptibility (χ_z) for the superconducting phase of the Hubbard model on the anisotropic triangular lattice with $t' = 0.4t$. Each filling has its specific color and plotmarker in the various panels of this figure and those of Fig. 11. Lines are guides to the eye.

- (a) d_{SC} for the half-filled case. Two different temperatures are plotted.
- (b) d_{SC} for various fillings. The temperature is $T/t = 1/60$. The dashed purple line is an extrapolation.
- (c) d_{SC} (green diamonds) and χ_z (blue squares) for the 1% hole-doped case. χ_z is divided by 100 to fit on the same vertical axis. U_{MMT} denotes the vicinity of interaction strengths where the pseudogap to metal first-order transition discussed in Sec. IV is found. U_c^m stands for the critical interaction strength associated with T_c^m , the maximum T_c .
- (d) d_{SC} (orange triangles) and χ_z (blue squares) for the 10% hole-doped case. χ_z is divided by 100 to fit on the same vertical axis. U_c^m has the same significance as in (c). The orange curve for d_{SC} is the same as in (b).

in Fig. 9(b) one finds ($T/t \sim 1/8.25$, $U/t \sim 10$). Thus, the maximum AFM transition temperature is decreased by a factor of about 2.4. By contrast, the maximum T_c decreases by about only 25%. This is the expected effect of frustration and it agrees qualitatively with FLEX calculations [79]. However, FLEX is not valid across a Mott transition. Concerning the nature of the AFM phase, $T = 0$ studies with CDMFT [74] on 2×2 cluster, find that between $t'/t = 0.7$ and $t'/t = 0.8$, superconductivity at the first-order transition changes from coexisting with a commensurate AFM phase to coexisting with a phase that is not magnetically ordered. Vari-

ational Monte Carlo studies find that commensurate AFM is stabilized for [76] $t'/t < 0.75$ or even $t'/t < 0.9$ [75], consistent with our results. The latter early study however finds that magnetic states are always more stable than superconductivity.

Long-wavelength AFM fluctuations are also detrimental to long-range order since the Mermin-Wagner-Hohenberg theorem requires that the Néel transition temperature (T_N) vanish in the absence of coupling to the third dimension. The T_N lines that we find here are only indicators for the onset of the renormalized classical regime where low-frequency

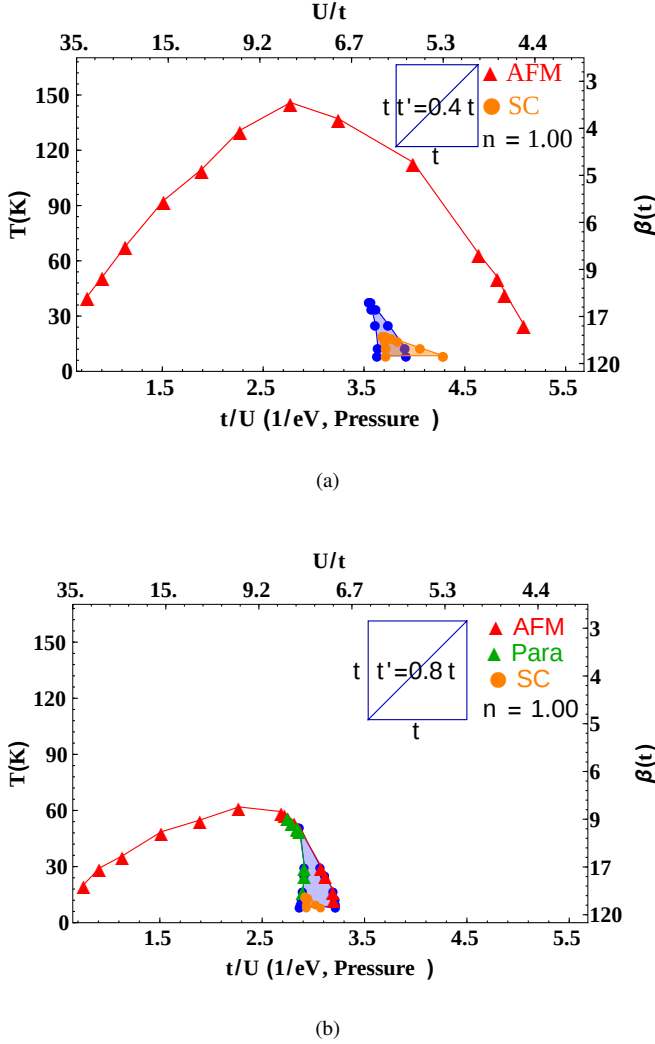


FIG. 9. Phase diagrams for the Hubbard model on the anisotropic triangular lattice. β is the inverse temperature in $1/t$ units. The value $t = 0.044$ eV is used to convert to physical units. [64] Lines are guides to the eye.

(a) Phase diagram at half-filling for an anisotropy parameter $t' = 0.4t$. This figure is the same as Fig. 5(a) except that it shows the complete antiferromagnetic phase.

(b) Phase diagram at half-filling for an anisotropy parameter $t' = 0.8t$. This figure is the same as Fig. 10(a) except that it shows the complete magnetic phase.

long-wavelength AFM fluctuations become important. Furthermore, as discussed in V A, hole-doping also suppresses T_N .

The above considerations suggest that for $t' = 0.8t$ our results for the normal state pseudogap to metal transition and for the SC phase are observable at finite temperature in real materials. The crossover discussed in Secs. V A and IV also occurs for $t' = 0.8t$ and is thus a fundamental feature of systems near half-filling. For 1% hole-doping, we found the first-order transition at $U/t \sim 8$. However, the pseudogap to metal

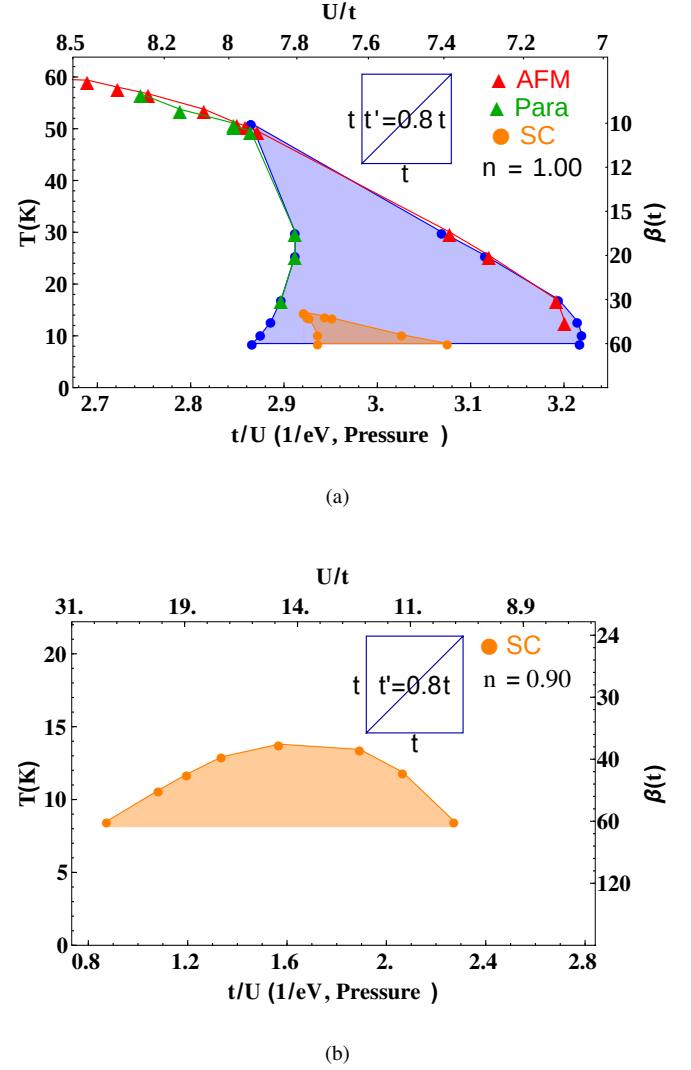


FIG. 10. (color online) Phase diagrams for the Hubbard model on the anisotropic triangular lattice with anisotropy parameter $t' = 0.8t$ and two fillings. The antiferromagnetic state was studied at half-filling and also for $n = 0.9$. In the latter case, no AFM was found for T down to $1/60$ and $8 < U/t < 30$. The value $t = 0.044$ eV is used to convert to physical units. [64] Lines are guides to the eye.

(a) Phase diagram for the half-filled case. Metallic and insulating phases coexist in the blue region. A first-order jump in the normal-state double occupancy is found at the blue points. The value of the critical point for the Mott transition is $(U/t = 7.93, \beta = 10.00)$. With increasing pressure, we find at the red triangles that the Néel AFM order parameter disappears (to the right of the red line) through a first-order jump for $\beta > 10$ and through a second-order transition for $\beta < 10$. When pressure is decreased, the paramagnetic metal is unstable to the AFM insulator along the green line through a first-order jump ($\beta > 10$) or through a second order transition ($\beta < 10$). The orange region is where superconductivity manifests itself. The SC state gives way to the insulating phase along a first-order jump upon decreasing pressure, and to the metallic phase along a second-order transition line upon increasing pressure.

(b) Phase diagram for the 10% hole-doped case. The transition from the SC state to the normal state is second-order.

transition and especially the SC phase were particularly difficult to study extensively due to a worse sign problem, hence they are not displayed.

Results for the 10% doped case are shown in Fig. 10(b). The SC phase is present for a much broader range of pressure than in the half-filled case (Fig. 10(a)). Furthermore, the SC dome is shifted to lower pressure. These effects of hole-doping for $t' = 0.8t$ are very similar to those for $t' = 0.4t$. Again, the effect of frustration on the superconducting T_c is much smaller than on T_N . Indeed, T_N changes from a finite value at $t'/t = 0.4$ (Fig. 5) to zero at $t'/t = 0.8$, while the maximum T_c decreases only by about 30%.

SC order parameter Fig. 11 displays d_{SC} calculated with Eq. 10 for half-filling and for 10% doping. The qualitative observations made for $t' = 0.4t$ for 10% doping still hold here at larger frustration, namely the pressure dependence of d_{SC} at low temperatures follows qualitatively that of T_c and doping increases drastically the range of the SC dome on the pressure axis. Here too, the uniform susceptibility is anti-correlated to d_{SC} .

Additional comparisons with earlier results

The range of U/t where the SC phase appears for 10% hole-doping and $t' = 0.8t$, namely $10 < U/t < 26$ for $T/t = 1/60$, is similar to that found [30] with the variational Quantum Monte Carlo method for 8.3% hole-doping at $T = 0$, namely $10 < U/t < 25$.

At half-filling, the shape of the coexistence region in our normal state phase diagram differs from that found on a three site cluster with CDMFT with exact diagonalization solver by Liebsch *et al.* [64] Also, on the doped three-site cluster the pseudogap is not observed in the isotropic limit [80]. These differences are not surprising since the ground state entropy of clusters with an odd or even number of sites is very different. The four site cluster results of Ohashi and *al.* [65] for the transition line have a slope of the same sign as us in the $T-U$ plane but the actual values of U and especially T differ, a difference that may come from the systematic imaginary-time discretization errors of the Hirsch-Fye algorithm.

Our results extrapolated to $T = 0$ are consistent with earlier CDMFT results obtained with an exact-diagonalization impurity solver. [74] Here we also find with decreasing pressure that the system changes from a paramagnetic metal, to a superconductor to an AFM insulator. In Ref. 74, the AFM phase boundary at sufficiently large frustration coincides with the Mott transition. This is consistent with the extrapolation to $T = 0$ of the coincidence in Fig. 10(a) between two transitions found with increasing pressure, namely the first-order jump between the AFM state and the paramagnetic metal and (when AFM long-range order is forbidden) the first-order jump between the Mott insulator and the paramagnetic metal. At smaller frustration, this does not occur: Upon decreasing pressure (or increasing U), the AFM transition occurs before the Mott transition, as can be seen for $t'/t = 0.4$ in Fig. 9. Also, as seen in Fig. 9, the critical value of U/t for the Mott transition at half-filling increases with frustration t'/t , in agree-

ment with Refs. [74, 81]. This is reflected in the qualitative shape of the magenta region in Fig. 1. The Mott transition on the anisotropic triangular lattice has been studied with many other methods, for example path integral renormalization group [82]. The critical value of U/t found with the latter method is smaller than that in CDMFT. Note finally that it has been found earlier in different contexts that depending on frustration t'/t , AFM transitions can be of first or second order [83–85].

The $T = 0$ magnetic phases found for various values of t'/t and U/t with the variational cluster approximation [86–88] exact diagonalization of an effective model [89], variational Monte Carlo, [75, 76] and dual-fermions [87] are similar to those found with CDMFT in Ref. 74, except that here and in Ref. 74 the possibility of spiral order has not been investigated. Nevertheless, according to Refs. [75, 76, 90], commensurate AFM of the type we find can be stable up to $t'/t \sim 0.8$. In [75] superconductivity is always less stable than AFM but this is not so in weak correlation approaches such as FLEX [79] or functional renormalization group [91]. With the latter approach, superconductivity is also obtained for $t'/t = 1$ but symmetry considerations in this case are different. [92] At half-filling, it has been widely appreciated for a long time by many methods that superconductivity is stable for a wide range of values of t'/t : in variational [93, 94] CDMFT [74] Gutzwiller [95] resonating valence bond [96] approaches.

VI. DISCUSSION

A. Broken-symmetry phases

Although phase transitions in CDMFT are renormalized by local dynamical fluctuations, they essentially have a mean-field character. In particular, they do not satisfy the Mermin-Wagner-Hohenberg theorem that forbids continuous-symmetry breaking at finite temperature in two dimensions. [97] This is especially relevant for AFM order, which we overestimate. On the other hand, the superconducting critical temperature T_c found in our phase diagrams physically represents the dynamical mean-field transition temperature T_c^d below which Cooper pairing occurs locally in the cluster. [39] Long-wavelength quantum and thermal fluctuations in the amplitude and phase of the order parameter d_{SC} should lead to an actual Kosterlitz-Thouless transition temperature smaller than T_c^d [98–100] With increasing cluster sizes, the dynamical mean-field T_c have been shown to converge to a finite value on the square lattice. [27]

B. Strongly correlated superconductivity, superconducting dome and AFM quantum critical point

The link between antiferromagnetic quantum critical point and unconventional superconductivity is well documented, especially in the field of heavy-fermion materials. [101] Numerical simulations with methods very close to those used

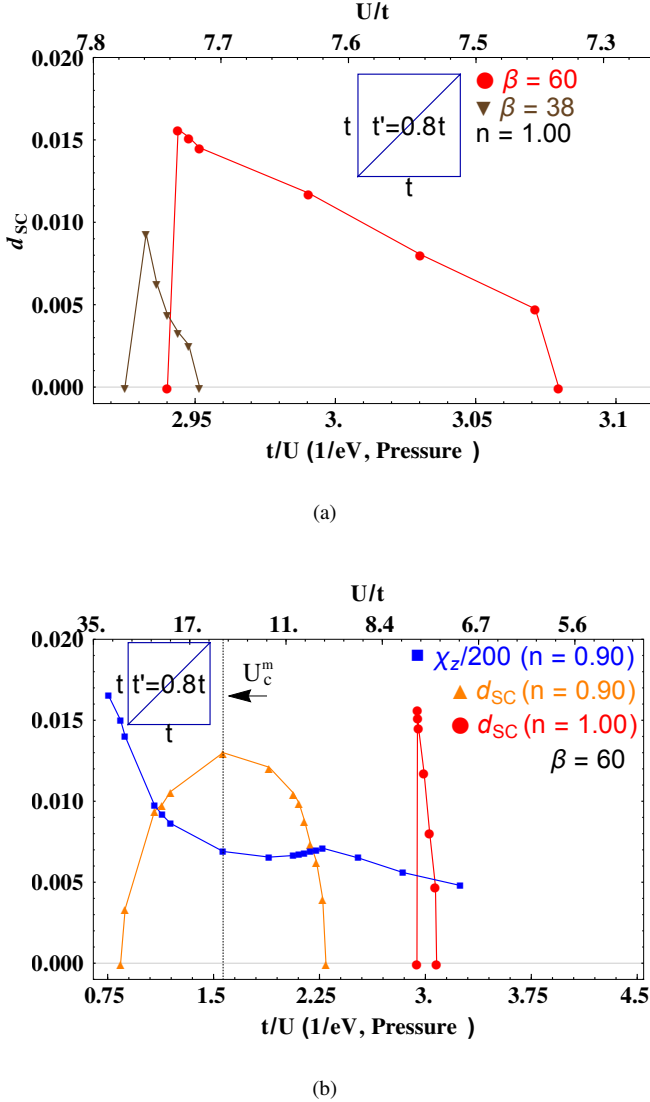


FIG. 11. (color online) The order parameter (d_{SC}) and uniform susceptibility (χ_z) in the superconducting phase of the Hubbard model on the anisotropic triangular lattice with frustration value $t' = 0.8t$. Each doping has the same specific color and plotmarker as in Fig. 8. Lines are guide to the eye.

(a) d_{SC} for the half-filled case. Two different temperatures are plotted.

(b) d_{SC} for various fillings and χ_z for the 10% hole-doped case. The temperature is $T/t = 1/60$. U_c^m stands for the superconducting critical interaction strength associated with T_c^m . The spin susceptibility χ_z calculated with Eq. 6 in dimensionless units is divided by 200 to fit on the same vertical axis.

here confirm this intimate connection for the Anderson lattice model of heavy-fermions: [102] Indeed, one finds a superconducting dome that systematically surrounds the antiferromagnetic quantum critical point. The same type of connection to a quantum-critical point has been proposed for cuprates. [103, 104] We suggest that this connection between AFM quantum critical point and maximum T_c is present when

the interaction strength is not large enough to lead to a Mott transition. In that case pairing occurs through the exchange of long wavelength antiferromagnetic fluctuations. [105–108]

The top panel of Fig. 9 shows that for half-filled organics, where a Mott transition is clearly observed, superconductivity is near the Mott transition, not near the antiferromagnetic quantum critical point. And as we dope, Fig. 5(b) shows that the superconducting dome surrounds the pseudogap to metal transition that is the finite-doping remnant of the Mott transition.

A schematic phase diagram is displayed in Fig. 12. In the normal state, there is a first-order phase transition whose coexistence region is represented in blue. The maximum of the superconducting transition temperature is controlled by the opening of the pseudogap, namely by the position of the first-order phase transition or its continuation, not by the antiferromagnetic quantum critical lines at the end of the antiferromagnetic three-dimensional dome delimited by the red region: even in the absence of the antiferromagnetic phase, superconductivity survives, as can be verified from Fig. 10b. This is a characteristic of strongly-correlated superconductivity in doped Mott insulators. We stress however that at large doping we observe crossovers in the normal state, but we cannot calculate at low enough temperature to confirm if the first-order transition survives. It can in principle be replaced by a $T = 0$ second order transition line or disappear at a critical point.

The mechanism for superconductivity in the organics is thus clearly different from that associated with an antiferromagnetic quantum critical point. This type of strongly-correlated superconductivity is controlled by short-range AFM correlations, namely superexchange $J = 4t^2/U$, as found early on in slave-boson calculations [109] and more recently with CDMFT [61]. This is reviewed in Ref. 15.

Further studies will be needed to clarify the detailed cause of the T_c dome. Consider the optimal T_c in Figs. 10(b), 5(b), 5(c), 5(d). The decrease of T_c from optimal towards low pressure (on the left) scales like J (i.e. like a straight line). On the other hand, the opening of a pseudogap could also explain this decrease because a pseudogap in the density of states at the Fermi level leaves fewer states to pair.

C. Contact with experiment

Our phase diagrams at half-filling (Figs. 5(a), 10(a)), reveal interesting similarities with the experimental phase diagrams of the BEDT compounds but even more so with the Pd(dmit)₂ compounds. [3, 4] In the temperature-pressure plane, the shape of the region where the SC phase exists and the shape of the metal-insulator coexistence region are in qualitative agreement with experiment. The maximum SC transition temperature T_c^m as a function of pressure coincides with the phase transition to the insulator, also like in experiment.

We find that as frustration is increased, both the maximum T_N and T_c^m decrease, the decrease in the tendency to magnetic order being however much more pronounced. These observations are consistent with experiments where com-

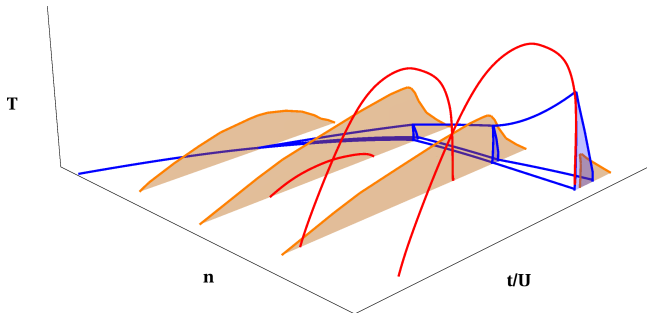


FIG. 12. Schematic phase diagram for layered organics. Orange planes indicate the three-dimensional region where superconductivity is present. The antiferromagnetic three-dimensional dome is below the red lines. In the normal state, there is a surface of first-order transition whose coexistence region is delimited by the blue lines. This first-order transition separates a pseudogap phase with small double-occupancy from a correlated metal with larger double-occupancy, by analogy with Ref. 35. At larger U and doping, the sign problem prevents us from observing directly the first-order transition or its continuation as a different phenomenon. Frustration can appreciably displace and eventually completely eliminate the antiferromagnetic region. [74, 110]

pounds with higher frustration t'/t have lower T_c compared to less frustrated materials. For example, κ -(ET) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ ($t' = 0.8t$) and κ -(ET) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl ($t' = 0.4t$) display T_c^m of respectively 3.9K and 13.1K. Also, as frustration is increased in real compounds, AFM order is greatly suppressed. For instance, κ -(ET) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl has AFM order at low temperatures and pressures, while κ -(ET) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ is a spin-liquid candidate. [1, 7]

Fig. 10 at $t' = 0.8t$ accounts for the experimental results on the SC phase both at half-filling [2] and at 10% doping. [16] Indeed, in half-filled κ -(ET) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ a superconductor-insulator phase transition is observed upon decreasing pressure, as in Fig. 10(a). On the other hand κ -(ET) $_4$ Hg $_{2.89}$ Br $_8$, the 10% hole-doped counterpart of κ -(ET) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$, presents a dome shaped [16, 20] T_c similar to Fig. 10(b) except that the dome is more asymmetrical in experiment.

Fig. 10 for $t' = 0.8t$ also shows that the range of pressure where SC appears at 10% hole-doping and $T/t = 1/60$ is multiplied by about nine compared to the half-filled case. Rough extrapolation of the superconducting dome to $T = 0$ gives a range of pressure that increases by a factor four to six in going from half-filling to 10% doping. Experimentally the dome is extended by approximately six for the same value of frustration. Indeed, in half-filled κ -(ET) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$, superconductivity occurs over a range of 0.25 GPa according to Ref. [111] while Ref. [16] finds superconductivity for a range of 1.5 GPa in the doped compound κ -(ET) $_4$ Hg $_{2.89}$ Br $_8$.

T_c^m for κ -(ET) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ is 3.9K while it is about 7K for the doped counterpart, a factor of 1.8. Our results show a very slight decrease of T_c^m at 10% hole-doping. However, T_c^m is increased for intermediate doping (Table II, Fig. 6) compared

to half-filling. While that increase for intermediate doping is proven for an anisotropy parameter $t' = 0.4t$, the case $t' = 0.8t$ should be similar.

Oike *et al.* [16] and Taniguchi *et al.* [20] also found in the Hall coefficient of κ -(ET) $_4$ Hg $_{2.89}$ Br $_8$ a rapid crossover around 0.5 GPa. This pressure corresponds closely to the maximum of the superconducting transition temperature [16] T_c^m . Although for $t'/t = 0.8$ and $n = 0.9$ we cannot reach low-enough temperature to detect the first-order pseudogap to metal transition, the $t'/t = 0.4$ low-doping results of Fig. 5(b) strongly suggest that T_c^m is controlled by that transition. On the square lattice, one finds analogous results: [39] A low temperature first-order transition between a pseudogap metallic phase and a strongly-correlated metal ends at a critical point above which a line of crossovers appears. [22, 23] This line of crossovers is a Widom line, a general phenomenon found in the supercritical region of first-order transitions. [66] Remarkably, T_c^m is near the intersection of the superconducting dome and of the Widom line. [21, 39] This leads us to important predictions for experiment.

D. Predictions

The first-order pseudogap to metal transition, observed theoretically on the square lattice, [22, 35, 36] has also been seen as a sharp crossover in larger cluster calculations in the Dynamical Cluster Approximation [112] and in variational Quantum Monte Carlo. [113] Our work shows that this transition also occurs on the anisotropic triangular lattice. It had been observed before as a sharp crossover. [30] The experimental results on the doped BEDT κ -(ET) $_4$ Hg $_{2.89}$ Br $_8$ [16, 20] can thus be interpreted as an observation of the crossovers associated to this pseudogap to metal transition. Based on our phase diagrams, we predict that in yet to be synthesized very low-doping organic materials with pressure-induced transitions, remnants of this transition could be detectable in the SC state. It would manifest itself via observables such as the uniform susceptibility, the SC order parameter or by a strong crossover of many properties as a function of pressure near T_c^m .

We also predict that in electron-doped compounds, T_c is decreased but the range of SC on the pressure axis is still increased compared to the half-filled case.

Finally, our results also suggest that for frustration high enough that magnetically ordered phases are absent, the normal state underlying the SC state of the *doped* compounds should display a first-order transition between a pseudogap and a more metallic state at sufficiently low temperatures. This is our most important prediction. As usual the normal state can be revealed by applying a magnetic field. Experiments *at half-filling* [114] on κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl suggest that the magnetic fields necessary to destroy the SC state are easily accessible.

E. Limitations and perspectives

The broad agreement that we find with experiment and, in the low temperature limit, with variational Monte Carlo methods, [30] suggest that the important physics in the layered organics arises from strong on-site repulsion U and nearest-neighbor superexchange J . Increasing the cluster size would allow a better representation of the long-wavelength fluctuations beyond mean-field theory. It would produce more quantitative phase boundaries, as discussed in Sec. VIA above. But since the existence of the superconducting phase itself has already been established by finite-size studies on the square lattice, [27] it is highly unlikely that larger cluster studies would change this.

The continuous time Quantum Monte Carlo impurity solver in the hybridization expansion that we have used here (CT-HYB) is for now the only Monte Carlo approach that allows calculations in the range of large U/t and frustration needed for the layered organics. Recall that $U/t = 14$ at the maximum of the superconducting dome for $t'/t = 0.8$ and that U/t is as large as 30 at the lowest temperature end of the dome. Expansions in power of U/t that are used as Quantum Monte Carlo impurity solvers for larger clusters [45] fail for such large values of U/t and frustration because of a sign problem and because of the large expansion orders that are needed. Even on the 4-site cluster that we use, the average sign is immeasurably small with Rubtsov's algorithm for $U/t = 14.5$ and $T/t = 1/40$, namely near the maximum of the superconducting dome for $t'/t = 0.8$. [45] For high-temperature, ($T/t \geq 0.06$) the cluster-size dependence has been shown to be negligible. [115] While CT-HYB provides a method to access the large values of U/t and t'/t that we need, the computation time increases exponentially with system size, making larger clusters unfeasible with present resources. The same size limitation applies to exact-diagonalization solvers [52] that, in addition, rely on a finite bath, by contrast with CT-HYB where the bath is infinite. A method has recently been proposed [116] to increase bath size in exact diagonalization solvers but extensions to higher temperatures have not been tested and implementations on clusters have not been done yet.

Although AFM and SC were considered on equal footing, we neglected the possibility of non-vanishing order parameters for both AFM and SC simultaneously. This might occur in some regions at finite doping where we found that both AFM and SC separately can develop long-range order. The question of simultaneous non-vanishing order parameters is an interesting question but it is a detail at this early stage of investigations. The fact that for $t'/t = 0.8$ model of the doped organic κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈ there is a superconducting dome far from the AFM phase is one of the crucial proofs that the maximum of the dome does not come from an AFM quantum critical point.

So far, studies of the Hubbard model have shown that they are capable of capturing essential features of materials such as cuprates, κ -(ET)₂X or Pd(dmit)₂, even if that model neglects some physical effects. Additional calculations taking into account Coulomb interaction between nearest neighbors (with

the extended Hubbard model [38, 117]), electron-phonon interactions [118], or the third spatial dimension [119, 120] would allow one to capture increasing details of these fascinating compounds, but the overall agreement with experiment that has been found suggests that the local and near-neighbor superexchange aspects of the Hubbard model capture the essential physics.

Further investigations of the normal state pseudogap and of properties of the strongly correlated superconducting phase are planned.

VII. CONCLUSION

Based on CDMFT calculations of normal, superconducting and antiferromagnetic phase diagrams for the Hubbard model on the anisotropic triangular lattice, we arrive at the following conclusions. These phase diagrams are very similar to experimental observations, both at half-filling and at finite doping. Upon doping, superconductivity is enhanced; in particular it occurs over a much broader range of pressures (U/t). Smaller anisotropy, or equivalently larger frustration ($t'/t \sim 1$), diminishes antiferromagnetic and superconducting transition temperatures but antiferromagnetism is much more affected.

In the normal state, a first-order pseudogap to metal transition occurs at finite doping and low temperature. The transition is continuously connected to the Mott transition at half-filling, as on the square lattice case, [35] yet the pseudogap is different from the Mott gap. The decrease in the density of states at the Fermi level associated with the pseudogap and the decrease of superexchange J when pressure decreases can both contribute to the decrease of T_c with decreasing pressure. We claim that competing antiferromagnetism is not an explanation for the dome in the doped organics.

We predict that for very lightly hole-doped compounds, the pseudogap to metal transition leaves some subtle traces in the superconducting state. Our most important prediction is that the normal state that will be revealed by destroying the superconducting state with a magnetic field in lightly-doped highly-frustrated compounds will show this first-order transition between two conducting phases, one with a pseudogap and the other one metallic. It is this transition that should control the crossovers at finite temperature as well as the location of the maximal superconducting transition temperature. Finally, we predict that electron-doping should lead to a reduced maximum T_c .

For a model of heavy fermions solved with the same set of methods as those used here, the maximum of the superconducting dome can be correlated with the location of an antiferromagnetic quantum critical point for interaction strengths that are not large enough to lead to a Mott transition. [102] In our case, the superconducting dome in the doped organics surrounds the finite-doping extension of the zero-doping first-order Mott transition (whenever it is directly observable). It is definitely not attached to an antiferromagnetic quantum critical point, a conclusion that can also be verified experimentally. This result should clearly impact understanding

of strongly-correlated superconductivity in all doped Mott insulators; not only layered organic superconductors, but also high-temperature cuprate superconductors.

ACKNOWLEDGMENTS

We are grateful to G. Sordi for numerous discussions, to Wei Wu for some calculations and to M. Gingras, C. Bourbon-

nais, and R. Nourafkan for suggestions and detailed comments on the manuscript. This work was supported by the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Tier I Canada Research Chair Program (A.-M.S.T.). Simulations were performed on computers provided by CFI, MELs, Calcul Québec and Compute Canada.

-
- [1] S. Lefebvre, P. Wzietek, S. Brown, C. Bourbonnais, D. Jérôme, C. Mézière, Czière, M. Fourmigué, and P. Batail, *Physical review letters* **85**, 5420 (2000).
- [2] Y. Shimizu, H. Kasahara, T. Furuta, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito, *Phys. Rev. B* **81**, 224508 (2010).
- [3] Y. Shimizu, H. Akimoto, H. Tsujii, A. Tajima, and R. Kato, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 256403 (2007).
- [4] J.-I. Yamaura, A. Nakao, and R. Kato, *Journal of the Physical Society of Japan* **73**, 976 (2004), <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.73.976>.
- [5] P. Limelette, P. Wzietek, S. Florens, A. Georges, T. A. Costi, C. Pasquier, D. Jérôme, C. Mézière, and P. Batail, *Physical review letters* **91**, 016401 (2003).
- [6] J. Merino and O. Gunnarsson, *Phys. Rev. B* **89**, 245130 (2014).
- [7] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 107001 (2003).
- [8] M. Yamashita, N. Nakata, Y. Senshu, M. Nagata, H. M. Yamamoto, R. Kato, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, *Science* **328**, 1246 (2010).
- [9] B. J. Powell and R. H. McKenzie, *Journal of Physics: Condensed Matter* **18**, R827 (2006).
- [10] B. J. Powell and R. H. McKenzie, *Reports on Progress in Physics* **74**, 056501 (2011).
- [11] H. Kino and H. Fukuyama, *Journal of the Physical Society of Japan* **65**, 2158 (1996).
- [12] R. T. Clay, H. Li, and S. Mazumdar, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 166403 (2008).
- [13] S. Dayal, R. T. Clay, and S. Mazumdar, *Phys. Rev. B* **85**, 165141 (2012).
- [14] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
- [15] A.-M. S. Tremblay, in *Emergent Phenomena in Correlated Matter Modeling and Simulation*, Vol. 3, edited by E. Pavarini, E. Koch, and U. Schollwöck (Verlag des Forschungszentrum, 2013) Chap. 10.
- [16] H. Oike, K. Miyagawa, H. Taniguchi, and K. Kanoda, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 067002 (2015).
- [17] R. N. Lyubovskaya, E. A. Zhilyaeva, A. V. Zvarykina, V. N. Laukhin, R. B. Lyubovskii, and S. I. Pesotskii, *JETP Lett.* **45**, 530 (1987).
- [18] R. N. Lyubovskaya, E. I. Zhilyaeva, S. I. Pesotskii, R. B. Lyubovskii, L. O. Atovmyan, O. A. D'yachenko, and T. G. Takhirov, *JETP Lett.* **46**, 188 (1987).
- [19] S. L. Bud'ko, A. G. Gapotchenko, A. E. Luppov, R. N. Lyubovskaya, and R. B. Lyubovskii, *Sov. Phys. JETP* **74**, 983 (1992).
- [20] H. Taniguchi, T. Okuhata, T. Nagai, K. Satoh, N. Mori, Y. Shimizu, M. Hedo, and Y. Uwatoko, *Journal of the Physical Society of Japan* **76**, 113709 (2007), <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.76.113709>.
- [21] O. Cyr-Choinière, D. LeBoeuf, S. Badoux, S. Dufour-Beauséjour, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, N. Doiron-Leyraud, and L. Taillefer, *ArXiv e-prints* (2015), [arXiv:1503.02033 \[cond-mat.supr-con\]](https://arxiv.org/abs/1503.02033).
- [22] G. Sordi, P. Sémon, K. Haule, and A.-M. S. Tremblay, *Scientific Reports* **2** (2012), 10.1038/srep00547.
- [23] G. Sordi, P. Sémon, K. Haule, and A.-M. S. Tremblay, *Phys. Rev. B* **87**, 041101 (2013).
- [24] H. C. Kandpal, I. Opahle, Y.-Z. Zhang, H. O. Jeschke, and R. Valentí, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 067004 (2009).
- [25] K. Nakamura, Y. Yoshimoto, T. Kosugi, R. Arita, and M. Imada, *Journal of the Physical Society of Japan* **78**, 083710 (2009).
- [26] A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. J. Rozenberg, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 13 (1996).
- [27] T. A. Maier, M. Jarrell, T. C. Schulthess, P. R. C. Kent, and J. B. White, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 237001 (2005).
- [28] G. Kotliar, S. Y. Savrasov, K. Haule, V. S. Oudovenko, O. Parcollet, and C. A. Marianetti, *Reviews of Modern Physics* **78**, 865 (2006).
- [29] A. M. S. Tremblay, B. Kyung, and D. Sénéchal, *Low Temp. Phys.* **32**, 424 (2006).
- [30] T. Watanabe, H. Yokoyama, and M. Ogata, *JPS conference proceedings* (2014), 10.7566/JSPSC.3.013004.
- [31] We thank A. Reymbaut for drawing this figure.
- [32] P. Sémon and A.-M. S. Tremblay, *Phys. Rev. B* **85**, 201101 (2012).
- [33] P. Sémon, G. Sordi, and A.-M. S. Tremblay, *Phys. Rev. B* **89**, 165113 (2014).
- [34] P. Sémon, C.-H. Yee, K. Haule, and A.-M. S. Tremblay, *Phys. Rev. B* **90**, 075149 (2014).
- [35] G. Sordi, K. Haule, and A. M. S. Tremblay, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 226402 (2010).
- [36] G. Sordi, K. Haule, and A.-M. S. Tremblay, *Physical Review B* **84**, 075161 (2011).
- [37] K. Nakamura, Y. Yoshimoto, T. Kosugi, R. Arita, and M. Imada, *Journal of the Physical Society of Japan* **78**, 083710 (2009), <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.78.083710>.
- [38] D. Sénéchal, A. G. R. Day, V. Bouliane, and A.-M. Tremblay, *Phys. Rev. B* **87**, 075123 (2013).
- [39] G. Sordi, P. Sémon, K. Haule, and A.-M. S. Tremblay, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 216401 (2012).
- [40] G. Kotliar, S. Y. Savrasov, G. Pálsson, and G. Biroli, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 186401 (2001).
- [41] T. Maier, M. Jarrell, T. Pruschke, and M. H. Hettler, *Reviews of Modern Physics* **77**, 1027 (2005).
- [42] D. Sénéchal, *arXiv preprint arXiv:0806.2690* (2008).
- [43] E. Koch, G. Sangiovanni, and O. Gunnarsson, *Phys. Rev. B* **78**, 115102 (2008).
- [44] E. Gull, P. Werner, A. Millis, and M. Troyer, *Phys. Rev. B* **76**,

- 235123 (2007).
- [45] E. Gull, A. J. Millis, A. I. Lichtenstein, A. N. Rubtsov, M. Troyer, and P. Werner, *Reviews of Modern Physics* **83**, 349 (2011).
- [46] P. Werner, A. Comanac, L. de' Medici, M. Troyer, and A. J. Millis, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 076405 (2006).
- [47] K. Haule, *Phys. Rev. B* **75**, 155113 (2007).
- [48] M. H. Hettler, A. N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, T. Pruschke, and H. R. Krishnamurthy, *Phys. Rev. B* **58**, R7475 (1998).
- [49] C. Huscroft, M. Jarrell, T. Maier, S. Moukouri, and A. N. Tahvildarzadeh, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 139 (2001).
- [50] D. Sénéchal and A.-M. S. Tremblay, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 126401 (2004).
- [51] B. Kyung, S. S. Kancharla, D. Sénéchal, A.-M. S. Tremblay, M. Civelli, and G. Kotliar, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **73**, 165114 (2006).
- [52] A. Liebsch and N.-H. Tong, *Phys. Rev. B* **80**, 165126 (2009).
- [53] E. Gull, O. Parcollet, P. Werner, and A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **80**, 245102 (2009).
- [54] M. Ferrero, P. S. Cornaglia, L. De Leo, O. Parcollet, G. Kotliar, and A. Georges, *Phys. Rev. B* **80**, 064501 (2009).
- [55] H. Park, K. Haule, and G. Kotliar, *Physical Review Letters* **101**, 186403 (2008).
- [56] M. Balzer, B. Kyung, D. Sénéchal, A.-M. S. Tremblay, and M. Potthoff, *Euro. Phys. Lett.* **85**, 17002 (2009).
- [57] D. Sénéchal, P.-L. Lavertu, M.-A. Marois, and A.-M. S. Tremblay, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 156404 (2005).
- [58] M. Capone and G. Kotliar, *Phys. Rev. B* **74**, 054513 (2006).
- [59] K. Haule and G. Kotliar, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **76**, 104509 (2007).
- [60] M. Aichhorn, E. Arrighi, M. Potthoff, and W. Hanke, *Phys. Rev. B* **74**, 024508 (2006).
- [61] S. S. Kancharla, B. Kyung, D. Senechal, M. Civelli, M. Capone, G. Kotliar, and A.-M. S. Tremblay, *Phys. Rev. B* **77**, 184516 (2008).
- [62] E. Gull, O. Parcollet, and A. J. Millis, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 216405 (2013).
- [63] L. Fratino, P. Sémon, G. Sordi, and A. M. S. Tremblay, unpublished.
- [64] A. Liebsch, H. Ishida, and J. Merino, *Physical Review B* **79**, 195108 (2009).
- [65] T. Ohashi, T. Momoi, H. Tsunetsugu, and N. Kawakami, *Physical review letters* **100**, 076402 (2008).
- [66] L. Xu, P. Kumar, S. V. Buldyrev, S.-H. Chen, P. H. Poole, F. Sciortino, and H. E. Stanley, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA* **102**, 16558 (2005), <http://www.pnas.org/content/102/46/16558.full.pdf+html>.
- [67] G. G. Simeoni, T. Bryk, F. A. Gorelli, M. Krisch, G. Ruocco, M. Santoro, and T. Scopigno, *Nature Physics* **6**, 503 (2010).
- [68] H. Alloul, *Comptes Rendus Physique* **15**, 519 (2014).
- [69] The critical line ending the first-order surface plunges to very low temperature as U or doping increase. The first-order transition may end at large U or continue as a quantum-critical line. We can only confirm that crossovers exist at high temperature. The sign problem prevents us from exploring very low temperature.
- [70] G. Kotliar, S. Murthy, and M. J. Rozenberg, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 046401 (2002).
- [71] A. Macridin, M. Jarrell, and T. Maier, *Phys. Rev. B* **74**, 085104 (2006).
- [72] E. Khatami, K. Mikelsons, D. Galanakis, A. Macridin, J. Moreno, R. T. Scalettar, and M. Jarrell, *Phys. Rev. B* **81**, 201101 (2010).
- [73] T. Komatsu, N. Matsukawa, T. Inoue, and G. Saito, *Journal of the Physical Society of Japan* **65**, 1340 (1996), <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.65.1340>.
- [74] B. Kyung and A.-M. S. Tremblay, *Physical review letters* **97**, 046402 (2006).
- [75] T. Watanabe, H. Yokoyama, Y. Tanaka, and J. Inoue, *Phys. Rev. B* **77**, 214505 (2008).
- [76] L. F. Tocchio, H. Feldner, F. Becca, R. Valentí, and C. Gros, *Phys. Rev. B* **87**, 035143 (2013).
- [77] On the square lattice, [35, 36] the chemical potential was varied on a fine scale whereas here it is the interaction that is varied slowly. The first-order transition occurs on a surface in the $T - U - \mu$ plane that can be traversed in several directions.
- [78] E. Gull, O. Parcollet, and A. J. Millis, *Physical Review Letters* **110**, 216405 (2013).
- [79] H. Kino and H. Kontani, *Journal of the Physical Society of Japan* **67**, 3691 (1998).
- [80] B. Kyung, *Phys. Rev. B* **75**, 033102 (2007).
- [81] O. Parcollet, G. Biroli, and G. Kotliar, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 226402 (2004).
- [82] H. Morita, S. Watanabe, and M. Imada, *Journal of the Physical Society of Japan* **71**, 2109 (2002), <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.71.2109>.
- [83] Z.-Q. Yu and L. Yin, *Phys. Rev. B* **81**, 195122 (2010).
- [84] H. Kondo and T. Moriya, *Journal of the Physical Society of Japan* **65**, 2559 (1996), <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.65.2559>.
- [85] W. Hofstetter and D. Vollhardt, *Annalen der Physik* **510**, 48 (1998).
- [86] P. Sahebsara and D. Sénéchal, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 136402 (2008).
- [87] M. Laubach, R. Thomale, C. Platt, W. Hanke, and G. Li, *Phys. Rev. B* **91**, 245125 (2015).
- [88] A. Yamada, *Physical Review B* **89**, 195108 (2014).
- [89] H.-Y. Yang, A. Läuchli, F. Mila, and K. Schmidt, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 267204 (2010).
- [90] J. Reuther and R. Thomale, *Phys. Rev. B* **83**, 024402 (2011).
- [91] S. W. Tsai and J. B. Marston, *Canadian Journal of Physics* **79**, 1463 (2001), <http://dx.doi.org/10.1139/p01-085>.
- [92] C. Honerkamp, *Phys. Rev. B* **68**, 104510 (2003).
- [93] J. Liu, J. Schmalian, and N. Trivedi, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 127003 (2005).
- [94] T. Watanabe, H. Yokoyama, Y. Tanaka, and J. ichiro Inoue, *Journal of the Physical Society of Japan* **75**, 074707 (2006), <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.75.074707>.
- [95] J. Y. Gan, Y. Chen, Z. B. Su, and F. C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 067005 (2005).
- [96] B. J. Powell and R. H. McKenzie, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047004 (2005).
- [97] N. D. Mermin and H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
- [98] I. Ussishkin, S. L. Sondhi, and D. A. Huse, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 287001 (2002).
- [99] D. Podolsky, S. Raghu, and A. Vishwanath, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 117004 (2007).
- [100] Z. Tesanovic, *Nat Phys* **4**, 408 (2008).
- [101] Y.-f. Yang and D. Pines, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **111**, 8398 (2014), <http://www.pnas.org/content/111/23/8398.full.pdf+html>.
- [102] W. Wu and A.-M.-S. Tremblay, *Phys. Rev. X* **5**, 011019 (2015).
- [103] B. J. Ramshaw, S. E. Sebastian, R. D. McDonald, J. Day, B. Tam, Z. Zhu, J. B. Betts, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, and N. Harrison, *ArXiv e-prints* (2014), [arXiv:1409.3990 \[cond-mat.supr-con\]](https://arxiv.org/abs/1409.3990).

- [104] L. Taillefer, *Annual Review of Condensed Matter Physics* **1**, 51 (2010), <http://dx.doi.org/10.1146/annurev-conmatphys-070909-104117>.
- [105] M. T. Beal-Monod, C. Bourbonnais, and V. J. Emery, *Phys. Rev. B* **34**, 7716 (1986).
- [106] D. J. Scalapino, J. Loh, E., and J. E. Hirsch, *Phys. Rev. B* **34**, 8190 (1986).
- [107] N. E. Bickers, D. J. Scalapino, and S. R. White, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 961 (1989).
- [108] T. A. Maier, A. Macridin, M. Jarrell, and D. J. Scalapino, *Phys. Rev. B* **76**, 144516 (2007).
- [109] G. Kotliar and J. Liu, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1784 (1988).
- [110] P. Sahebsara and D. Sénéchal, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 257004 (2006).
- [111] Y. Kurosaki, Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, and G. Saito, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 177001 (2005).
- [112] P. Werner, E. Gull, O. Parcollet, and A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **80**, 045120 (2009).
- [113] H. Yokoyama, M. Ogata, Y. Tanaka, K. Kobayashi, and H. Tsuchiura, *Journal of the Physical Society of Japan* **82**, 014707 (2013), <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.014707>.
- [114] F. Kagawa, T. Itou, K. Miyagawa, and K. Kanoda, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 127001 (2004).
- [115] S. Sakai, G. Sangiovanni, M. Civelli, Y. Motome, K. Held, and M. Imada, *Phys. Rev. B* **85**, 035102 (2012).
- [116] Y. Lu, M. M. Höppner, O. Gunnarsson, and M. W. Haverkort, *Phys. Rev. B* **90**, 085102 (2014).
- [117] L. F. Tocchio, C. Gros, X.-F. Zhang, and S. Eggert, *arXiv preprint arXiv:1402.3160* (2014).
- [118] H. Bakrim and C. Bourbonnais, *Phys. Rev. B* **90**, 125119 (2014).
- [119] P. A. Igoshev, M. A. Timirgazin, A. K. Arzhnikov, and V. Y. Irkhin, *arXiv preprint arXiv:1409.0320* (2014).
- [120] T. Yoshikawa and M. Ogata, *Phys. Rev. B* **79**, 144429 (2009).

3.2 Résultats additionnels pour la phase normale : le pseudogap

La présente section expose les résultats obtenus par calculs numériques pour le réseau triangulaire anisotrope en CDMFT à l'aide des solveurs d'impuretés CT-QMC. La phase normale paramagnétique, telle que présentée dans la **Sec. 3.1** de l'article [62], est étudiée de façon plus approfondie sous des aspects complémentaires à ceux présentés précédemment. Principalement, nous démontrons que le pseudogap peut s'observer dans les quantités telle la conductivité selon l'axe c et correspond bien aux résultats dans la littérature. De plus, nous exposons les densités d'états qui décrivent théoriquement la signature de la transition entre métal et métal corrélé à dopage fini (**MMT**). Cette transition est continument connectée à la transition de Mott à demi-remplissage.

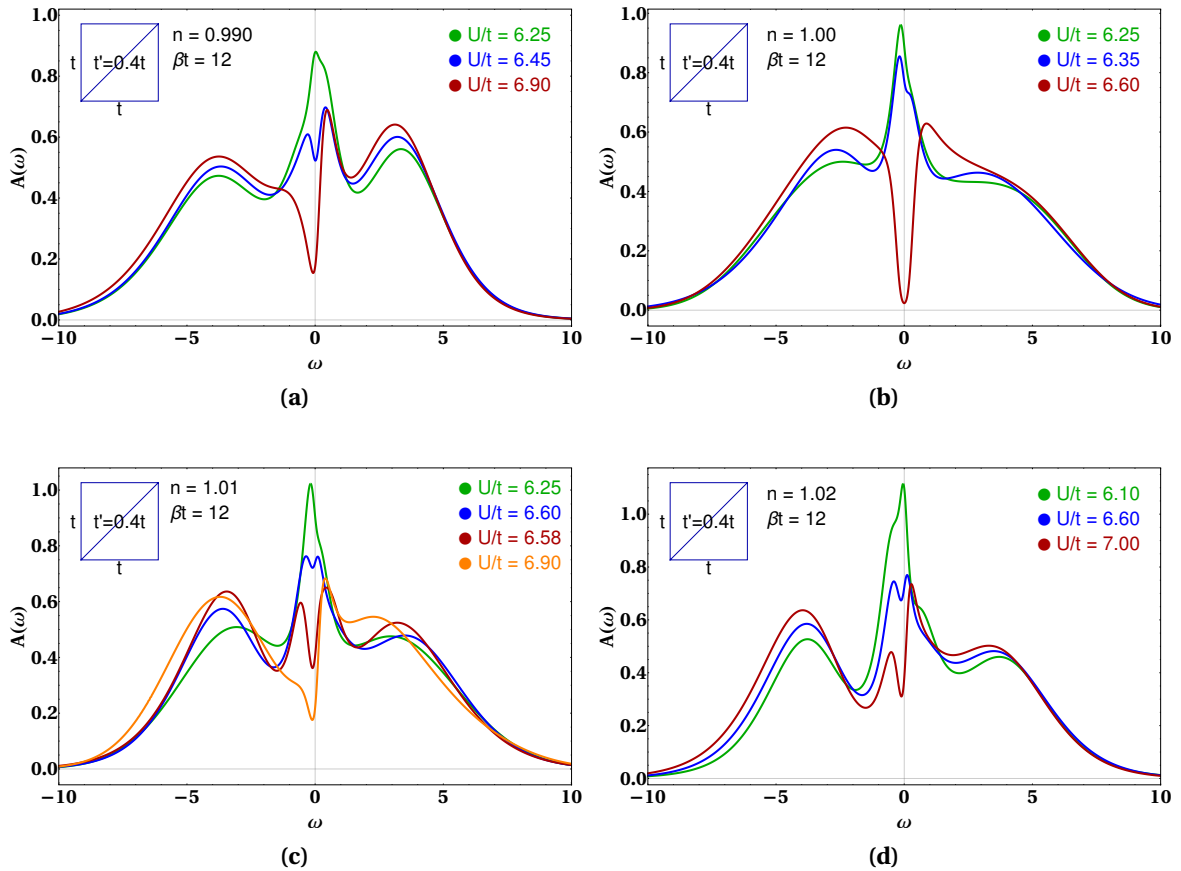


FIGURE 3.1 Densité d'états à température finie pour le modèle triangulaire anisotrope pour plusieurs dopages calculés en CDMFT dans la phase normale paramagnétique. (a) Densité d'états pour une valeur de dopage en trou de 1%. Nous observons une formation d'un pseudogap avec l'augmentation de la valeur de l'interaction. Cette observation est compatible avec la traversée de la transition entre un métal conventionnel et un mauvais métal continument connecté à l'isolant de Mott à demi-remplissage. (b) Densité d'états à demi remplissage : la formation du gap de Mott est visible subitement lorsque la transition métal-isolant est franchie. (c) Densité d'états pour une valeur de dopage de 1% en électrons. Les mêmes observations qu'en a s'appliquent ici également. (d) Densité d'états pour une valeur de dopage de 2% en électrons. Les mêmes observations qu'en a s'appliquent ici également.

Les densités d'états dans les **Fig. 3.1** sont calculées à partir de l'**Eq. 2.36** de la section 2.2.3.

À demi remplissage, une transition de premier ordre est visible par le saut subit de la densité d'états au niveau de l'énergie de Fermi lorsque le système passe d'un isolant à forte interaction à un métal à plus basse interaction. À dopage fini, l'isolant de Mott est continuellement connecté à un métal corrélé et une transition de premier ordre entre ce métal corrélé et un métal conventionnel est observé à basse température (**MMT**). Cette transition de premier ordre à basse température passe continuellement vers une transition de second ordre entre ces deux phases à plus haute température. Pour aller plus loin, l'apparition de ce métal corrélé, possédant un pseudogap à dopage fini, est évidente dans la densité d'états au niveau de l'énergie de Fermi lorsque la pression effective diminue (lorsque l'interaction augmente), comme illustré aux **Fig. 3.1a, 3.1c, 3.1d**. Effectivement, nous y observons un pic de quasi-particules à basse interaction (haute pression), où la phase métallique se manifeste. Au fur et à mesure que l'interaction augmente, le pic de quasi-particules diminue en intensité et laisse place à une dépréciation considérable de la densité d'états au niveau de Fermi. Cette dernière observation est une représentation canonique du pseudogap. Ces densités d'états viennent corroborer les résultats présentés précédemment concernant la double occupation à dopage fini (**Fig. 3** de [62]).

Ces observations sont qualitativement très semblables à celles obtenues sur le réseau carré, pour lequel la transition métal-isolant et métal-pseudogap (métal corrélé) est contrôlée par la physique de Mott en fonction du potentiel chimique [63–66]. La présence de cette physique de Mott à dopage fini pour des frustrations variables est un ajout additionnel à la littérature existante. De plus, nous avons démontré que la phase antiferromagnétique diminue drastiquement à forte frustration et qu'elle laisse place à la phase paramagnétique sans aucun artifice de calcul [62] (**Sec. 3.1**) pour une plage d'interaction (pression) non négligeable.

La même physique de transition de second ordre à haute température est observée à une grande frustration, comme le montre la **Fig. 3.2b**. Effectivement, l'observation clé pour les figures 3.1 s'applique également dans le cas de figure présente (**Fig. 3.2b**). Nous y observons encore une fois le pic de quasi-particules près de $\omega = 0$. Ce pic diminue et forme un pseudogap au fur et à mesure que l'interaction augmente. Cette transition de second ordre visible dans la densité d'états est en fait une manifestation de la ligne de Widom [11].

Cette transition de premier ordre à dopage fini se déplace rapidement vers les faibles températures avec l'augmentation du dopage en s'éloignant du demi-remplissage du côté dopé aux trous ou aux électrons. Ceci est bien documenté dans le cas du modèle de Hubbard sur le réseau carré [63–66]. Ici, il s'agit d'une observation similaire sur une

autre tranche dans le diagramme T-P-n. Au-dessus de cette transition de premier ordre, un crossover pour de nombreuses quantités physiques est observé. Ce crossover est en fait la ligne de Widom.

Une quantité physique qui présente un crossover est la conductivité électrique **Fig. 3.2a** et ce crossover est compatible avec les observations expérimentales. En effet, à haute pression (basse interaction), la conductivité est croissante en fonction de l'interaction et démontre le caractère métallique de l'amas. En diminuant la pression, la transition vers la phase de mauvais métal est apparente par la diminution de la conductivité et la stagnation de cette dernière à une valeur constante qui ne dépend plus de la pression. Ce plateau s'explique par la très faible compressibilité des porteurs de charge dans la phase de mauvais métal.

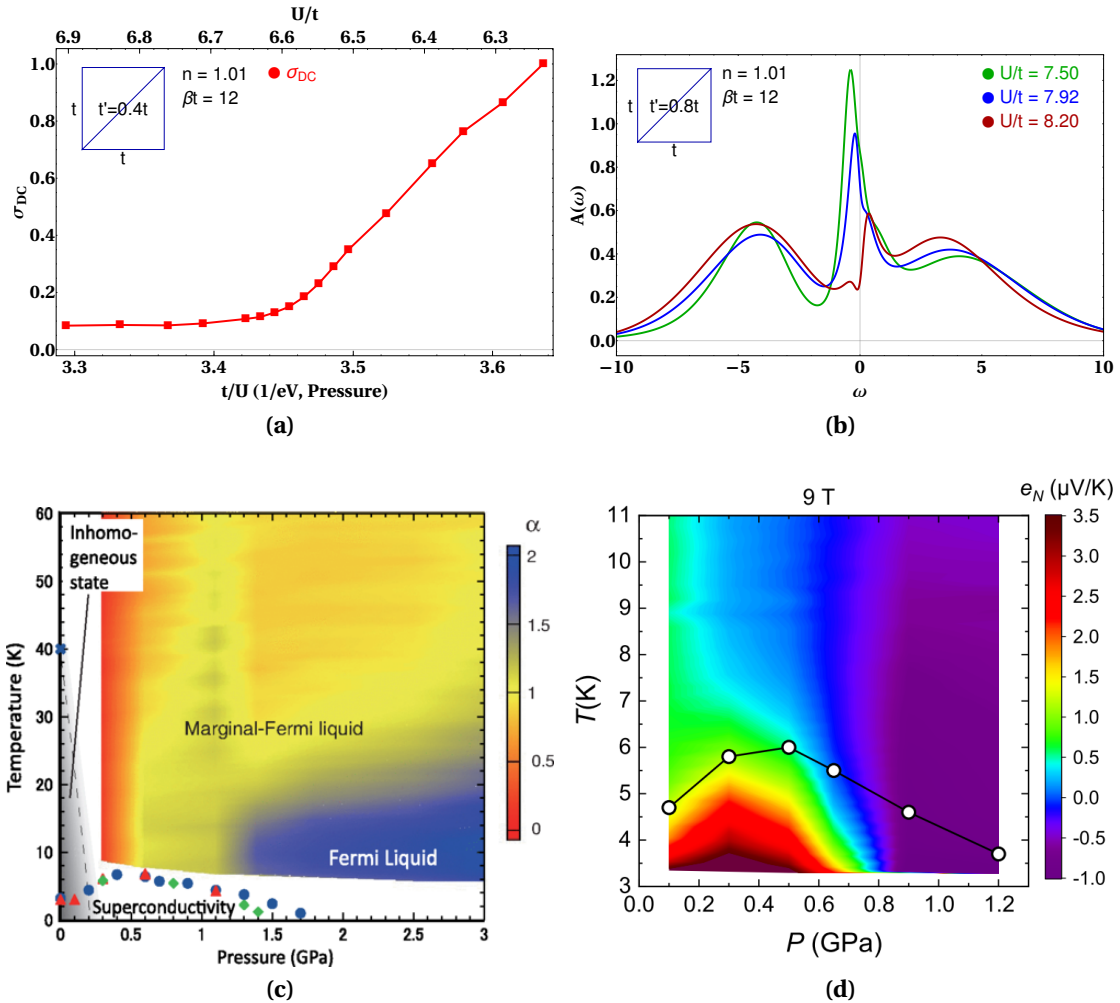


FIGURE 3.2 (a) Conductivité électrique normalisée pour le réseau triangulaire anisotrope ($t' = 0.4t$) calculée en CDMFT à température finie selon l'Eq. 2.144 pour la phase normale.

(b) Densité d'états pour une plus grande frustration ($t' = 0.8t$) et une valeur de remplissage de 1.01 (dopage de 1% en électrons) dans la phase normale.

(c.) Diagramme de phase du supraconducteur organique κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈. La valeur de la résistivité en fonction de la température est présentée pour un champ magnétique nul. La valeur alpha répond à l'équation : $\rho - \rho_0 \sim T^\alpha$. La valeur de la résistivité est calculée dans le plan conducteur. Figure tirée de [13].

(d.) Diagramme de phase du supraconducteur organique κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈ sous un champ magnétique de 9 Tesla. La phase normale paramagnétique et la transition mauvais-métal (pseudo-gap) au métal (liquide de Fermi) par le biais d'un crossover dans l'effet Nernst est observé. Ce crossover se situe très près du maximum du dôme supraconducteur. Figure tirée de [14].

La figure de conductivité théorique **Fig. 3.2a** et la figure expérimentale **Fig. 3.2c** sont en accord qualitatif. En rétrospective, il aurait été préférable de calculer la résistivité théorique à pression constante pour plusieurs températures pour reproduire la figure de contour expérimentale. Malgré tout, nous pouvons tout de même constater que le comportement de la résistivité dans les données expérimentales en fonction de la pression est qualitativement compatible avec les calculs théoriques. En effet, en nous plaçant à température constante, la résistivité expérimentale possède un plateau à forte interaction (basse pression) en fonction de la pression, et donc il en est de même pour la conductivité qui est l'inverse de la résistivité. Au fur et à mesure que la pression augmente (que l'interaction diminue), alors la résistivité diminue puisque la valeur du paramètre α diminue (et donc la conductivité augmente). Ce comportement qualitatif est exactement celui reproduit à la figure théorique. En effet, nous voyons que lorsque la transition entre le pseudogap et la phase métallique de type liquide de Fermi survient, la conductivité électrique passe d'un plateau de faible valeur dans la phase pseudogap à faible pression (mauvais métal), à une valeur qui augmente avec la pression dans la phase métallique standard.

Pour continuer, nous avons prédit dans l'article [62] (**Sec. 3.1**) que la transition de Sordi (et la ligne de Widom correspondante) pourrait s'observer dans le matériau κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈ à faible température lorsque la phase supraconductrice était prohibée par un champ magnétique supérieur au champ critique. C'est dans l'article de Suzuki et collab. qu'une telle observation est faite sur ce même matériau [14]. Effectivement, nous pouvons voir dans la **Fig. 3.2d** que les valeurs expérimentales de l'effet Nernst possèdent des caractéristiques typiques de la ligne de Widom. Plus précisément, à basse température, un crossover vif est observé dans l'effet Nernst, alors qu'un crossover plus léger se manifeste à plus haute température. Ceci est un succès éloquent pour la modélisation par le réseau triangulaire anisotrope en CDMFT pour ces types de matériaux.

Bien que nous ayons étudié de façon prédominante le côté dopé en électrons, des résultats non définitifs suggèrent que les résultats sont qualitativement similaires du côté dopé aux trous. Effectivement, pour une frustration intermédiaire, les diagrammes de phases de part et d'autre du demi-remplissage sont très similaires et il ne semble pas exagéré de croire qu'une physique grandement similaire serait valide tant du côté dopé aux trous qu'aux électrons (**Sec. A**).

Aussi, bien que les calculs soient effectués selon l'axe c dans le but d'éviter la problématique des corrections de vertex [67], nous constatons tout de même une bonne représentation de ce qui se passe de façon expérimentale lorsqu'un crossover entre deux phases métalliques distinctes se situe juste au-dessus de la température critique supraconductrice T_c .

Pour clore cette section, Oike et collab. [13] et Suzuki et collab. [14] trouvent des comportements qui peuvent être expliqués par la ligne de Widom tout près du maximum de la température critique pour la phase supraconductrice. La **Fig. 3.2c** de Oike et collab. expose un comportement de crossover pour les propriétés de transport au-dessus du dôme supraconducteur, tout comme les résultats théoriques présentés à la **Fig. 3.2a**. Nous argumentons que les calculs présentés ici sont une source suffisante pour affirmer que ces crossovers au-dessus du dôme supraconducteur pour le composé κ -(ET)₄Hg_{2.89}Br₈ sont en fait une manifestation de la ligne de Widom dans ce matériau et tiennent leurs origines des fortes interactions électroniques dans ce matériau.

3.3 Loi de Homes sur le modèle triangulaire anisotrope

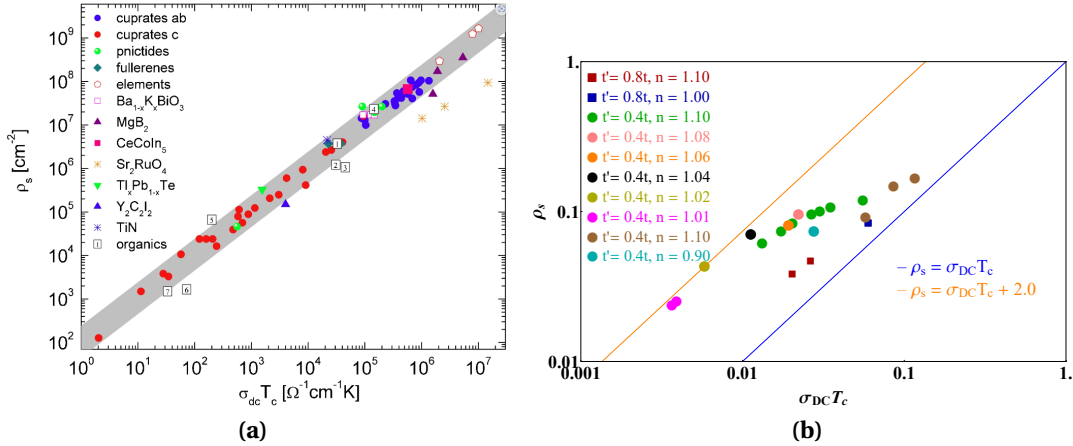


FIGURE 3.3 a.) Diagramme expérimental de la relation de Homes dans les supraconducteurs non conventionnel. Figure tirée de [16].

b.) Diagramme théorique de la relation de Homes sur le réseau triangulaire anisotrope en CDMFT. Les valeurs des paramètres sont prises à la valeur de pression (d'interaction) à laquelle T_c est maximale, soit T_c^m . Cette valeur d'interaction associée à T_c^m est notée U_c^m

La loi de Homes illustre une relation de proportionnalité entre des quantités physiques clés d'un matériau supraconducteur. Cette relation de proportionnalité semble caractériser de façon universelle les supraconducteurs non conventionnels. Les quantités physiques en question sont la température supraconductrice critique T_c , la rigidité superfluide à température nulle $\rho_s(T = 0)$ (ou de façon équivalente et à un préfacteur prêt, la longueur de pénétration au carré) et finalement la valeur de la conductivité juste au-dessus de T_c , $\sigma_{DC}(T = T_c)$ [16]. Il est donc d'intérêt de vérifier si les calculs sur le réseau triangulaire anisotrope pour plusieurs valeurs de paramètres, modélisant différents composés organiques de la famille des $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$, peuvent reproduire une telle loi de proportionnalité entre ces trois quantités physiques décrites précédemment. Les résultats d'une telle étude d'un point de vue expérimental ont été colligés par les chercheurs de l'article cité précédemment et leur diagramme est présenté à la Fig. 3.3a.

La Fig. 3.3b présente les résultats de la loi de Homes obtenus par calculs numériques par la méthode CT-HYB, ainsi que de prolongement analytique par la méthode d'entropie maximale [68]. Le calcul de la conductivité électrique est obtenu par l'Eq. 2.144 en réponse aux prolongements analytiques dans la phase normale juste au-dessus du T_c maximal (T_c^m) pour chaque «matériau» étudié, c'est-à-dire pour chaque ensemble de paramètres fixe (t', n, U_c^m). U_c^m est l'interaction pour laquelle le maximum de la température supraconductrice se manifeste. Il s'agit de la même notation que dans l'article de la Sec.

3.1. La valeur de la rigidité superfluide est prise à U_c^m et à la température la plus faible accessible aux simulations, celle-ci étant comprise entre $T/t = 1/200$ et $T/t = 1/60$. La méthodologie pour les prolongements analytiques est présentée avec davantage de détails à l'Annexe F. De plus, les détails des résultats de la rigidité superfluide sont présentés dans l'Annexe J.

Pour terminer, les résultats théoriques **Fig. 3.3b** sont en accord qualitatif avec la loi de Homes. Effectivement, nous observons que la relation de proportionnalité est respectée dans une bande relativement étroite sur un peu plus de deux ordres de grandeur sur l'axe des abscisses. Cet accord qualitatif et quantitatif entre les résultats théoriques et expérimentaux est un succès additionnel pour la modélisation des matériaux à supraconductivité non conventionnelle par les méthodologies présentées dans ce mémoire à la **Sec. 2**.

Conclusion

L'avènement de la théorie de champ moyen dynamique (et de ses extensions sur amas par le biais de la CDMFT) couplé aux solveurs Monte Carlo en temps continu (CT-QMC) a apporté un avancement considérable dans les études des systèmes d'électrons fortement corrélés. Ces méthodologies permettent une étude plus précise et réaliste de nombreux supraconducteurs non conventionnels, tels les cuprates et les conducteurs organiques en couche.

Les objectifs principaux de ce mémoire étaient précisément d'utiliser ces méthodologies pour étudier plus en détail plusieurs aspects de ces conducteurs organiques.

Premièrement, nous avons présenté la théorie et la méthodologie nécessaire à l'implémentation d'un logiciel de simulations numériques portant sur le Monte Carlo quantique en temps continu avec interactions génériques de types électroniques et phononiques. Ce logiciel a été utilisé, entre autres, pour démontrer l'existence de la transition de Sordani sur des amas de grande taille sur le réseau triangulaire [23].

Deuxièmement, les résultats expérimentaux portant sur un composé organique dopé en trous exposant un dôme supraconducteur [13] ont été expliqués par des études théoriques menées principalement par l'auteur de ce présent mémoire [62]. Nous avons démontré que les caractéristiques clés des diagrammes de phases expérimentaux peuvent être fidèlement reproduites par les méthodologies expliquées dans le premier objectif.

Troisièmement, nous avons étudié théoriquement plus en détail les phases normale et supraconductrice des conducteurs organiques. Nous avons démontré que le comportement de crossover de plusieurs quantités de transport tout près du maximum du dôme supraconducteur observé expérimentalement peut être reproduit théoriquement et s'explique par la présence d'une ligne de Widom. Plus précisément, le comportement en fonction de la pression pour la conductivité est calculé et démontre un comportement similaire à celui observé expérimentalement.

Finalement, la loi de Homes dans les supraconducteurs non conventionnels, qui illustre une relation de proportionnalité entre la température critique supraconductrice T_c , la conductivité électrique juste au-dessus de T_c et la rigidité superfluide à température nulle est démontrée par des calculs théoriques à l'aide des outils de CDMFT, CT-QMC et de prolongements analytiques. Le respect de la loi de Homes par les méthodologies utilisées ici est un succès additionnel pour la modélisation des supraconducteurs organiques par le modèle de Hubbard sur le réseau triangulaire anisotrope.

Pour des études subséquentes, il serait intéressant de finaliser la bonification du programme *ctmo2* avec des avancées d'apprentissage automatique dans le but d'en aug-

menter la performance. Une partie du travail a déjà été effectuée par le présent auteur par la possibilité de sauvegarder les configurations et les poids. De plus, les logiciels pour le "self learning Monte Carlo" ont déjà été implémentés et testés par le présent auteur (voir l'Annexe B et les [Logiciels de simulations physiques](#)). Ces avancés en performance pourraient servir à étudier l'effet Nernst au-dessus du dôme supraconducteur tel que dans l'article expérimental de Suzuki et al. [14].

Annexe A

Diagrammes de phases supplémentaires

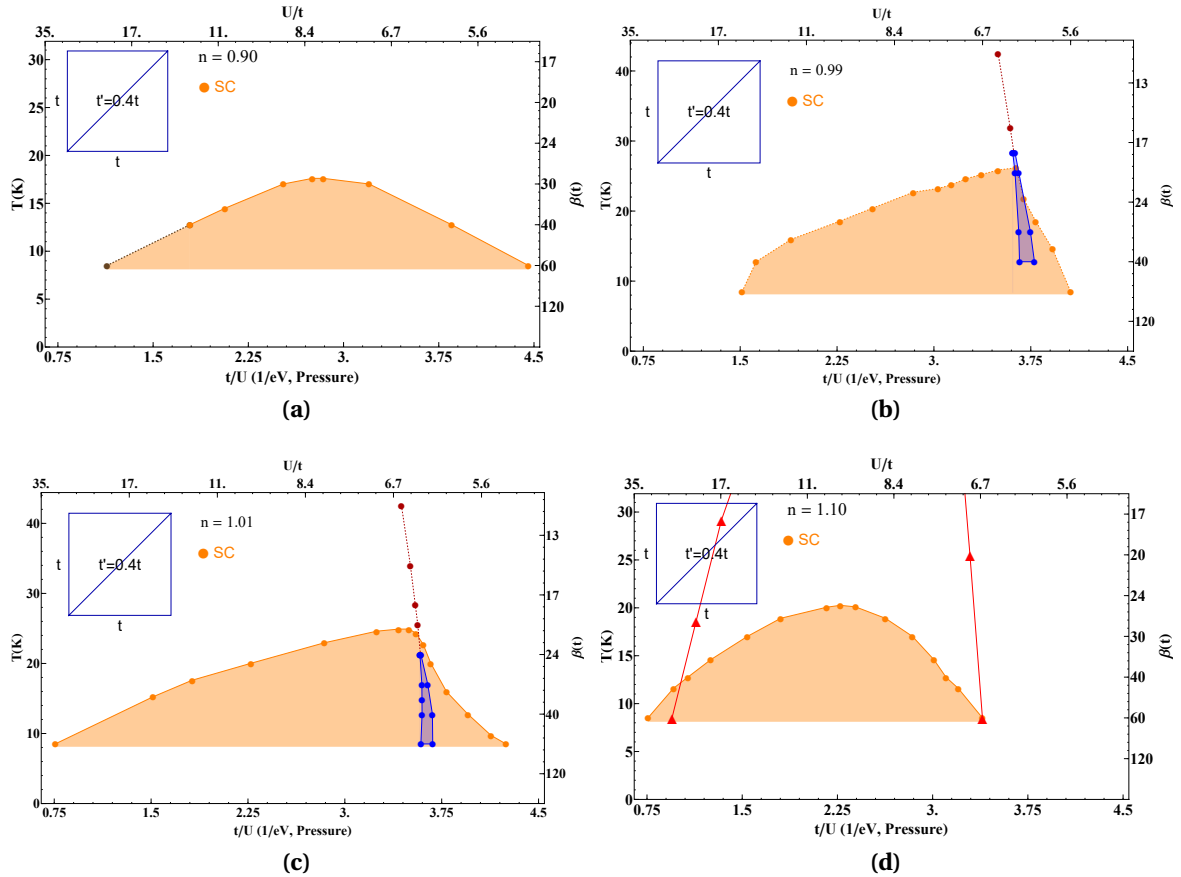


FIGURE A.1 Diagrammes de phase à dopages finie pour le réseau triangulaire anisotrope ($t' = 0.4t$) en CDMFT à température finie. Le diagramme b.) est un supplément à l'article *Superconducting dome in doped quasi-two-dimensional organic Mott insulators : A paradigm for strongly correlated superconductivity* [62]. Les autres diagrammes sont reproduits ici par fin de complétude. L'Acronyme SC définit la phase supraconductrice. Les points rouges délimitent la température de Néel. Les valeurs des températures de Néel sont décrites en détail dans l'article précédemment cité et ne sont pas exposées sur tous les graphiques pour fin de visibilité des autres phases. Les spinodales bleus délimitent une zone de coexistence entre deux phases métalliques, dont l'une possède un pseudogap à basse pression et l'autre non à plus haute pression.

(a) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en trous de 10%. Le point brun ainsi que la ligne brune sont des extrapolations.

(b) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en trous de 1%.

(c) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en électrons de 1%.

(d) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en électrons de 10%.

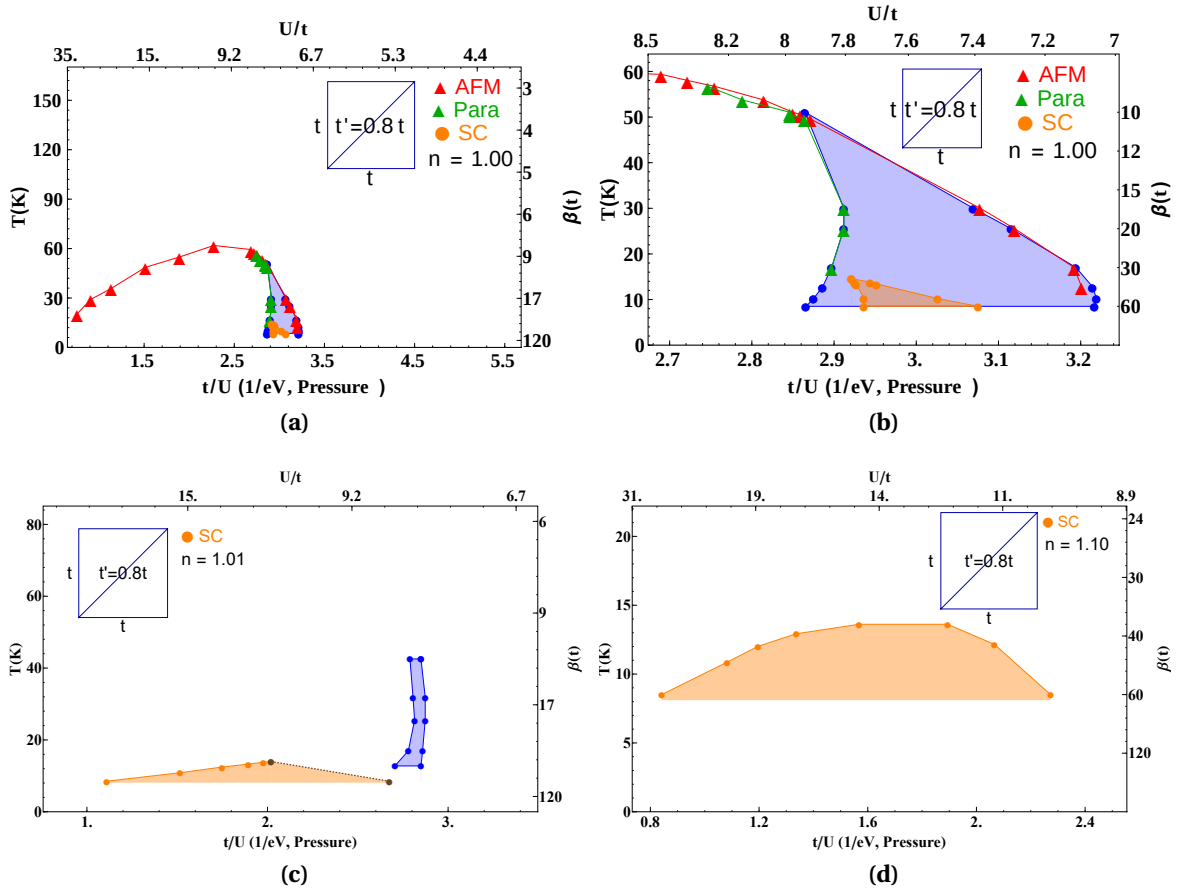


FIGURE A.2 Diagrammes de phase à dopages finie pour le réseau triangulaire anisotrope ($t' = 0.8t$) en CDMFT à température finie. Ces diagrammes sont des suppléments à l'article *Superconducting dome in doped quasi-two-dimensional organic Mott insulators : A paradigm for strongly correlated superconductivity* [62]. Les valeurs des températures de Néel sont décrites en détail dans l'article précédemment cité et ne sont pas exposées sur tous les graphiques pour fin de visibilité des autres phases.

(a) Diagramme de phase à demi remplissage avec toute l'étendu de l'AFM démontré graphiquement.

(b) Diagramme de phase à demi remplissage.

(c) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en électrons de 1%. Il faut noter que les simulations étaient particulièrement pénibles dans ce régime et que le diagramme de phase doit être vu seulement comme une estimation ici, les valeurs d'incertitudes étant bien plus importantes que toutes les autres mesures dans ce mémoire.

(d) Diagramme de phase pour une valeur de dopage en électrons de 10%.

Self learning Monte Carlo et auto-apprentissage

Dans cette annexe, nous décrivons les équations détaillées nécessaires pour l'implémentation de la technique du Monte Carlo en apprentissage automatique tel que décrit dans l'article [69].

Débutons par l'équation (8) de l'article précédemment cité, qui définit l'Hamiltonien du système à l'étude de la façon suivante

$$-\beta H_n^{\text{eff}}(s_i, \tau_i) := \frac{1}{N-1} \sum_{i < j} J(\tau_i - \tau_j) s_i s_j \quad (\text{B.1})$$

$$+ \frac{1}{N-1} \sum_{i < j} L(\tau_i - \tau_j) + F(n) \quad (\text{B.2})$$

avec les définitions suivantes pour les fonctions J, L et F

$$J(\tau) = \sum_{l=0}^{C_J} a_l P_l[x(\tau)] \quad (\text{B.3})$$

$$x(\tau) = \frac{2\tau}{\beta} - 1 \quad (\text{B.4})$$

$$L(\tau) = \sum_{l=0}^{C_L} b_l P_l[x(\tau)] \quad (\text{B.5})$$

$$F(n) = \sum_{l=0}^{C_F} c_l n^l. \quad (\text{B.6})$$

La valeur de gauche de l'Eq. B.1 est donnée par le logarithme du poids d'une configuration en CT-QMC

$$-\beta H_n^{\text{eff}}(s_i, \tau_i) := \log W(\mathcal{C}_i) \quad (\text{B.7})$$

Puisque les quantités calculées dans les logiciels de simulations numériques sont en fait les ratios des poids, nous obtenons

$$R(i-1, i) = \frac{W(\mathcal{C}_i)}{W(\mathcal{C}_{i-1})} \quad (\text{B.8})$$

$$\log W(\mathcal{C}_i) = \log W(\mathcal{C}_{i-1}) + \log R(i-1, i) \quad (\text{B.9})$$

Une fois que les configurations et le logarithme de leur poids ont été accumulés, il est possible d'obtenir les valeurs des paramètres dans les équations B.3, B.5, B.6 en ré-écrivant le tout sous forme de modèle multilinéaire.

Effectivement, définissons d'abord l'ensemble des paires $s_i s_j \rightarrow \gamma_k ; \tau_i - \tau_j \rightarrow \tau_k ; k \in \{1, K\} ; K = \frac{N(N-1)}{2}$

$$\Rightarrow -\beta H_n^{\text{eff}}(s_i, \tau_i) = \frac{1}{N-1} \sum_k J(\tau_k) \gamma_k \quad (\text{B.10})$$

$$+ \frac{1}{N-1} \sum_k L(\tau_k) + F(n) \quad (\text{B.11})$$

$$= \frac{1}{N-1} \sum_k \sum_{l=0}^{C_J} a_l P_l[x(\tau_k)] \gamma_k \quad (\text{B.12})$$

$$+ \frac{1}{N-1} \sum_k \sum_{l=0}^{C_L} b_l P_l[x(\tau_k)] + \sum_{l=0}^{C_F} c_l n^l \quad (\text{B.13})$$

$$= \sum_{l=0}^{C_J} a_l A_l + \sum_{l=0}^{C_L} b_l B_l + \sum_{l=0}^{C_F} c_l C_l \quad (\text{B.14})$$

$$A_l := \frac{1}{N-1} \sum_k P_l[x(\tau_k)] \gamma_k \quad (\text{B.15})$$

$$B_l := \frac{1}{N-1} \sum_k P_l[x(\tau_k)] \quad (\text{B.16})$$

$$C_l = n^l \quad (\text{B.17})$$

Soit $(m, p) := (\# \text{ d'échantillons}, \# \text{ composantes})$ avec $p = C_J + C_L + C_f$

Il y a donc $A_{l,i}$ soient les A_l pour l'échantillon i $B_{l,i}$ et $C_{l,i}$

$$\hat{X} = \begin{bmatrix} A_{0,1} & A_{1,1} & \dots & A_{C_J,1} & B_{0,1} & \dots & B_{C_L,1} & C_{0,1} & \dots & C_{C_F,1} \\ & \cdot & & & \dots & & & \cdot & & \\ & \cdot & & & \dots & & & \cdot & & \\ & \cdot & & & \dots & & & \cdot & & \\ A_{0,m} & A_{1,m} & \dots & A_{C_J,m} & B_{0,m} & \dots & B_{C_L,m} & C_{0,m} & \dots & C_{C_F,m} \end{bmatrix} \quad (\text{B.18})$$

Il est donc possible de résoudre ce système multilinéaire avec les méthodes usuelles.

Annexe C

Documentation pour le logiciel ctmo2

ctmo2 Documentation

Release 2.0.0

Charles-David Hebert

Sep 18, 2022

CONTENTS

| | | |
|----------|----------------------------------|-----------|
| 1 | Introduction | 1 |
| 2 | Installation and Tutorial | 3 |
| 3 | The Parameter file | 7 |
| 4 | Important Notes | 13 |

INTRODUCTION

ctmo stands for *Continuous time multi-orbital*.

1.1 Conventions

1.1.1 Comments

We use the convention “\$” for the start of a shell command and “#” for commenting shell commands, etc.

Ex:

\$ cd path/to/thing # change to the path of thing.

1.1.2 Executable names

There are two main executables: *ctmo* and *ctmo_dca*. The first executable uses the Cluster Dynamical mean field theory, whereas the second executable uses the Dynamical cluster approximation.

1.1.3 Hamiltonian

The hamiltonian is a density-density type hamiltonian with phonon coupling (**Notice the + sign for the hopping term**):

$$H = \sum_{\rho\rho'\sigma} t_{\rho\rho'} c_{\rho\sigma}^\dagger c_{\rho'\sigma} + \sum_{r,\nu} U_{\nu,\nu} n_{r\nu\uparrow} n_{r\nu\downarrow} + \sum_{r\sigma,\nu<\nu'} U'_{\nu,\nu'} n_{r\nu\sigma} n_{r\nu'\bar{\sigma}} + \sum_{r\sigma,\nu<\nu'} (U'_{\nu,\nu'} - J_{\nu,\nu'}^H) n_{r\nu\sigma} n_{r\nu'\sigma} + H_{\text{Phonons}}$$

Important notes for the actual implementation:

- For now, we permit a relatively generic hopping matrix.
- The value of the interactions are not general yet, only one U, U' and J_H are permitted for now. Generalization could be easily acheived, but seldom used.
- Only one value (independent of the orbital index) is permitted for the phonon frequency and electron-phonon coupling.

INSTALLATION AND TUTORIAL

2.1 Installation

Note : If build problems, please remove the build directory if it exists, then retry :

```
$ rm -rf build
```

2.1.1 Dependencies

Mandatory Dependencies

1. Armadillo
2. boost (mpi, serialization, filesystem, system)

Optional Dependencies

1. snappy
2. Postgresql

2.1.2 Pre-Steps

1. Make sure you have a “bin” directory in your home folder
2. Append the bin folder to your path. Add the following line to your ~/.bashrc: export PATH="\$PATH:~/bin"
3. \$ source ~/.bashrc

2.1.3 Linux (Ubuntu 16.04 and later)

This installation procedure should work for many recent Linux flavors. For the following we present the instructions specific for Ubuntu or derivatives.

1. **Install the Dependencies**

```
$ sudo apt-get install libarmadillo-dev libboost-all-dev cmake
```

2. \$ mkdir build && cd build && cmake -DBUILD_TESTS=OFF .. && make -j NUMBER_OF_CORES
replace NUMBER_OF_CORE by say = 4

3. sudo make install

2.1.4 Mac

76

This has been tested on macOS 10.13.6.

1. **Install the Dependencies (with Homebrew**

```
[https://brew.sh/)] $ brew install armadillo $ brew install boost $ brew install boost-mpi $ brew install postgresql $ brew install snappy
```

2. \$ mkdir build && cd build && cmake -DBUILD_MAC=ON -DBUILD_HOME=OFF .. && make -j NUMBER_OF_CORES
replace NUMBER_OF_CORE by say = 4
3. sudo make install

2.1.5 Graham, Ceder, mp2b, ms2b

1. \$ module reset
2. \$ module load nixpkgs/16.09 gcc/5.4.0 armadillo boost-mpi snappy cmake
3. \$ mkdir build && cd build
CXX=mpic++ cmake -DBUILD_GRAHAM=ON -DBUILD_MPI=ON -DBUILD_HOME=OFF ..
make
4. Copy the executables to a know location on your path.
For example: \$ mkdir ~/bin && cp -i ../src/ctmo* ~/bin/
Add the ~/bin to your path :
in ~/.bashrc add the following line at the end:
export PATH="\$PATH:~/bin"

2.1.6 Beluga

1. \$ module reset
2. \$ module load nixpkgs/16.09 gcc/7.3.0 cmake armadillo/7.950.1 snappy boost-mpi cmake
3. \$ mkdir build && cd build
CXX=mpic++ cmake -DBUILD_GRAHAM=ON -DBUILD_MPI=ON -DBUILD_HOME=OFF ..
make
4. Copy the executables to a know location on your path.
For example: \$ mkdir ~/bin && cp -i ../src/ctmo* ~/bin/
Add the ~/bin to your path :
in ~/.bashrc add the following line at the end:
export PATH="\$PATH:~/bin"

2.2 Tutorial

77

For Mp2 and Graham, use the “scractch” directories. If build problems, please remove the build directory if it exists, then retry :

```
$ rm -rf build
```

2.2.1 Graham (Mp2b): Tutorial 1

First steps

1. Connect to Graham (Mp2b):
\$ ssh -X “user”@graham.compute canada.ca # where “user” is your compute canada/Mp2 Username
2. Ensure you have done the Pre-Steps described in *Installation and Tutorial*.
3. \$ salloc –time=01:00:00 –ntasks=1 –mem-per-cpu=4000 –account=def-tremblay
4. \$ module reset
5. \$ module load nixpkgs/16.09 gcc/5.4.0 armadillo boost-mpi
6. \$ cd ~/scratch
7. \$ cp -r ~/projects/def-tremblay/tutorial_ctmo ./
8. \$ srun ctmo params1.json

Here are the next steps.

Next steps

This will produce many files. Look at them with ls:

The important output files are greenUp.dat, hybUp.dat, selUp.dat. Note that the files are renamed corresponding to the current iteration.

Let us plot the green fonction.

```
$ gnuplot $ plot ‘greenUp.dat’ u 1:3 w lp ps 2
```


THE PARAMETER FILE

The parameter files used to specify the details of the Monte Carlo simulations are in the json format. This file format is convenient, readable and also ubiquitous. While reading the following descriptions, please open up the file 'test/Simulations/holstein_DMFT_T0.3/params1.json' to follow along. The name of the parameters follow the simple camelCase convention.

You can also reference the parameter file here: *Example Parameter file*

3.1 monteCarlo

The parameters in this sub-json specify the monte carlo specific details:

measurementTime (float)

The time in minutes each processor measures.

thermalizationTime (float)

The time in minutes for which each processor will thermalize. It is difficult to give a good optimal value. I would say, ~10% of the measurement time.

seed (int)

The seed for the random number generator.

thermalizeFromConfig (bool)

Should the program thermalize or simply start measuring format the previously saved configuraion. If true thermalizes from the previously saved configuration.

3.2 model

beta (float)

The inverse temperature in Hartree units.

hybUpFile (string)

The name of the hybridization file for the current iteration.

modelFile (string)

The name of the model file that states the symmetries for the green function.

J_H (float)

The interaction value for different orbitals and same spin.

nkpts (int)

80

The number of k points used in the selfconsistency and to calculate the local hopping matrix.

nOrb (int)

The number of orbitals.

U (float)

The interaction value for same orbitals but different spin.

UPrime (float)

The interaction value for different orbitals and different spin.

delta (float)

Mathematical value to avoid sign problem. This value enters in the auxiliary Ising spin variables. Value should be near 0.01.

gPhonon (float)

The value for electron-phonon coupling.

w0Phonon (float)

The value for the phonon frequency.

mu (float)

The value of the chemical potential.

cluster (List[int])

- Nx: Cluster length in x.
- Ny: Cluster length in y.
- Nz: Cluster length in z.

tParameters (List[List[float]])

For each independent orbital, one should specify the hopping matrix. For an example with one orbital, please refer to the *Example Parameter file*. For an example with two orbitals, please refer to `test/Simulations/2x2Square_2Orb`.

- tx: hopping nearest-neighbor in x.
- t2x: hopping second neighbor in x.
- t3: Third nearest-neighbor hopping.
- tx=y: hopping along x = y diagonal
- tx=-y: hopping along x = -y diagonal
- etc.

3.3 solver

cleanUpdate (int)

The number of updates before calculating the Green matrixs from scratch. A good value is around 20000-50000.

updateMeas (int)

The number of updates before performing a measurement.

averageOrbitals (bool)

81

true if the orbitals are “identical”, you then want to average the results over the orbitals. If the orbitals are different, then set to false

isOrbitalDiagonal (bool)

true if orbitals don't interact between one another.

eCutGreen (int)

Cut-off energy for the measurement of the green function.

ntau (int)

The number of tau points for the green function entering in the solver. A minimal value is taken by default if the value given here is too small.

n_tau_sampling (int)

The number of time-translational invariant configurations to take for each measurement. The value of 5 seems optimal in many cases.

3.4 selfCon

eCutSelfCon (int)

The cut-off energy to use in the selfconsistency (not used for now).

weightsR (int)

The mixing value used for the selfconsistency for the real part of the hybridization.

weightsI (int)

The mixing value used for the selfconsistency for the imaginary part of the hybridization.

3.5 logging

level (string)

The logging level of the program. The options are as follows, with increasing verbosity:

- warn # the less verbose
- info
- debug
- trace # The most verbose

logToFile (bool)

true if the program should log to a file.

file (string)

The name of the file to log to.

3.6 Example Parameter file

```
{
  "ctmoVersion": "2.0.0",
  "logging": {
    "file": "ctmo.log",
    "level": "debug",
    "logToFile": true
  },
  "model": {
    "J_H": 0.0,
    "U": 20.0,
    "UPrime": 0.0,
    "beta": 5.0,
    "cluster": {
      "Nx": 1,
      "Ny": 1,
      "Nz": 1
    },
    "delta": 0.01,
    "gPhonon": 0.0,
    "hybUpFile": "hybUp50.dat",
    "modelFile": "SIAM_Square.model",
    "mu": 10.0,
    "nOrb": 1,
    "nkpts": 256,
    "tParameters": {
      "00": {
        "t2x": 0.0,
        "t2y": 0.0,
        "t2z": 0.0,
        "t3": 0.0,
        "tIntra": 0.0,
        "tx": -1.0,
        "tx=-y": 0.0,
        "tx=-z": 0.0,
        "tx=y": 0.0,
        "tx=z": 0.0,
        "ty": -1.0,
        "ty=-z": 0.0,
        "ty=z": 0.0,
        "tz": 0.0
      }
    },
    "w0Phonon": 0.0
  },
  "monteCarlo": {
    "measurementTime": 30.0,
    "seed": 203937213,
    "thermFromConfig": false,
    "thermalizationTime": 0.5
  },
}
```

(continues on next page)

(continued from previous page)

```
"selfCon": {
  "eCutSelfCon": 200,
  "weightsI": 0.2,
  "weightsR": 0.2
},
"slmc": {
  "batchSize": 500,
  "maxBatchesSaved": 40,
  "measurementTime": 600.0,
  "simulationId": -9999,
  "thermalizationTime": 5.0,
  "updatesMeas": 50000
},
"solver": {
  "S": 1.0,
  "averageOrbitals": true,
  "cleanUpdate": 10000,
  "eCutGreen": 100,
  "isOneOrbitalOptimized": true,
  "isOrbitalDiagonal": true,
  "n_tau_sampling": 5,
  "ntau": 5000,
  "updatesMeas": 100
}
}
```


IMPORTANT NOTES

4.1 Conventions

The conventions for the cluster sites follow the cartesian plan, starting by the site 0. The sites are numbered in the order of increasing x, then increasing y, then increasing z.

The same applies to the definition of the K points in DCA.

4.2 Important Output files

The important output files are the following:

- **outPutConvention.dat:**

The outPut of the green, hyb and self files regarding the cluster sites. For example, if the outPutConvention file has the following form: (0,0) (0,1) (0,3)

We thus have N Independant green fuctions (NIndep “Sites pair”). Then the green function has the first column as the frequencies, the second and third column as the real and imaginary part of G_{00} respectively and so on. If there are multiple orbitals, then we repeat this process for each orbital. Ex. Say 2 orbitals, o1 and o2, then we have the previous definition for (o1, o1), then (o1, o2), then (o2, o2) for a total of $(3*3*2 + 1)$ columns, i.e $1 + [NIndep*NOrb*(NOrb+1)/2]*2$ Columns.

- **greenUp\${ITER}.dat:**

The green function.

- **selfUp\${ITER}.dat:**

The self-energy function.

- **hybUp\${ITER}.dat:**

The hybridization function.

- **Obs.json:**

All the observables computed. For each of these observables, we also have a .dat file associated. For example, docc.dat, sign.dat, docc0_0.dat (double occupancy of site0, orbital0). Etc.

4.3 Averaging the results

86

Simple as using a python module:

1. module load python/3.7 scipy-stack
2. pip install --user statsfiles
3. cd DIRECTORY_OF_SIMULAION
4. **Replace `{ITERSTART}` in the following line with the iteration at which to start the averging.**
5. python -m statsfiles `{ITERSTART}` --cdh

Sometimes, you may encounter problems if the program ctmo has been terminated while it would have been writing files, such as the green function. Therefore, if you get an error of numpy shape, then remove the last iteraion of greenUp, selfUp and hybUp files and this should resolve the problem.

Susceptibilité magnétique uniforme et choix de l'amas

Le calcul de la susceptibilité uniforme de spin en CDMFT est présenté dans les graphiques de la présente annexe. Le choix de l'amas influence grandement le comportement en température de cette quantité physique. En effet, en se référant à la **Fig. D.1**, il est aisé de constater que les amas triangulaires à trois sites posent une problématique. Effectivement, à basse température, un comportement de Curie-Weiss est observé pour la susceptibilité. Il est donc possible d'affirmer que le système à basse température se comporte comme un spin $1/2$ effectif. En revanche, l'amas à quatre sites possède des comportements à basse température qui ne peuvent être expliqués par une physique sans interaction et compose donc un modèle intéressant et proche des expériences. Il faut donc rejeter les amas à sites impairs.

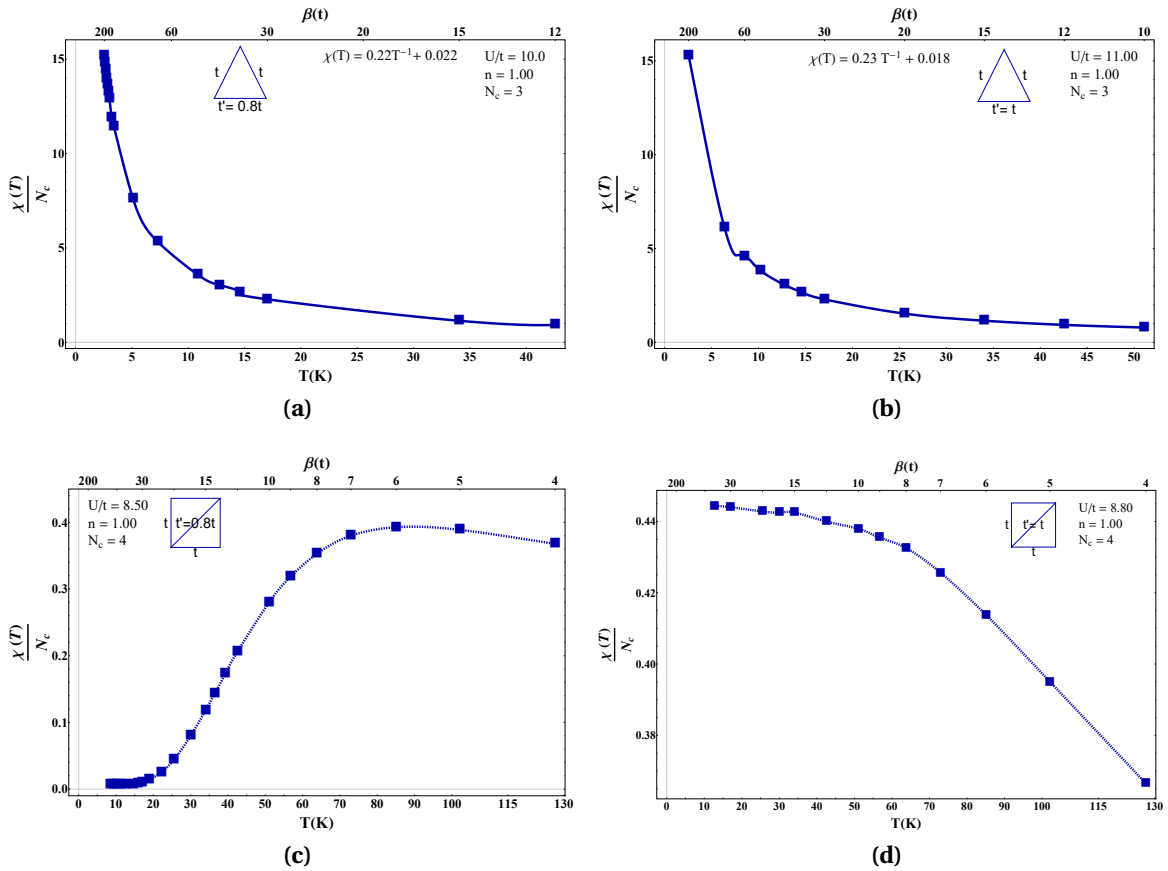


FIGURE D.1 Susceptibilité locale de spin en fonction de la température pour divers paramètres de remplissage, d'interaction et de configuration d'amas.

(a) Susceptibilité pour l'amas triangulaire anisotrope à trois sites avec saut au deuxième voisin de valeur $t'=0.8t$ à demi remplissage pour la valeur d'interaction $U/t = 10.0$. Le comportement caractéristique de la relation de Curie-Weiss est clairement visible.

(b) Susceptibilité pour l'amas triangulaire isotrope à trois sites avec saut au deuxième voisin de valeur $t'=t$ à demi remplissage pour la valeur d'interaction $U/t = 11.00$. Le comportement caractéristique de la relation de Curie-Weiss est clairement visible.

(c) Susceptibilité pour l'amas triangulaire anisotrope à quatre sites avec saut au deuxième voisin de valeur $t'=0.8t$ à demi remplissage pour la valeur d'interaction $U/t = 8.50$.

(d) Susceptibilités pour l'amas triangulaire isotrope à quatre sites avec saut au deuxième voisin de valeur $t'=t$ à demi remplissage pour la valeur d'interaction $U/t = 8.80$.

La chaleur spécifique en CDMFT

Théoriquement, nous pouvons aussi calculer la chaleur spécifique de nombreuses façons. Effectivement, il faut en premier lieu calculer l'énergie de la plaquette à différentes températures, avec tous les autres paramètres fixes. Par la suite, une forme analytique pour la chaleur spécifique est postulée ou une interpolation numérique est utilisée pour calculer la dérivée. Une forme analytique possible est une série de Fourier d'exponentielles de la forme suivante et donne de très bons résultats

$$C_V = \sum_{k=1}^N b_k e^{-\left(\frac{k\alpha}{T}\right)}. \quad (\text{E.1})$$

La valeur du paramètre α est libre et doit être optimisée. Il faut choisir le nombre N judicieusement selon les bonnes pratiques de lissage de courbes. La figure E.1 présente la chaleur spécifique calculée en CT-QMC avec le solveur CT-HYB pour plusieurs valeurs de paramètres. Nous utilisons l'équation E.1 pour lisser la valeur de l'énergie en fonction de la température, car l'intégrale de la fonction ci-haut nous donne la valeur de l'énergie.

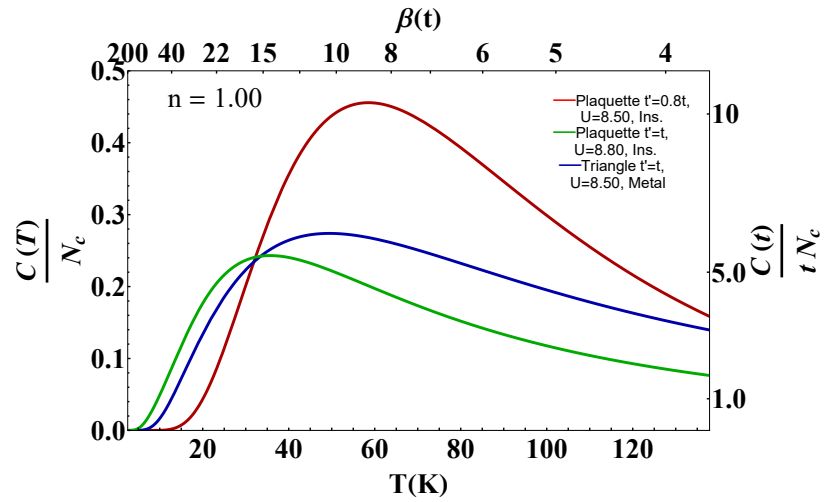


FIGURE E.1 Chaleur Spécifique pour différents amas et divers paramètres, provenant de calculs CT-QMC.

Le pic à basse température visible dans la chaleur spécifique de la figure E.1 s'explique par les corrélations à forte interaction. En effet, l'explication fourni par la référence [70], identifie ce pic avec le développement d'excitations de spin de basse énergie.

Prolongement analytique en CDMFT

Les prolongements analytiques pour les quantités calculées dans ce mémoire ont été effectués par le biais de la méthode d'entropie maximale [68].

Pour ce faire, plusieurs méthodologies et astuces doivent être employées. La quantité essentielle à obtenir est la self-énergie en fréquences réelles. Nous pouvons prolonger seulement la self-energie par construction d'une fonction de Green Auxiliaire de l'amas [71], [72]

$$\hat{\mathbf{G}}_c^A = (z + \mu - \hat{\Sigma}_c)^{-1}. \quad (\text{F.1})$$

Pour l'obtention de la self-énergie dans cette méthodologie, N_I composantes indépendantes de la fonction de Green Auxiliaire doivent être prolongées.

Une autre approche consiste plutôt à prolonger la fonction d'hybridation de l'amas en question et ensuite la fonction de Green de l'amas. Cela permet d'extraire la self-énergie par l'utilisation de l' **Eq. 2.24**. Ici $2 \times N_I$ composantes doivent être prolongées (N_I pour $\hat{\Delta}_c$ et N_I pour $\hat{\mathbf{G}}_c$).

Les deux méthodes étant stables, les prolongements sélectionnés dépendent des vérifications faites sur les self-énergies (qui doivent être causales), mais aussi avec les calculs de densités d'états, qui selon l'**Eq. 2.36** doit être égale sur l'amas et sur la fonction de Green périodisée. Effectivement, le prolongement de la trace normalisée de la fonction de Green de l'amas n'impliquant qu'un seul prolongement analytique constitue un bon étalon pour vérifier les résultats de N_I ou $2 \times N_I$ prolongements analytiques. Un autre métrique permettant la validation des prolongements analytique est le calcul du nombre de porteurs sur l'amas, car cette quantité est directement disponible par les calculs CT-QMC dans l'espace de Matsubara et peut être aisément calculée par les méthodes usuelles de physique statistique [27] en fréquences réelles.

Cartographie entre CT-AUX et CT-INT

Il est possible et avantageux d'écrire sous une notation unifiée les deux méthodes de couplage faible de CT-QMC . Cette dérivation utilise ma propre notation, grandement inspirée des références [37, 46, 73, 74].

$$W(\mathcal{C}_n) = \left(\prod_{i=1}^n \frac{K_i(s)}{(2\beta N_{cl})} \right) \text{Det}[A(\mathcal{C}_n)] \quad (\text{G.1})$$

$$K_i(s) = K_{\kappa\kappa'}(s) \quad (\text{G.2})$$

$$= \frac{-\beta V_{\kappa\kappa'} N_{cl}}{(f_{\kappa}(s) - 1)(f_{\kappa'}(s) - 1)} \quad (\text{G.3})$$

$$A(\mathcal{C}_n) = F(\mathcal{C}_n) - \tilde{G}(\mathcal{C}_n)(F(\mathcal{C}_n) - 1) \quad (\text{G.4})$$

$$F(\mathcal{C}_n)_{ij} = f_{ij} \delta_{ij} \quad (\text{G.5})$$

$$\tilde{G}(\mathcal{C}_n)_{ij} = \tilde{g}_{ij}^0 \quad (\text{G.6})$$

Notons que, dans le cas sans supraconductivité, la matrice $A(\mathcal{C}_n)$ se factorise en spin up et down. Aussi, \tilde{g}_{ij}^0 est la fonction de Green non interagissante avec le potentiel chimique décalé. Le tableau suivant définit les valeurs des fonctions F et K dans le cas du modèle de Hubbard à une bande.

| | CT-AUX | CT-INT |
|----------|-----------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|
| f_{ij} | $e^{\gamma(-1)^\sigma s_i} \delta_{ij}$ | $\frac{\alpha_{\sigma_i}(s_i)}{\alpha_{\sigma_i}(s_i) - 1} \delta_{ij}$ |

TABLE G.1 Valeur de la fonction auxiliaire pour le développement CT-INT ou CT-AUX.

Notons que pour $s_i = 0$, $f_{ij} = 0$. Et γ est le paramètre libre pour la transformation de Hubbard–Stratonovich.

Lien entre Submatrix et normal

Débutons par démontrer l'équivalence entre la méthode submatrix et la méthode normale pour un Hamiltonien sans interaction qui permettent de séparer les secteurs de spins :

Partons de l'équation G.1 et tentons de la ramener à la forme 2.75.

$$W(C_n) = \left(\prod_{i=1}^n \frac{K_i(s)}{(2\beta N_{cl})} \right) DetA(C_n) \quad (\text{H.1})$$

$$= \left(\prod_{i=1}^n \frac{-V_{\kappa_i, \kappa'_i}}{2(f_{\kappa_i}(s_i) - 1)(f_{\kappa'_i}(s_i) - 1)} \right) DetA(C_n) \quad (\text{H.2})$$

$$= \left(\prod_{i=1}^n \frac{-V_{\kappa_i, \kappa'_i}}{2} \right) \left(\prod_{i=1}^n \frac{1}{(f_{\kappa_i}(s_i) - 1)(f_{\kappa'_i}(s_i) - 1)} \right) DetA(C_n) \quad (\text{H.3})$$

$$DetA(C_n) = Det \left(F(C_n) - \tilde{G}(C_n)(F(C_n) - 1) \right) \quad (\text{H.4})$$

$$= \prod_{j=1}^n f_{\kappa_j}(s_j) f_{\kappa'_j}(s_j) - Det(\tilde{G}(C_n)) \left(\prod_{j=1}^n (f_{\kappa_j}(s_j) - 1)(f_{\kappa'_j}(s_j) - 1) \right) \quad (\text{H.5})$$

$$= Det(M) \quad (\text{H.6})$$

Où la dernière équation découle du tableau G.1 et de l'équation 2.75

Densité d'états dans la phase supraconductrice

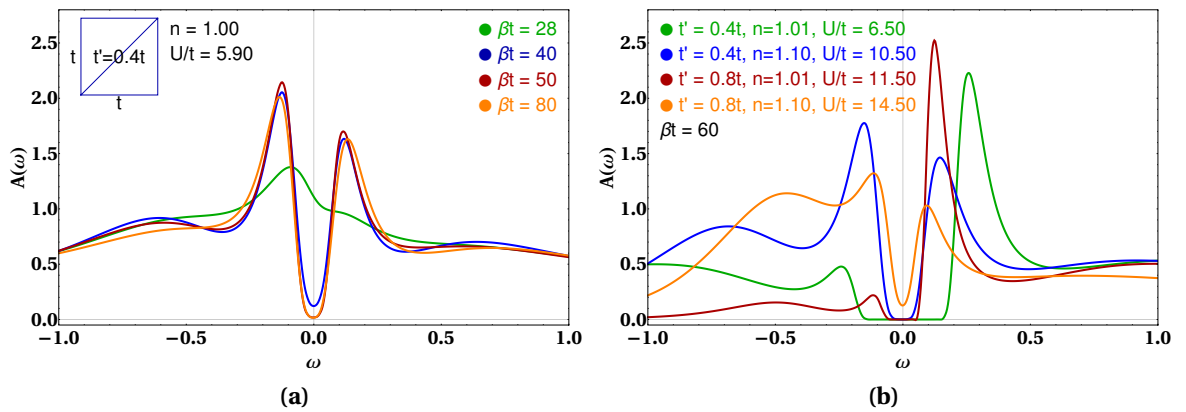


FIGURE I.1 Densité d'états à température finie pour le modèle triangulaire anisotrope pour des dopages, frustrations et températures diverses calculées en CDMFT à température finie dans la phase supraconductrice.

(a) Densités d'états à interaction constante pour plusieurs valeurs de températures inverses. En diminuant la température, la formation du gap supraconducteur est observée.

(b) Densités d'états pour diverses valeurs d'interactions, de frustration et de dopage.

Les **Fig. I.1** démontrent qu'il y a un ordre de singulets de spin à courte portée, et ce même dans la phase supraconductrice pour les cas de faible frustration [75]. Ces résultats suggèrent fortement que plus la frustration se rapproche du réseau triangulaire isotrope et que plus nous nous éloignons du demi-remplissage, alors le gap supraconducteur tend plus vers un gap d-wave.

Rigidité superfluide sur le réseau triangulaire anisotrope

Dans cette annexe, nous exhibons les calculs de la rigidité superfluide en fonction de la température, de la pression, de la frustration et du dopage. Les résultats clés sont la manifestation d'un comportement en saturation à basse température pour de faible frustration et près du demi-remplissage. En s'éloignant du demi-remplissage et plus la frustration est élevé, plus le comportement est celui attendu expérimentalement pour les classes de matériaux modélisés par les présents calculs. Nous proposons que ce phénomène provient du fait que seule une proportion des porteurs condensent dans l'état supraconducteur et qu'une fraction importante des porteurs demeurent dans une phase hautement frustré [56].

J.1 Rigidité superfluide à demi remplissage

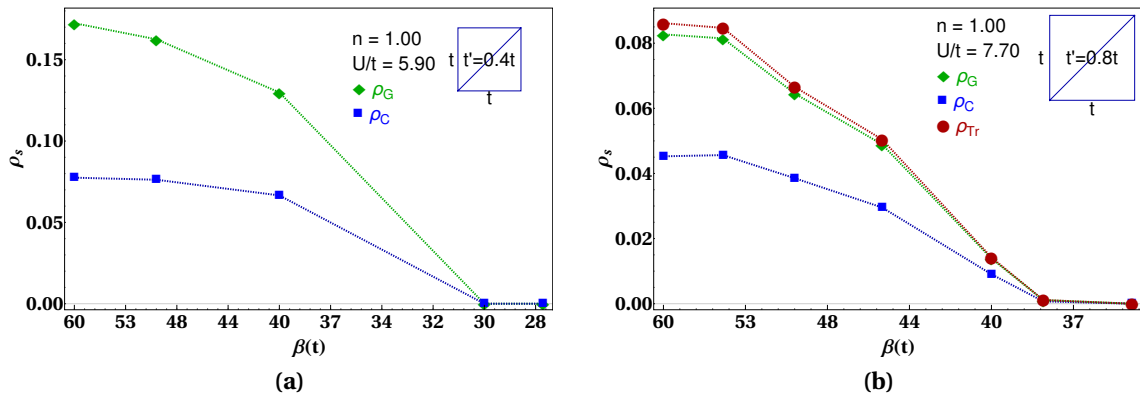


FIGURE J.1 Rigidity superfluide calculée en CDMFT à température finie et à demi remplissage pour deux valeurs de frustration. Les trois méthodologies de périodisation sont représentées : ρ_{tr} est la valeur calculée en n'effectuant aucune périodisation, mais simplement en effectuant la trace sur la matrice de Nambu de l'amas, ρ_C est calculé selon la périodisation cumulant et finalement ρ_G est calculé selon la périodisation Green. Les détails de périodisation sont fournis dans plusieurs références dont [39].
(a) Rigidity superfluide pour une valeur d'anisotropie de $t' = 0.4t$ et une valeur d'interaction de $U/t = 5.90$.
(b) Rigidity superfluide pour trois périodisations différentes et pour une valeur d'anisotropie de $t' = 0.8t$. Le comportement linéaire à haute température semble aussi saturer vers les températures plus basses, de façon analogue au comportement de la rigidity superfluide à plus faible frustration (Fig a.).

J.2 Rigidité superfluide à dopage fini

La figure J.2 est en accord qualitatif avec la référence expérimentale [17].

Une observation clé est le lien entre le comportement de la rigidité à basse température et la forme du gap supraconducteur. En effet, plus la frustration du réseau est importante et plus le dopage est grand, plus le gap supraconducteur se rapproche d'un gap d-wave et le comportement de la rigidité superfluide s'éloigne de la saturation à basse température pour obtenir un comportement qui dépend de la température de façon non triviale. À terme, nous remarquons que pour une haute frustration et un haut dopage, le gap est de type d-wave. Nous voyons aussi que le comportement suit une loi de puissance à basse température, compatible avec les résultats expérimentaux de la **Fig. J.4**. Il serait intéressant ultérieurement d'étudier cette loi de puissance.

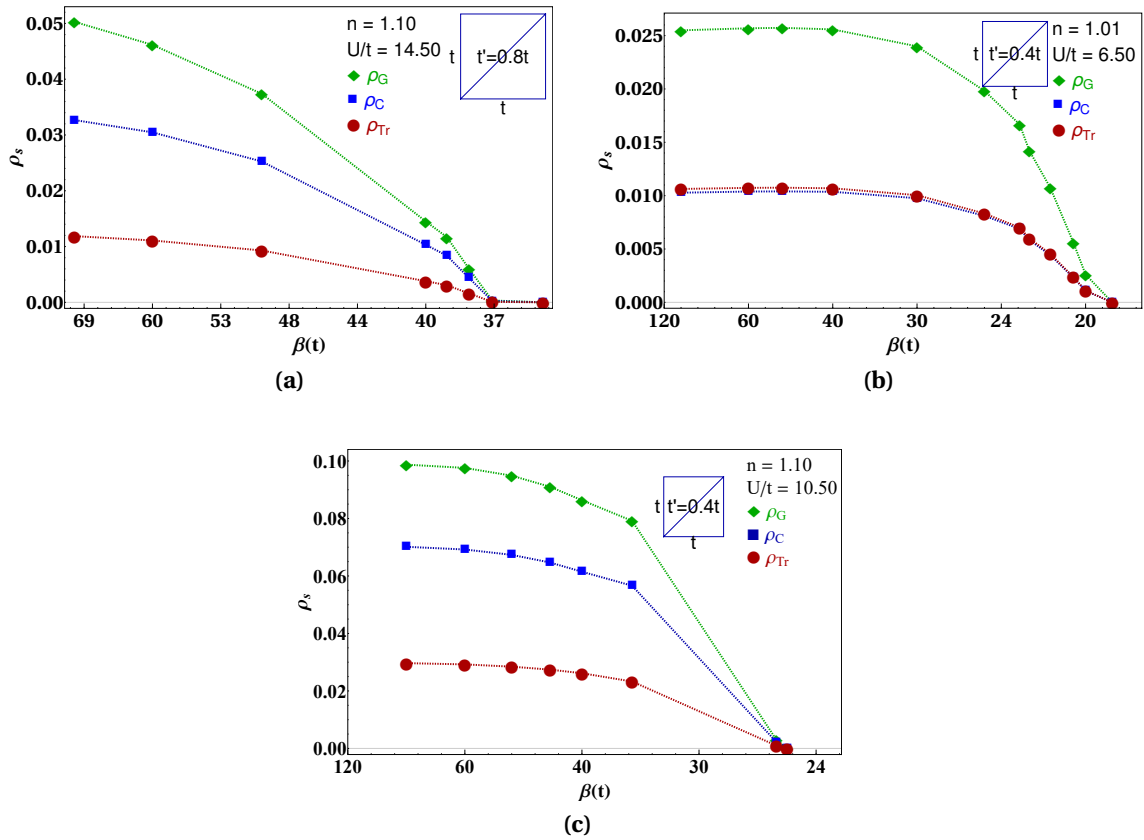


FIGURE J.2 Rigidity superfluide calculée en CDMFT à température finie et à dopage finie pour deux valeurs de frustration. Les trois méthodologies de périodisation sont représentées : ρ_{tr} est la valeur calculée en n'effectuant aucune périodisation, mais simplement en effectuant la trace sur la matrice de Nambu de l'amas, ρ_C est calculé selon la périodisation cumulant et finalement ρ_G est calculé selon la périodisation Green. Les détails de périodisation sont fournis dans plusieurs références dont [39]. Les valeurs de rigidity superfluide sont prises à interaction constante en abaissant la température. La valeur de l'interaction est prise près de la valeur maximale de la température critique (T_c^m).

(a) Rigidity superfluide en fonction de la température inverse pour une valeur d'anisotropie de $t' = 0.8t$, une valeur d'interaction de $U/t = 14.50$ et un dopage de 10% en électrons.

(b) Rigidity superfluide en fonction de la température inverse pour une valeur d'anisotropie de $t' = 0.4t$, une valeur d'interaction de $U/t = 6.50$ et un dopage de 1% en électrons. Nous observons que pour une faible valeur de dopage et de frustration la rigidity superfluide sature très rapidement en fonction de la température. Ceci est également en accord avec le comportement du gap supraconducteur en fonction du dopage et de la frustration présenté dans la **Sec. I**. En revanche, en s'éloignant du demi-remplissage, la saturation est repoussée à plus basse température, davantage en accord avec un gap d-wave (**Sec. I**).

(c) Rigidity superfluide en fonction de la température inverse pour une valeur d'anisotropie de $t' = 0.4t$, une valeur d'interaction de $U/t = 10.50$ et un dopage de 10% en électrons. La rigidity superfluide s'approche de ce qui est observé pour le cas expérimental dopé aux trous, présenté à la **Fig. J.4**.

J.3 Rigidité superfluide selon la pression

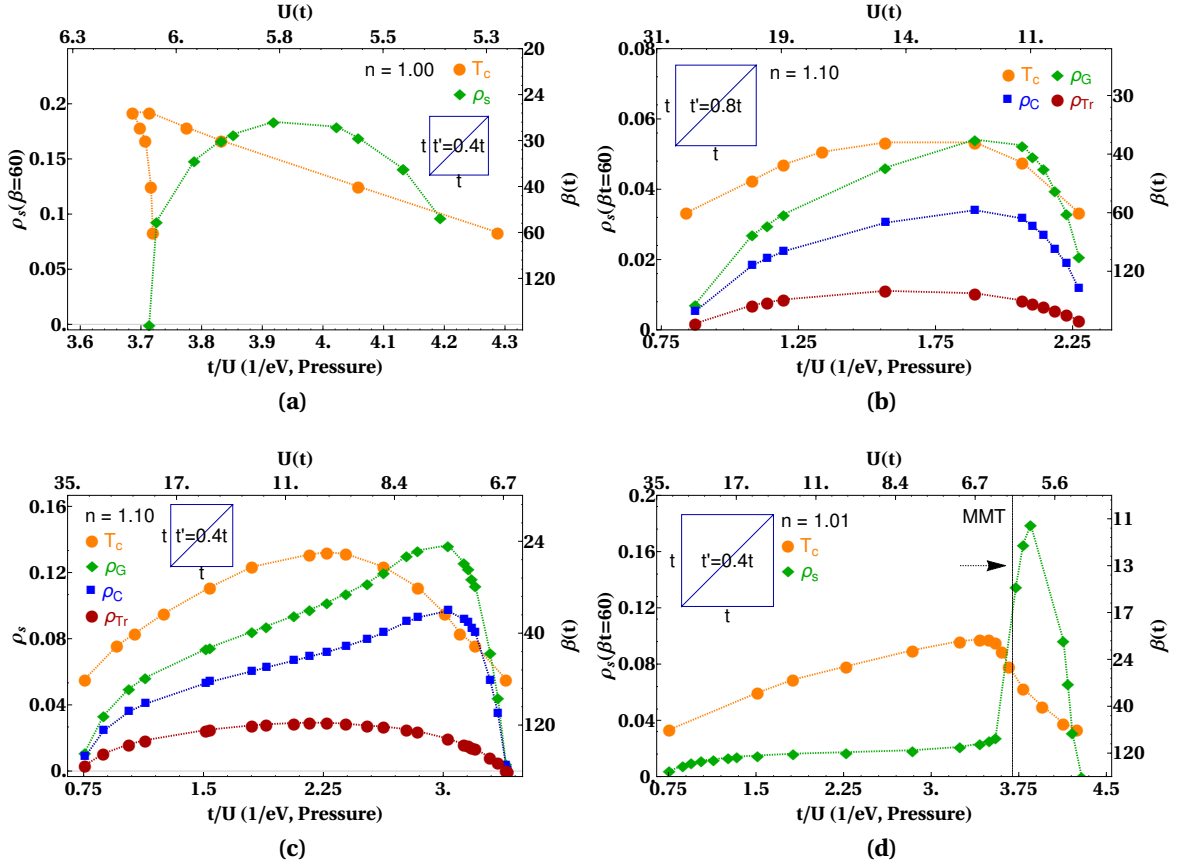


FIGURE J.3 Rigidité superfluide selon l'axe c obtenue par simulations en CDMFT avec le solveur CT-HYB pour plusieurs valeurs de remplissage et de frustration. La périodisation Green est représentée par la couleur verte, la périodisation cumulant par la couleur bleue et finalement la périodisation trace est représentée par la couleur rouge foncé. Tous les points de rigidité superfluide sont calculés à la température $T/t = 1/60$ et un balayage est effectué en fonction de la pression. **(a)** Rigidité superfluide calculée à demi remplissage pour la frustration $t' = 0.4t$. **(b)** Rigidité superfluide calculée pour un dopage de 10% en électrons pour la frustration $t' = 0.8t$. **(c)** Rigidité superfluide calculée pour un dopage de 10% en électrons pour la frustration $t' = 0.4t$. **(d)** Rigidité superfluide calculée pour un dopage de 1% en électrons pour la frustration $t' = 0.4t$. La transition entre un métal et un métal corrélé (possédant un pseudogap) dans la phase normale est représentée par la ligne avec la légende MMT (metal-metal transition).

Les résultats de la **Fig. J.3a** sont en accord avec l'expérience [76].

Un aspect intéressant est la diminution de la rigidité superfluide à une valeur qui est

dans la phase de coexistence [12, 62]. Effectivement, la valeur de la rigidité superfluide à $\beta = 60$ augmente progressivement jusqu'à atteindre la valeur de la coexistence métal isolante calculée dans la phase normale ($U_{c1} = 5.8$) et la rigidité superfluide disparaît à la valeur U_{c2} de la transition métal isolant de la phase normale. Ce comportement est aussi observé très visiblement à faible dopage fini à la **Fig. J.3d**. Effectivement, nous observons une augmentation de la rigidité superfluide jusqu'à la valeur de pression pour laquelle, dans la phase normale, il y a la transition de premier ordre entre le Métal et la phase pseudogap. D'autres observables dans la phase supraconductrice démontrent ce même comportement intrigant, telle la double occupation [62]. Cela appuie fortement la thèse de Simard et collab. [56] selon laquelle seulement une quantité d'électrons plus faible que n condense dans l'état supraconducteur.

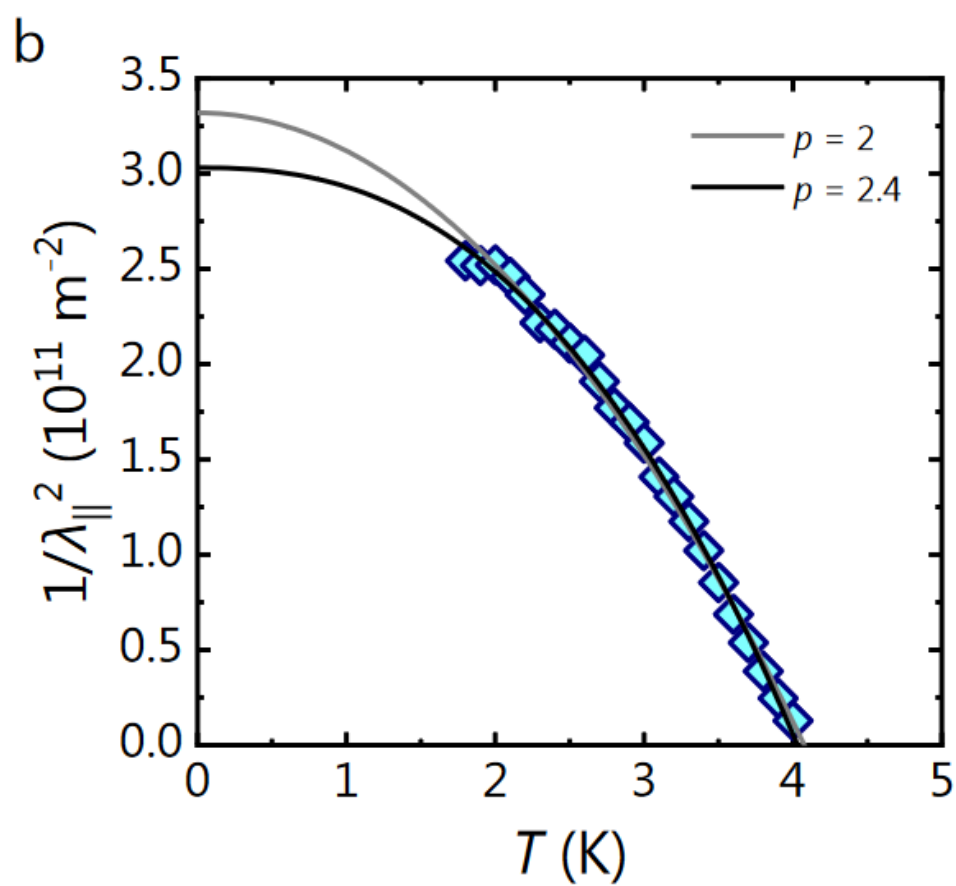


FIGURE J.4 Rigidité superfluide expérimentale du composé κ -(ET) $_4$ Hg $_{2.89}$ Br $_8$. Figure tirée de [14].

Bibliographie

- [1] Emanuel Gull, Peter Staar, Sebastian Fuchs, Phani Nukala, Michael S. Summers, Thomas Pruschke, Thomas C. Schulthess et Thomas Maier. Submatrix updates for the continuous-time auxiliary-field algorithm. *Phys. Rev. B* **83**, 075122 (2011). [doi:10.1103/PhysRevB.83.075122](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.83.075122).
- [2] J. Bardeen, L. N. Cooper et J. R. Schrieffer. Microscopic theory of superconductivity. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 162–164 (1957). [doi:10.1103/PhysRev.106.162](https://doi.org/10.1103/PhysRev.106.162).
- [3] J. Bardeen, L. N. Cooper et J. R. Schrieffer. Theory of superconductivity. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 1175–1204 (1957). [doi:10.1103/PhysRev.108.1175](https://doi.org/10.1103/PhysRev.108.1175).
- [4] G. M. Eliashberg. Interactions between electrons and lattice vibrations in a superconductor. (1960). <http://www.itp.ac.ru/en/persons/eliashberg-gerasim-matveevich/>.
- [5] John B. Ketterson K. H. Bennemann. *Superconductivity*. Springer, (2008). <https://link.springer.com/book/10.1007/978-3-540-73253-2>.
- [6] K. A. Müller J. G. Bednorz. *Possible highT_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system*. Springer, (1986). <https://link.springer.com/article/10.1007/BF01303701>.
- [7] Cyril Proust et Louis Taillefer. The remarkable underlying ground states of cuprate superconductors. *Annual Review of Condensed Matter Physics* **10**(1), 409–429 (2019). [doi:10.1146/annurev-conmatphys-031218-013210](https://doi.org/10.1146/annurev-conmatphys-031218-013210).
- [8] B. J. Powell et R. H. McKenzie. Quantum frustration in organic Mott insulators : from spin liquids to unconventional superconductors. *Reports on Progress in Physics* **74**(5), 056501 (2011). <http://stacks.iop.org/0034-4885/74/i=5/a=056501>.
- [9] Bumsoo Kyung et A.-MS Tremblay. Mott transition, antiferromagnetism, and d-wave superconductivity in two-dimensional organic conductors. *Phys. Rev. Lett.* **97**(4), 046402 (2006). <http://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.97.046402>.
- [10] B. Kyung, S. S. Kancharla, D. Sénéchal, A.-M. S. Tremblay, M. Civelli et G. Kotliar. Pseudogap induced by short-range spin correlations in a doped Mott insulator. *Phys. Rev. B* **73**, 165114 (2006). [doi:10.1103/PhysRevB.73.165114](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.73.165114).
- [11] A. Pustogow, M. Bories, A. Löhle, R. Rösslhuber, E. Zhukova, B. Gorshunov, S. Tomić, J. A. Schlueter, R. Hübner, T. Hiramatsu, Y. Yoshida, G. Saito, R. Kato, T.-H. Lee, V. Dobrosavljević, S. Fratini et M. Dressel. Quantum spin liquids unveil the genuine Mott state. *Nature Materials* **17**(9), 773–777. [doi:10.1038/s41563-018-0140-3](https://doi.org/10.1038/s41563-018-0140-3).
- [12] Louis Bourassa. *Transition de Mott et supraconductivité dans les matériaux organiques*. Mémoire Msc : Université de Sherbrooke, (2017). https://www.physique.usherbrooke.ca/pages/sites/default/files/Bourassa_Louis_MSc_2017.pdf.
- [13] H. Oike, K. Miyagawa, H. Taniguchi et K. Kanoda. Pressure-induced Mott transition in an organic superconductor with a finite doping level. *Phys. Rev. Lett.* **114**, 067002 (2015). [doi:10.1103/PhysRevLett.114.067002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.067002).

- [14] Y. Suzuki, K. Wakamatsu, J. Ibuka, H. Oike, T. Fujii, K. Miyagawa, H. Taniguchi et K. Kanoda. Mott-driven BEC-BCS crossover in a doped spin liquid candidate κ -(BEDT-TTF)₄Hg_{2.89}Br₈. *Phys. Rev. X* **12**, 011016 (2022). [doi:10.1103/PhysRevX.12.011016](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.12.011016).
- [15] Feliciano Giustino, Jin Hong Lee, Felix Trier et Manuel Bibes et collab. The 2021 quantum materials roadmap. *Journal of Physics : Materials* **3**(4), 042006 (2021). [doi:10.1088/2515-7639/abb74e](https://doi.org/10.1088/2515-7639/abb74e).
- [16] S. V. Dordevic, D. N. Basov et C. C. Homes. Do organic and other exotic superconductors fail universal scaling relations? *Scientific Reports* **3**, 1713. <http://dx.doi.org/10.1038/srep01713>.
- [17] K. Wakamatsu, Y. Ueno, K. Miyagawa, H. Taniguchi et K. Kanoda. Reduced superfluid density in a doped spin liquid candidate. (2022). [doi:10.48550/ARXIV.2205.03682](https://doi.org/10.48550/ARXIV.2205.03682).
- [18] Alexander Wietek, Riccardo Rossi, Fedor Šimkovic, Marcel Klett, Philipp Hansmann, Michel Ferrero, E. Miles Stoudenmire, Thomas Schäfer et Antoine Georges. Mott insulating states with competing orders in the triangular lattice hubbard model. *Phys. Rev. X* **11**, 041013 (2021). [doi:10.1103/PhysRevX.11.041013](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.11.041013).
- [19] Hem C. Kandpal, Ingo Opahle, Yu-Zhong Zhang, Harald O. Jeschke et Roser Valentí. Revision of model parameters for κ -type charge transfer salts : An Ab initio study. *Phys. Rev. Lett.* **103**(6), 067004 (2009). <http://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.103.067004>.
- [20] Kazuma Nakamura, Yoshihide Yoshimoto, Taichi Kosugi, Ryotaro Arita et Masatoshi Imada. *Ab initio* Derivation of Low-Energy Model for κ -ET Type Organic Conductors. *Journal of the Physical Society of Japan* **78**(8), 083710 (2009). [doi:10.1143/JPSJ.78.083710](https://doi.org/10.1143/JPSJ.78.083710).
- [21] Y. Kurosaki, Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda et G. Saito. Mott transition from a spin liquid to a fermi liquid in the spin-frustrated organic conductor κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 177001 (2005). [doi:10.1103/PhysRevLett.95.177001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.177001).
- [22] S. Lefebvre, P. Wzietek, S. Brown, C. Bourbonnais, D. Jérôme, C. Mézière, M. Fourmigué et P. Batail. Mott transition, antiferromagnetism, and unconventional superconductivity in layered organic superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5420–5423 (2000). [doi:10.1103/PhysRevLett.85.5420](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.85.5420).
- [23] P.-O. Downey, O. Gingras, J. Fournier, C.-D. Hébert, M. Charlebois et A.-M. S. Tremblay. Mott transition, Widom line, and pseudogap in the half-filled triangular lattice Hubbard model. *Phys. Rev. B* **107**, 125159 (2023). [doi:10.1103/PhysRevB.107.125159](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.107.125159).
- [24] Pierre-Olivier Downey. *L'effet des fluctuations à courte portée sur la formation du pseudogap à interactions fortes sur le réseau triangulaire*. Mémoire : Université de Sherbrooke, (2022). https://www.physique.usherbrooke.ca/pages/sites/default/files/downey_pierre-olivier_MSc_2022%5B1%5D.pdf.
- [25] Frank E. Harris George Arfken, Hans Weber. *Mathematical Methods for Physicists*. Elsevier, (2011). <https://www.elsevier.com/books/mathematical-methods-for-physicists/arfken/978-0-12-384654-9>.

- [26] Frederick W. Byron et Robert W. Fuller. *Mathematics of classical and quantum physics*. Dover, (1992).
- [27] A.-M. S. Tremblay. *PHY-892 Quantum Materials Theory, from perturbation theory to dynamical-mean field theory (lecture notes)*. <https://www.physique.usherbrooke.ca/tremblay/cours/phy-892/N-corps.pdf>.
- [28] John W. Negele et Henri Orland. *Quantum Many-Particle systems*. CRC Press, Advanced book classics, (1988).
- [29] Claude Bourbonnais. *Physique Statistique*. <https://www.physique.usherbrooke.ca/pages/sites/default/files/bourbonnais/STAT.pdf>.
- [30] Piers Coleman. *Introduction to Many-Body Physics*. Cambridge University press, (2015).
- [31] Gerald D. Mahan. *Many-Particle Physics*. Springer, (2000).
- [32] Thomas Maier, Mark Jarrell, Thomas Pruschke et Matthias H. Hettler. Quantum cluster theories. *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1027–1080 (2005). [doi:10.1103/RevModPhys.77.1027](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.77.1027).
- [33] Antoine Georges, Gabriel Kotliar, Werner Krauth et Marcelo J. Rozenberg. Dynamical mean-field theory of strongly correlated fermion systems and the limit of infinite dimensions. *Rev. Mod. Phys.* **68**(1), 13–125 (1996). [doi:10.1103/RevModPhys.68.13](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.68.13).
- [34] David Sénéchal. Cluster dynamical mean field theory. (2011). https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-642-21831-6_11.
- [35] David Sénéchal. An introduction to quantum cluster methods. *arXiv* (2008). [doi:10.48550/ARXIV.0806.2690](https://doi.org/10.48550/ARXIV.0806.2690).
- [36] Erik Koch, Giorgio Sangiovanni et Olle Gunnarsson. Sum rules and bath parametrization for quantum cluster theories. *Phys. Rev. B* **78**, 115102 (2008). [doi:10.1103/PhysRevB.78.115102](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.115102).
- [37] Emanuel Gull, Andrew J. Millis, Alexander I. Lichtenstein, Alexey N. Rubtsov, Matthias Troyer et Philipp Werner. Continuous-time Monte Carlo methods for quantum impurity models. *Rev. Mod. Phys.* **83**, 349–404 (2011). [doi:10.1103/RevModPhys.83.349](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.83.349).
- [38] Philipp Werner et Andrew J. Millis. Hybridization expansion impurity solver : General formulation and application to Kondo lattice and two-orbital models. *Phys. Rev. B* **74**, 155107 (2006). [doi:10.1103/PhysRevB.74.155107](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.74.155107).
- [39] Shiro Sakai, Giorgio Sangiovanni, Marcello Civelli, Yukitoshi Motome, Karsten Held et Masatoshi Imada. Cluster-size dependence in cellular dynamical mean-field theory. *Phys. Rev. B* **85**, 035102 (2012). [doi:10.1103/PhysRevB.85.035102](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.035102).
- [40] M. H. Hettler, A. N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, T. Pruschke et H. R. Krishnamurthy. Nonlocal dynamical correlations of strongly interacting electron systems. *Phys. Rev. B* **58**, R7475–R7479 (1998). [doi:10.1103/PhysRevB.58.R7475](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.58.R7475).
- [41] Simon Verret. *Rôle des ondes de densité dans les modèles théoriques pour cuprates supraconducteurs*. Thèse Ph.D : Université de Sherbrooke, (2018). https://www.physique.usherbrooke.ca/pages/sites/default/files/Verret_Simon_PhD_2018.pdf.

- [42] Vollhardt Dieter et al. Dmft at 25 : Infinite dimensions. **4** (2014). doi: <http://www.fz-juelich.de/zb/juwel>.
- [43] David J. Luitz. *Numerical methods and applications in many fermion systems*. Thèse Ph. D. : Universität Würzburg, (2012). <http://dluitz.github.io/publications/>.
- [44] Patrick Sémon. *Continuous-Time Quantum Monte Carlo Impurity Solvers : Improvements and Applications*. Thèse Ph.D : Université de Sherbrooke, (2012). https://www.physique.usherbrooke.ca/pages/sites/default/files/Semon_P_these_PDFa.pdf.
- [45] F. F. Assaad et T. C. Lang. Diagrammatic determinantal quantum Monte Carlo methods : Projective schemes and applications to the Hubbard-Holstein model. **76**(3) (2007). doi:10.1103/PhysRevB.76.035116.
- [46] Yusuke Nomura, Shiro Sakai et Ryotaro Arita. Multiorbital cluster dynamical mean-field theory with an improved continuous-time quantum Monte Carlo algorithm. *Phys. Rev. B* **89**(19) (2014). doi:10.1103/PhysRevB.89.195146.
- [47] Emanuel Gull. *Continuous-Time Quantum Monte Carlo Algorithms for Fermions*. Thèse Ph. D. : ETH Zürich, (2008). <http://www.comp.phys.ethz.ch/publications/doctoral-thesis.html>.
- [48] P. Sémon, G. Sordi et A.-M. S. Tremblay. Ergodicity of the hybridization-expansion Monte Carlo algorithm for broken-symmetry states. *Phys. Rev. B* **89**, 165113 (2014). doi:10.1103/PhysRevB.89.165113.
- [49] Nicholas Metropolis, Arianna W. Rosenbluth, Marshall N. Rosenbluth, Augusta H. Teller et Edward Teller. Equation of State Calculations by Fast Computing Machines. *The Journal of Chemical Physics* **21**(6), 1087–1092 (2004). doi:10.1063/1.1699114.
- [50] Peter Broecker, Juan Carrasquilla, Roger G. Melko et Simon Trebst. Machine learning quantum phases of matter beyond the fermion sign problem. *Scientific Reports* **7**(1), 8823 (2017). doi:10.1038/s41598-017-09098-0.
- [51] Matthias Troyer et Uwe-Jens Wiese. Computational complexity and fundamental limitations to fermionic quantum Monte Carlo simulations. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 170201 (2005). doi:10.1103/PhysRevLett.94.170201.
- [52] Yusuke Nomura, Andrew S. Darmawan, Youhei Yamaji et Masatoshi Imada. Restricted Boltzmann machine learning for solving strongly correlated quantum systems. *Phys. Rev. B* **96**(20) (2017). doi:10.1103/PhysRevB.96.205152.
- [53] K Haule et G Kotliar. Coherence–incoherence crossover in the normal state of iron oxypnictides and importance of Hund’s rule coupling. *New Journal of Physics* **11**(2), 025021 (2009). doi:10.1088/1367-2630/11/2/025021.
- [54] Antoine Georges, Luca de’ Medici et Jernej Mravlje. Strong correlations from Hund’s coupling. *Annual Review of Condensed Matter Physics* **4**(1), 137–178 (2013). doi:10.1146/annurev-conmatphys-020911-125045.
- [55] Manuel Weber, Fakher F. Assaad et Martin Hohenadler. Continuous-time quantum Monte Carlo for fermion-boson lattice models : Improved bosonic estimators and application to the Holstein model. *Phys. Rev. B* **94**, 245138 (2016). doi:10.1103/PhysRevB.94.245138.

- [56] O. Simard, C.-D. Hébert, A. Foley, D. Sénéchal et A.-M. S. Tremblay. Superfluid stiffness in cuprates : Effect of Mott transition and phase competition. *Phys. Rev. B* **100**, 094506 (2019). doi:10.1103/PhysRevB.100.094506.
- [57] Philip W. Anderson. *Basic Notions Of Condensed Matter Physics*. Taylor & Francis Group, (1994). <https://www.taylorfrancis.com/books/edit/10.4324/9780429494116/basic-notions-condensed-matter-physics-philip-anderson>.
- [58] E. Gull et A. J. Millis. Superconducting and pseudogap effects on the interplane conductivity and Raman scattering cross section in the two-dimensional Hubbard model. *Phys. Rev. B* **88**, 075127 (2013). doi:10.1103/PhysRevB.88.075127.
- [59] Olivier Simard. *Rigidité superfluide et température critique en présence d'une autre phase*. Mémoire : Université de Sherbrooke, (2019). https://www.physique.usherbrooke.ca/pages/sites/default/files/Simard_Olivier_MSc_2019.pdf.
- [60] G. Sordi, P. Sémon, K. Haule et A.-M. S. Tremblay. *c*-axis resistivity, pseudogap, superconductivity, and widom line in doped mott insulators. *Phys. Rev. B* **87**, 041101 (2013). doi:10.1103/PhysRevB.87.041101.
- [61] Yoshitaka Kawasaki, Kazuhiro Seki, Yusuke Edagawa, Yoshiaki Sato, Jiang Pu, Taishi Takenobu, Seiji Yunoki, Hiroshi M. Yamamoto et Reizo Kato. Electron–hole doping asymmetry of fermi surface reconstructed in a simple mott insulator. *Nat. Comm.* **7**(1), 12356. doi:10.1038/ncomms12356. Number : 1 Publisher : Nature Publishing Group.
- [62] Charles-David Hébert, Patrick Sémon et A.-M. S. Tremblay. Superconducting dome in doped quasi-two-dimensional organic Mott insulators : A paradigm for strongly correlated superconductivity. *Phys. Rev. B* **92**, 195112 (2015). doi:10.1103/PhysRevB.92.195112.
- [63] L. Fratino, P. Sémon, G. Sordi et A.-M. S. Tremblay. An organizing principle for two-dimensional strongly correlated superconductivity. **6**, 22715 (2016). doi:10.1038/srep22715.
- [64] G. Sordi, P. Sémon, K. Haule et A.-M. S. Tremblay. Pseudogap temperature as a Widom line in doped Mott insulators. *Scientific Reports* **2**, 547 (2012). doi:10.1038/srep00547.
- [65] G. Sordi, K. Haule et A.-M. S. Tremblay. Finite doping signatures of the Mott transition in the two-dimensional Hubbard model. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 226402 (2010). doi:10.1103/PhysRevLett.104.226402.
- [66] Giovanni Sordi, K. Haule et A.-MS Tremblay. Mott physics and first-order transition between two metals in the normal-state phase diagram of the two-dimensional Hubbard model. *Phys. Rev. B* **84**(7), 075161 (2011). <http://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.84.075161>.
- [67] G. Sordi, P. Sémon, K. Haule et A.-M. S. Tremblay. *c*-axis resistivity, pseudogap, superconductivity, and Widom line in doped Mott insulators. *Phys. Rev. B* **87**, 041101 (2013). doi:10.1103/PhysRevB.87.041101.
- [68] Dominic Bergeron et A.-M. S. Tremblay. Algorithms for optimized maximum entropy and diagnostic tools for analytic continuation. *Phys. Rev. E* **94**, 023303 (2016). doi:10.1103/PhysRevE.94.023303.

- [69] Yuki Nagai, Huitao Shen, Yang Qi, Junwei Liu et Liang Fu. Self-learning Monte Carlo method : Continuous-time algorithm. *Phys. Rev. B* **96**, 161102 (2017). [doi:10.1103/PhysRevB.96.161102](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.161102).
- [70] J. Kokalj et Ross H. McKenzie. Thermodynamics of a bad metal–Mott insulator transition in the presence of frustration. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 206402 (2013). [doi:10.1103/PhysRevLett.110.206402](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.206402).
- [71] A. Reymbaut, D. Bergeron et A.-M. S. Tremblay. Maximum entropy analytic continuation for spectral functions with nonpositive spectral weight. *Phys. Rev. B* **92**, 060509 (2015). [doi:10.1103/PhysRevB.92.060509](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.060509).
- [72] A. Reymbaut, A.-M. Gagnon, D. Bergeron et A.-M. S. Tremblay. Maximum entropy analytic continuation for frequency-dependent transport coefficients with nonpositive spectral weight. *Phys. Rev. B* **95**, 121104 (2017). [doi:10.1103/PhysRevB.95.121104](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.121104).
- [73] Phani K. V. V. Nukala, Thomas A. Maier, Michael S. Summers, Gonzalo Alvarez et Thomas C. Schulthess. Fast update algorithm for the quantum Monte Carlo simulation of the Hubbard model. *Phys. Rev. B* **80**, 195111 (2009). [doi:10.1103/PhysRevB.80.195111](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.195111).
- [74] Emanuel Gull, Peter Staar, Sebastian Fuchs, Phani Nukala, Michael S. Summers, Thomas Pruschke, Thomas C. Schulthess et Thomas Maier. Submatrix updates for the continuous-time auxiliary-field algorithm. **83**(7) (2011). [doi:10.1103/PhysRevB.83.075122](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.83.075122).
- [75] Alexis Reymbaut. *Universalité du crossover de Mott à demi-remplissage et effets de la répulsion coulombienne aux premiers voisins sur la dynamique supraconductrice des isolants de Mott dopés aux trous*. Thèse Ph.D : Université de Sherbrooke, (2016). https://www.physique.usherbrooke.ca/pages/sites/default/files/Reymbaut_A_these.pdf.
- [76] Yu. V. Sushko et K. Andres. Superconducting meissner effect under hydrostatic pressure in the ambient-pressure semiconductor κ -(BEDT-TTF)₂Cu(N(CN)₂)Cl, where BEDT-TTF is bis(ethylenedithio)tetrathiafulvalene. *Phys. Rev. B* **47**, 330–333 (1993). [doi:10.1103/PhysRevB.47.330](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.47.330).