

Numerische und analytische Untersuchungen
stark korrelierter fermionischer Mehrbandsysteme

Dissertation
zur Erlangung des Grades
“Doktor der Naturwissenschaften”

am Fachbereich Physik
der Johannes Gutenberg-Universität
in Mainz

Dipl.-Phys. Dipl.-Ing. Eberhard Jakobi
geb. in Siegen

Mainz, den 19. Februar 2010
(D77)

Abstract

In this thesis four different, strongly correlated fermionic multiband systems are considered. In particular, the thesis examines a multi-impurity Anderson model, two distinct Hubbard models and a multiband system, which results from the *ab initio* description of a correlated half-metal.

The investigation of the multi-impurity Anderson model concentrates on the influence of exchange coupling and non-local correlations between two impurities in a simple-cubic lattice. The main result is the dependence of the correlations of the impurity electrons with respect to their distance. This depends strongly on the dimension and the relative position of the impurities. Remarkable is the long range of the correlations in the diagonal direction of the lattice. Moreover, an antiferromagnetic exchange coupling favors a singlet between the electrons of the different impurities compared to the dynamic Kondo singlets, which arise between the different impurity electrons and the band electrons. Hence, the Kondo effect of the different impurities is hindered by the exchange coupling.

A two-band Hubbard model, the J_z -model, is considered on a Bethe lattice. Its Mott phases are determined with respect to doping and crystal field splitting. The degeneracy of the two bands is lifted by an unequal band width. The main results are two phase diagrams with respect to interaction, total filling and crystal field splitting. In comparison to single band Hubbard models so-called orbital-selective Mott phases arise, which have metallic as well as insulating character, depending on interaction, total filling and crystal field splitting. A new aspect arises as an orbital-selective Mott phase of the wide band becomes accessible for particular values of the crystal field parameter. This parameter shifts the ionic single-particle levels with respect to each other. By comparisons to approximate analytic solutions and single-band models, genuine multiband and orbital-selective features are clearly separated from generic correlation effects.

The second Hubbard model which is investigated describes a magneto-optical trap, which contains fermionic atoms. A z -antiferromagnetic phase can be obtained under consideration of non-local many-particle correlations. This improves well-known results of an effective single-particle description.

The correlated half-metal is investigated regarding the correlation effects using a multi-band approach. The starting point is an *ab initio* description by density functional theory (DFT), which is improved by including local correlations. The many-particle correlations are exemplified for a simple approximation to the interaction, and are rendered more precisely for an interaction in spheric symmetry. The calculations yield a weak quasi-particle renormalization. In particular, for the X ray spectroscopic experiments a good agreement can be found.

The numerical investigations for the J_z -model are done within quantum Monte-Carlo simulations within dynamical mean-field theory (DMFT). For the other systems a new multiband algorithm is developed and implemented, which explicitly takes non-diagonal multiband processes into account.



Kurzfassung

In dieser Arbeit werden vier unterschiedliche, stark korrelierte, fermionische Mehrbandsysteme untersucht. Es handelt sich dabei um ein Mehrstörstellen-Anderson-Modell, zwei Hubbard-Modelle sowie ein Mehrbandsystem, wie es sich aus einer *ab initio*-Beschreibung für ein korreliertes Halbmetall ergibt.

Die Betrachtung des Mehrstörstellen-Anderson-Modells konzentriert sich auf die Untersuchung des Einflusses der Austauschwechselwirkung und der nicht-lokalen Korrelationen zwischen zwei Störstellen in einem einfach-kubischen Gitter. Das zentrale Resultat ist die Abstandsabhängigkeit der Korrelationen der Störstellenelektronen, welche stark von der Gitterdimension und der relativen Position der Störstellen abhängen. Bemerkenswert ist hier die lange Reichweite der Korrelationen in der Diagonalrichtung des Gitters. Außerdem ergibt sich, dass eine antiferromagnetische Austauschwechselwirkung ein Singulett zwischen den Störstellenelektronen gegenüber den Kondo-Singulett der einzelnen Störstellen favorisiert und so den Kondo-Effekt der einzelnen Störstellen behindert.

Ein Zweiband-Hubbard-Modell, das J_z -Modell, wird im Hinblick auf seine Mott-Phasen in Abhängigkeit von Dotierung und Kristallfeldaufspaltung auf dem Bethe-Gitter untersucht. Die Entartung der Bänder ist durch eine unterschiedliche Bandbreite aufgehoben. Wichtigstes Ergebnis sind die Phasendiagramme in Bezug auf Wechselwirkung, Gesamtfüllung und Kristallfeldparameter. Im Vergleich zu Einbandmodellen kommen im J_z -Modell sogenannte orbital-selektive Mott-Phasen hinzu, die, abhängig von Wechselwirkung, Gesamtfüllung und Kristallfeldparameter, einerseits metallischen und andererseits isolierenden Charakter haben. Ein neuer Aspekt ergibt sich durch den Kristallfeldparameter, der die ionischen Einteilchenniveaus relativ zueinander verschiebt, und für bestimmte Werte eine orbital-selektive Mott-Phase des breiten Bands ermöglicht. Im Vergleich mit analytischen Näherungslösungen und Einbandmodellen lassen sich generische Vielteilchen- und Korrelationseffekte von typischen Mehrband- und Einteilcheneffekten differenzieren.

Das zweite untersuchte Hubbard-Modell beschreibt eine magneto-optische Falle mit einer endlichen Anzahl Gitterplätze, in welcher fermionische Atome platziert sind. Es wird eine z -antiferromagnetische Phase unter Berücksichtigung nicht-lokaler Vielteilchenkorrelationen erhalten, und dabei werden bekannte Ergebnisse einer effektiven Einteilchenbeschreibung verbessert.

Das korrelierte Halbmetall wird im Rahmen einer Mehrbandrechnung im Hinblick auf Korrelationseffekte untersucht. Ausgangspunkt ist eine *ab initio*-Beschreibung durch die Dichtefunktionaltheorie (DFT), welche dann durch die Hinzunahme lokaler Korrelationen ergänzt wird. Die Vielteilcheneffekte werden an Hand einer einfachen Wechselwirkungsnaheherung verdeutlicht, und für ein Wechselwirkungsmodell in sphärischer Symmetrie präzisiert. Es ergibt sich nur eine schwache Quasiteilchenrenormierung. Besonders für röntgenspektroskopische Experimente wird eine gute Übereinstimmung erzielt.

Die numerischen Ergebnisse für das J_z -Modell basieren auf Quanten-Monte-Carlo-Simulationen im Rahmen der dynamischen Molekularfeldtheorie (DMFT). Für alle anderen Systeme wird ein Mehrband-Algorithmus entwickelt und implementiert, welcher explizit nicht-diagonale Mehrbandprozesse berücksichtigt.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
1.1	Das elektronische Problem	2
1.2	Einteilchen-Greenfunktionen	3
1.3	Aufbau der Arbeit	4
2	Das Störstellen-Anderson-Modell	7
2.1	Lösungsmöglichkeiten des Störstellen-Anderson-Modells	8
2.1.1	Schwachkopplungsstörungstheorie	9
2.1.2	Quanten-Monte-Carlo Methoden	13
2.2	Das Mehrstörstellen-Anderson-Modell	20
2.2.1	Einfluss der Austauschwechselwirkung	26
2.2.2	Einfluss der räumlichen Anordnung der Störstellen	29
2.2.3	Das Mehrstörstellen-Anderson-Modell im Überblick	34
3	Das Hubbard-Modell	37
3.1	Das Mehrband-Hubbard-Modell	38
3.2	Dynamische Molekularfeld-Theorie für das Hubbard-Modell	39
3.3	Orbital-selektive Mott-Übergänge	43
3.3.1	Analytische Näherungslösung des J_z -Modells in Freier Theorie	50
3.3.2	Das J_z -Modell bei Teilchen-Loch-Symmetrie	54
3.3.3	Das dotierte J_z -Modell	54
3.3.4	Das J_z -Modell bei Kristallfeldaufspaltung	71
3.3.5	Das J_z -Modell im Überblick	80
3.4	Magneto-Optische Falle	81
3.4.1	Nicht-lokale Prozesse	83
3.4.2	Der z -Antiferromagnet	85
3.4.3	Die magneto-optische Falle im Überblick	90
4	Halbmetallische Ferromagnete	93
4.1	Dichte-Funktional Theorie	94
4.2	Lokale-Dichte-Approximation+X	98
4.3	LDA+DMFT für ein Voll-Heusler-Material	101
4.3.1	Projektion auf Niederenergiesektor	104
4.3.2	Relevante Wechselwirkungsmatrixelemente	108
4.3.3	s -Schalennäherung	112
4.3.4	Sphärische Symmetrie der Wechselwirkung	117
4.3.5	Vergleich mit dem Experiment	119
5	Zusammenfassung und Ausblick	123

A Anhang	127
A.1 Einteilchen-Green-Funktionen	127
A.2 Hartree-Fock-Lösung für das J_z -Modell	131
A.3 Numerische Auswertung von Diagrammen	133
A.4 Verfahren zur Summation über die Brillouin-Zone	138
A.5 Analytische Fortsetzung mit der Maximum-Entropie-Methode (MEM) . . .	144
A.6 Vergleich verschiedener DMFT-Methoden	146
Literaturverzeichnis	151

1 Einführung

Wechselwirkende Vielteilchensysteme gehören zu den grundlegenden Problemen der theoretischen Physik. Elektronische Vielteilchensysteme sind ein wesentlicher Schwerpunkt der aktuellen Festkörperphysik, weil sie vielfältige physikalische Phänomene aufweisen. Deren Beschreibung stellt die moderne Physik noch immer vor größte Herausforderungen. Denn auch wenn sich der Hamilton-Operator eines solchen Vielteilchensystems prinzipiell vollständig aufschreiben lässt und man sich auf bestimmte Energieskalen beschränkt, indem man beispielsweise Rumpfelektronen nur effektiv berücksichtigt, ist die exakte Lösung im Allgemeinen unmöglich. Grund hierfür ist die große Zahl an elektronischen Freiheitsgraden im Kombination mit der starken und langreichweitigen Wechselwirkung des Coulomb-Potentials.

Diese zunächst entmutigenden Voraussetzungen relativieren sich aber für die Betrachtung des Festkörpers. Hier sind die Atome dicht gepackt und die elektronischen Wellenfunktionen benachbarter Atome können überlappen. Deshalb können die elektronischen Zustände im Festkörper delokalisieren und führen zu einer großen Beweglichkeit der Elektronen. Die langreichweitige Coulomb-Wechselwirkung im Festkörper wird so wirksam abgeschirmt. Diesen Effekt macht man sich in der klassischen Bandstrukturtheorie (siehe Abschnitt 4.1) zu Nutze und führt das wechselwirkende Vielteilchenproblem auf eine effektive Einteilchenbeschreibung zurück. Besonders reizvoll ist dieser Zugang, weil sich damit die Kristallstruktur im Prinzip exakt berücksichtigen lässt und auch relativistische Effekte wie Spin-Bahn-Kopplung mit einbezogen werden können. Die damit berechneten Grundzustandseigenschaften stimmen für große Klassen von Materialien - im Besonderen auch für bestimmte Metalle - hervorragend mit dem Experiment überein.

Das Versagen dieser Einteilchen-Methoden hängt eng mit dem Vorhandensein von Valenzelektronen in $3d$ -, $4f$ - oder $5f$ -Zuständen zusammen, die, relativ zu s - oder p -Elektronen, stärker um die Gitterposition lokalisiert sind. Dies führt zu starken intraatomaren Coulomb-Korrelationen, sodass in der Bandstrukturtheorie vernachlässigte Vielteilcheneffekte bedeutend werden.

Die Untersuchung solcher Korrelationsphänomene ist ungleich schwieriger als das in der Bandstrukturtheorie behandelte Einteilchenproblem. Infolgedessen muss man sich auf Teilaspekte fokussieren und betrachtet geeignete Modellsysteme. Die (näherungsweise) Lösung solcher Modellsysteme liefert qualitativ wertvolle Aussagen über den Einfluss der Korrelationen für physikalische Systeme.

1.1 Das elektronische Problem

Um die Eigenschaften eines Festkörpers physikalisch zu beschreiben, lässt sich ein Hamiltonian formulieren, der die am System beteiligten Konstituenten miteinander in Beziehung setzt

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_i \nabla_i^2 + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{|\underline{r}_i - \underline{r}_j|} + \sum_{i,I} \frac{Z_I e^2}{|\underline{r}_i - \underline{R}_I|} - \sum_I \frac{\hbar^2}{2M_I} \nabla_I^2 + \frac{1}{2} \sum_{I \neq J} \frac{Z_I Z_J e^2}{|\underline{R}_I - \underline{R}_J|}, \quad (1.1)$$

wobei die Elektronen durch Kleinbuchstaben markiert werden ($\underline{r}_i, \underline{r}_j, \nabla_i, \dots$) und die Ionenrümpfe durch Großbuchstaben ($\underline{R}_I, \underline{R}_J, Z_I, Z_J, M_I \dots$). Die Massen sind durch die Elektronenmasse m_e und die unter Umständen unterschiedlichen Massen der einzelnen Kerne M_I bezeichnet. Die Ladung der Kerne ist gerade das Vielfache Z_I der Elementarladung e . Die Ladung des Elektrons ist gerade $-e$. Der erste und zweite Summand wirken ausschließlich auf Elektronen, der vierte und fünfte auf die Kerne. Die Summanden, welche Nabla-Operatoren ($\nabla_{i/I} = \sum_{\alpha} \underline{e}_{\alpha} \frac{\partial}{\partial x_{i/I, \alpha}}$) enthalten, beschreiben die kinetische Energie im System.

Die mit diesem Hamilton-Operator definierte Aufgabe besteht darin, ein wechselwirkendes, quantenmechanisches Vielteilchenproblem zu lösen. Eine wesentliche Schwierigkeit bei der Lösung ergibt sich dadurch, dass man am Verhalten des Festkörpers bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen $T \sim 1 - 1000 \text{ K} \sim \mathcal{O}(10^{-5} \dots 10^{-1}) \text{ eV}$ interessiert ist, die relevanten Skalen des Problems, die Bindungsenergien der innersten Atomschalen aber mehrere Größenordnungen darüber liegen ($\sim 10^4 \text{ eV}$). Die näherungsweise Lösung des Vielteilchenproblems müsste eine relative Genauigkeit von $10^{-5} \dots 10^{-9}$ aufweisen, um dem gerecht zu werden. Daher ist es notwendig, sich auf bestimmte Teilaspekte des durch (1.1) beschriebenen Problems zu konzentrieren und dessen Komplexität mittels sinnvoller Annahmen zu reduzieren.

Während die Elektronen der vollständig gefüllten Schalen stark an den Kern gebunden sind und von benachbarten Atomen nur schwach beeinflusst werden, werden die Elektronenzustände der Valenzschalen durch die benachbarten Valenzelektronen im Festkörper wesentlich verändert. Für kondensierte Materie genügt es daher meist, die betroffenen Valenzelektronen und die Ionenrümpfe zu berücksichtigen und die inneren Elektronen nur effektiv einzubeziehen. Dieser Schritt reduziert die effektive Energieskala des ursprünglichen Hamilton-Operators (1.1) von der atomaren Energieskala auf die Skala der Bindungsenergie der Valenzelektronen ($\sim 10 \text{ eV}$). Außerdem können für Materialien mit nicht zu hohen Kernladungszahlen relativistische Effekte für äußere Elektronen zumeist vernachlässigt werden. Diese können aber im Nachhinein mit relativistischen Korrekturtermen berücksichtigt werden. Die in dieser Arbeit untersuchten realistischen Systeme erfüllen diese Voraussetzung, sodass die nicht-relativistische Näherung verwendet wird.

Unterhalb der Kondensationsenergie des Festkörpers ($\sim k_B 1000 \text{ K}$) lässt sich das Problem (1.1) weiter vereinfachen, da die Massen M_I der Nukleonen im Vergleich zu denen der Elektronen groß sind. Der Grenzfall verschwindender inverser Masse $\frac{1}{M_I} \rightarrow 0$ bildet die Born-Oppenheimer- (oder adiabatische) Näherung, die impliziert, dass die kinetische Energie und damit die Bewegung der Ionenrümpfe bei der Beschreibung der elektronischen Eigenschaften ignoriert werden kann. Sogar in Situationen, in welchen Gitterdeformationen interessant sind, stellt die Born-Oppenheimer Näherung einen guten Startpunkt für

weiterführende Störungsentwicklungen in der inversen Nukleonenmasse $\frac{1}{M_I}$ dar. Diese Arbeit wird von der Born-Oppenheimer-Näherung ausgehen und sich damit auf das reine Elektronenproblem beschränken und phononische Gittereffekte ignorieren.

Diese Näherungen vereinfachen den Hamiltonian (1.1) erheblich und man erhält

$$\hat{H}_{\text{elektronisch}} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}} \quad , \quad (1.2)$$

wobei

$$\hat{H}_0 = \sum_{\sigma} \int d\underline{r} \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\underline{r}) \left[-\frac{1}{2m} \Delta + V^{\text{ion}}(\underline{r}) \right] \hat{\psi}_{\sigma}(\underline{r}) \quad (1.3)$$

$$\hat{H}_{\text{int}} = \frac{e^2}{2} \sum_{\sigma\sigma'} \int d\underline{r} \int d\underline{r}' \frac{\hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\underline{r}) \hat{\psi}_{\sigma'}^{\dagger}(\underline{r}') \hat{\psi}_{\sigma'}(\underline{r}') \hat{\psi}_{\sigma}(\underline{r})}{|\underline{r} - \underline{r}'|} \quad , \quad (1.4)$$

mit den elektronischen Feldoperatoren $\hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\underline{r})$, $\hat{\psi}_{\sigma}(\underline{r})$. Auch dieses Problem stellt ein schwieriges und im Moment unlösbares quantenmechanisches Vielteilchenproblem dar, dessen Behandlung einerseits mit effektiven Einteilchentheorien oder andererseits als quantenmechanische Vielteilchenrechnung nur an vereinfachten Modell-Systemen wie dem Hubbard-Modell möglich ist.

1.2 Einteilchen-Greenfunktionen

In diesem sehr kurzen Abschnitt wird die zentrale Beobachtungsgröße der Arbeit, die *Einteilchen-Green-Funktion*, eingeführt. Je nach Kontext kann diese verschiedene Darstellungen annehmen. Im Besonderen werden in dieser Arbeit retardierte, avancierte und Matsubara-Green-Funktionen verwendet, die daher genau definiert und differenziert werden. Je nach Problemstellung aber ist die Verwendung der einen oder anderen Variante opportun. Eine knappe Ableitung und eine Diskussion verschiedener analytischer Eigenschaften findet sich im Anhang A.1. An dieser Stelle erfolgen nur eine kurze Beschreibung und Diskussion der physikalischen Aussagekraft der Einteilchen-Green-Funktion.

Der Hauptvorteil bei der Behandlung von Problemen der Festkörperphysik mit Green-Funktionen besteht darin, dass sie die Berechnung mehrzeitiger Korrelationsfunktionen gestatten und somit eine unmittelbare Bestimmung vieler Meßgrößen erlauben. Hierzu zählen Gleichgewichtsgrößen, Antwortfunktionen und Wirkungsquerschnitte. Gleichgewichtsgrößen beschreiben den thermodynamischen Gleichgewichtszustand des Systems, aber auch Teilchendichten oder die Verteilung magnetischer Momente. Antwortfunktionen beschreiben die Reaktion des Vielteilchensystems auf eine äußere Störung. Zu dieser Gruppe gehören elektrische und magnetische Suszeptibilitäten, Quasiteilchen, elektrische Leitfähigkeiten uvm. Wirkungsquerschnitte werden in dieser Arbeit nicht untersucht. Die Green-Funktionen ermöglichen eine vereinheitlichte und einfache Beschreibung dieser Größen.

Retardierte, avancierte und Matsubara-Green-Funktion sind verschiedene Darstellungen der gleichen, analytischen Funktion, welche durch $G_{\hat{A}\hat{B}}(z)$ (für zwei Operatoren \hat{A} und \hat{B}) in der ganzen komplexen Ebene definiert ist. Ausgewertet für verschiedene Argumente

ergeben sich avancierte, retardierte und Matsubara-Green-Funktion

$$G_{\hat{A}\hat{B}}(z) \Rightarrow \begin{cases} z = \omega + i\delta & : G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^r(\omega + i\delta) \\ z = \omega - i\delta & : G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^a(\omega - i\delta) \\ z = i\omega_n & : G_{\hat{A}\hat{B}}^M(i\omega_n) \end{cases} . \quad (1.5)$$

Eine wesentliche Beobachtungsgröße ist die Spektralfunktion

$$\rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega) = \lim_{\delta \rightarrow 0} \frac{1}{2\pi i} \left(G_{\hat{A}\hat{B},\eta}(\omega - i\delta) - G_{\hat{A}\hat{B},\eta}(\omega + i\delta) \right) . \quad (1.6)$$

Die Spektralfunktion misst damit gerade die Unstetigkeit des Imaginärteils zwischen retardierter und avancierter Green-Funktion an der reellen Achse. Kennt man die Matsubara-Green-Funktion, so erfordert die numerische Bestimmung der Spektralfunktion eine analytische Fortsetzung, die schlecht konditioniert ist und damit schwierig zu bestimmen ist.

Die Erwartungswerte bei endlicher Temperatur ergeben sich für fermionische Green-Funktionen aus der Spektralfunktion durch

$$\langle \hat{B}\hat{A} \rangle = \int d\omega f_\beta(\omega) \rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega) , \quad (1.7)$$

mit der Fermi-Funktion $f_\beta(\omega) = 1/[1 + \exp(\beta\omega)]$ bei der Temperatur β . Die Spektralfunktionen selbst sind normiert. Für weitere Details siehe Anhang A.1.

1.3 Aufbau der Arbeit

In der Arbeit werden vier verschiedene elektronische Systeme untersucht, die auch einen guten Überblick über die in der Festkörpertheorie derzeit relevanten Technologien liefern. Die Abschnitte werden, neben einleitender Bemerkungen, durch eine Diskussion der jeweilig notwendigen Methoden angeführt und mit einem Überblick über die erhaltenen Ergebnisse abgeschlossen.

An diese Einführung schließt sich eine Diskussion des *Störstellen-Anderson-Modells* in **Kapitel 2** an. Es werden die in dieser Arbeit verwendeten numerischen Lösungsmethoden diskutiert. Für das Störstellen-Anderson-Modell werden dann neuartige Ergebnisse für zwei an verschiedenen Gitterpositionen lokalisierte Störstellen präsentiert. Der besondere Fokus liegt dabei auf der Wechselwirkung zwischen den zwei Störstellen und deren räumlicher Anordnung. Der Aspekt der räumlichen Anordnung wird in der Literatur größtenteils ignoriert. Es kann ein *pseudo-gap*-Verhalten identifiziert werden, welches, im Rahmen der Störstellenlösung in einer effektiven Gittertheorie als möglicher Vorläufer einer Hochtemperatursupraleitungsphase gilt.

In **Kapitel 3** wird das in der Festkörperphysik sehr bekannte Hubbard-Modell motiviert und auch für den Mehrbandfall abgeleitet. Die dynamische Molekularfeldtheorie wird als wichtiges Werkzeug bei der Lösung der Gittertheorie vorgestellt. Sie wird dann im Folgenden auf die Untersuchung *orbital-selektiver Mott-Übergänge* in einem Zweiband-Modell unterschiedlicher Bandbreiten angewandt. Hier wird der Einfluss von Dotierung und Kristallfeldaufspaltung untersucht, was das Modell besser für experimentelle Situationen vergleichbar macht.

Ebenfalls in **Kapitel 3** wird eine *magneto-optische Falle* mit Hilfe des Hubbard-Modells im Ortsraum untersucht. Der Blickpunkt liegt dabei auf der Beschreibung eines z -Antiferromagneten. Die Untersuchung unterscheidet sich von den typischen Literaturergebnissen, weil sie gänzlich auf eine Näherungsstufe durch die dynamische Molekularfeldtheorie verzichtet und damit nicht-lokale Dynamik explizit einschließt.

In **Kapitel 4** wird das für viele technische Anwendungen interessante Heusler-Material Co_2FeSi im Hinblick auf Korrelationseffekte untersucht. Hierzu wird zunächst die Beschreibung in einer effektiven Einteilchentheorie (der Dichtefunktionaltheorie (DFT)) vorgenommen und dann mit einer Vielteilchenbeschreibung, in der Näherung durch die dynamische Molekularfeldtheorie, ergänzt. Diskutiert werden dabei verschiedene Formen der Wechselwirkung und, im Vergleich mit Experimenten, der Einfluss der Austauschwechselwirkung.

Die Arbeit schließt in **Kapitel 5** mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse und einem Ausblick.

Im **Anhang** werden verschiedene technische Aspekte diskutiert. In der gesamten Arbeit werden natürliche Einheiten benutzt, d.h. $\hbar = k_B = 1$.

2 Das Störstellen-Anderson-Modell

Das Störstellen-Anderson-Modell gehört zu den prominentesten Modellen der modernen Festkörperphysik. Seine Lösung stellt auch heute noch eine große Herausforderung dar. In der ursprünglichen Fragestellung modelliert es eine einzelne, lokal wechselwirkende Störstelle - das *Single Impurity Anderson-Modell* (SIAM) - lokalisierter f -Zustände, welche in ein äußeres, nicht wechselwirkendes elektronisches Leitungsband eingebettet ist [Anderson61, Anderson78]. Diese Störstellen ergeben sich durch Verunreinigungen oder Dotierung. Inwiefern das lokalisierte magnetische Moment in einer metallischen Umgebung überlebt, welchen Einfluss es auf die Bandelektronen ausübt, ist per se unbekannt. Experimentell werden anomale Einflüsse der Störstellen auf das Metall identifiziert, im Besonderen auf die Transporteigenschaften bei den Übergangsmetallen. Hier werden durch sorgfältige Untersuchung Potenzgesetze in der Abhängigkeit von der Temperatur für beispielsweise die Suszeptibilität, den Störstellenwiderstand etc. bestimmt. Ein guter Überblick über das Problem, dessen Entwicklung und Lösung findet sich in [Hewson93].

Der Hamiltonian für das *Single Impurity-Problem* lautet

$$\hat{H} = \sum_{\underline{k}, \sigma} \epsilon_{\underline{k}\sigma}^c \hat{c}_{\underline{k}\sigma}^\dagger \hat{c}_{\underline{k}\sigma} + \sum_{\sigma} \left(\epsilon_{\sigma}^f \hat{n}_{\sigma}^f + \frac{U}{2} \hat{n}_{\sigma}^f \hat{n}_{\sigma}^f \right) + \frac{1}{\sqrt{N_0}} \sum_{\underline{k}} \left(V_{\underline{k}} \hat{f}_{\sigma}^\dagger \hat{c}_{\underline{k}\sigma} + \text{h.c.} \right) \quad (2.1)$$

Hierbei sind $\hat{c}_{\underline{k}, \sigma}^\dagger$ elektronische Erzeuger im Leitungsband und \hat{f}_{σ}^\dagger die Erzeuger für die Störstelle (analog für die Vernichter, ebenso $\hat{n}_{\sigma}^f \equiv \hat{f}_{\sigma}^\dagger \hat{f}_{\sigma}$). Der erste Summand beschreibt das wechselwirkungsfreie Leitungsband, der zweite Summand die Einteilchenenergien ϵ_{σ}^f der Elektronen auf der Störstelle und eine Wechselwirkung U zwischen ihnen. Der dritte Summand beschreibt die Hybridisierung zwischen Band und Störstelle mittels einer Hybridisierungsamplitude $V_{\underline{k}}$.

Auf Grund der Wechselwirkung im System lässt sich dieses Problem nicht exakt lösen und ist damit ein klassisches Vergleichsproblem für Näherungsmethoden aller Art. Für bestimmte Parameterbereiche lässt es die Beschreibung des Kondo-Problems zu. In Verbindung mit der dynamischen Molekularfeld-Theorie [Müller-Hartmann89, Metzner91, Georges96] (DMFT, siehe Abschnitt 3.2), in deren Kern eine effektive Störstelle der Art (2.1) gelöst werden muss, stellt es außerdem ein sehr erfolgreiches Werkzeug zur Diskussion von Gittermodellen dar.¹ Damit stellt eine näherungsweise Lösungsmöglichkeit für das Störstellenproblem auch einen Kandidaten für die näherungsweise Lösung eines deutlich komplexeren Gitterproblems im Rahmen der DMFT dar. Deshalb ist das Verständnis der Eigenschaften und die Lösung des Anderson-Modells von wesentlicher Bedeutung für effektive Gittertheorien.

¹Im Detail leistet die DMFT eine Abbildung des Festkörpers auf eine Anderson-Störstelle, bei welcher der Rest des Festkörpers durch ein dynamisches (zeitabhängiges) Medium $\Delta(z)$ dargestellt wird, welches in das SIAM über die Form der Hybridisierungsamplituden $V_{\underline{k}}$ eingeht.

Die lokale f -Green-Funktion des SIAM ist durch

$$G_{\sigma}^{SIAM}(z) = \frac{1}{z + \mu - \epsilon_{\sigma}^f - \Delta(z) - \Sigma_{\sigma}} \quad (2.2)$$

gegeben, mit der Anderson- oder Hybridisierungsfunktion

$$\Delta(z) = \sum_{\underline{k}} \frac{|V_{\underline{k}}|^2}{z + \mu - \epsilon_{\underline{k}\sigma}^c}, \quad (2.3)$$

welche das Leitungsband (oder Bad) beschreibt, in das die Störstelle eingebettet ist. Das Band ergibt sich aus der Struktur des Gitters.

Während das ursprüngliche Problem typisch für ein einzelnes Orbital mit höchstens zwei lokalen Quantenzuständen formuliert ist, hat sich aus der Anwendung der DMFT auf komplizierte Festkörperprobleme die Notwendigkeit ergeben, mehrere Orbitale auf einer einzelnen Störstellen mit interorbitalen Wechselwirkungen zu behandeln. Diese Erweiterung findet sich in der Diskussion des Mehrstörstellen-Anderson-Modell (Abschnitt 2.2) ebenso wie in der Darstellung der LDA+DMFT (Abschnitt 4.2) wieder, sodass an dieser Stelle auf eine Betrachtung des multiorbitalen SIAM verzichtet wird. Die in Abschnitt 2.1 vorgestellten Störstellenlöser sind gleichermaßen in der Lage, ein multiorbitales SIAM (näherungsweise) zu lösen.

2.1 Lösungsmöglichkeiten des Störstellen-Anderson-Modells

Für das Störstellen-Anderson-Modell und dessen multiorbitale Erweiterung existiert eine Vielzahl verschiedener Methoden zur näherungsweisen Lösung. Die verschiedenen Methoden zeigen unterschiedliche Stärken und Schwächen, sodass es von der Fragestellung und vom möglichen Aufwand abhängt, welche Methode gewählt wird.

Typische Approximationsmethoden zur Lösung des Störstellenproblems sind diagrammatische Störungstheorien in der Wechselwirkung oder deren Derivate [Martín-Rodero82, Potthoff97]. Alternativ dazu lassen sich auch Hybridisierungsentwicklungen vornehmen [Keiter70, Bickers87], Quanten-Monte-Carlo Methoden [Hirsch86] (QMC) oder Methoden der numerischen Renormierungsgruppe [Bulla08, Wilson75] (NRG) einsetzen. Bekannt sind auch die Lösungen mit Hilfe der phänomenologischen Fermi-Flüssigkeitstheorie oder aber auch des Bethe-Ansatzes (für eine isotrope, lineare Dispersion $\epsilon(\underline{k}) = k$). Gut verständliche Einführungen in die verschiedenen Methoden finden sich zum Beispiel bei [Bickers87, Hewson93, Georges96].

In dieser Arbeit werden einerseits numerische Lösungen für Anderson-Modelle (Abschnitte 2.2, 3.4) berechnet und andererseits auch Lösungen für Gittermodelle (Abschnitte 3.3, 4.2) in DMFT-Näherung und darüber hinaus bestimmt. In Folgenden werden die verwendeten Störstellenlöser vorgestellt und diskutiert. Für das Zweiband-Hubbard-Modell wird ein Hirsch-Fye-Quanten-Monte-Carlo-Code verwendet, welcher in der Vergangenheit sehr erfolgreich für eine Vielzahl an Problemen eingesetzt wurde (Abschnitt 3.3). Zur numerischen Behandlung der in dieser Arbeit diskutierten Heusler-Materialien wird ein konsistenter Störstellenlöser implementiert (Abschnitt 4.2). Dieser verwendet eine einfache diagrammatische Schwachkopplungsentwicklung, die numerisch sehr effizient behandelbar ist. Außerdem wird dieser dann auch auf ein allgemeines Mehrstörstellen-Anderson-Modell

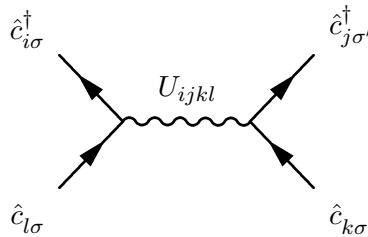


Abbildung 2.1: Wechselwirkungsverzweigungsvertex für eine Schwachkopplungsstörungstheorie. Hierbei bezeichnen die lateinischen Buchstaben i, j, k und l orbitale Quantenzahlen sowie σ und σ' Spinquantenzahlen. Bei der Entwicklung der Feldoperatoren (siehe Gl. (3.1)) sind die Ortsraumfunktionen spinunabhängig. Daher besitzt U_{ijkl} keine Spinindizes. Diese gehen über die Operatoren in die Betrachtung ein.

angewandt (Abschnitt 2.2). Darüber hinaus lässt er sich wegen seiner großen Effizienz sogar auf ein großes im Ortsraum aufgelöstes Hubbard-Modell anwenden (Abschnitt 3.4), was in dieser Form einer sehr großen Störstelle ähnlich ist. Im Anhang A.6 findet sich ein dedizierter Vergleich verschiedener Störstellenlöser, im Besonderen des diagrammatischen und des Quanten-Monte-Carlo-Lösers, in Anwendung auf ein einfaches Hubbard-Modell in DMFT-Näherung.

2.1.1 Schwachkopplungsstörungstheorie

Geht man vom wechselwirkungsfreien Fall aus und führt eine kleine Wechselwirkung² U auf der Störstelle ein, so liegt es nahe, eine diagrammatische Schwachkopplungsstörungstheorie - eine typische Feynman-Entwicklung - durchzuführen. Die zwischenelektronischen Wechselwirkungen werden als Störungen interpretiert, welche die zwischenliegenden, freien Propagationen unterbrechen (Wechselwirkungsverzweigungsvertex einer diagrammatischen Schwachkopplungsstörungstheorie in Abb. 2.1) [Fetter71, Mattuck76]. Die verschiedenen Diagramme einer derartigen Störungstheorie ergeben sich durch systematische Kombination verschiedener Wechselwirkungsverzweigungsvertices.

Man kann eine solche Störungstheorie auch systematisch in unendlicher Ordnung aufsummieren. Das geschieht in der Regel durch Renormierung einerseits der Wechselwirkungslinien oder andererseits durch Renormierung der Propagatoren. Dies kann auf verschiedene Art und Weise geschehen und resultiert in der Konstruktion von Dyson-Gleichungen, *random phase*- oder Leiterapproximationen etc. Mit Hilfe einer Dyson-Gleichung lassen sich beispielsweise aus einer einteilchen-irreduziblen³ Selbstenergie alle reduzierbaren Prozesse bis in unendlicher Ordnung berücksichtigen

$$G = G_0 + G_0 \Sigma G_0 + G_0 \Sigma G_0 \Sigma G_0 + \dots = G_0 (1 + \Sigma G) \implies G = \frac{1}{G_0^{-1} - \Sigma} \quad . \quad (2.4)$$

Mit Hilfe dieser Entwicklung werden alle Selbstenergiendiagramme bis in unendlicher Ordnung aus den in der Selbstenergie enthaltenen, einteilchen-irreduziblen Diagrammen generiert. Die Selbstenergie enthält notwendigerweise nur die einteilchen-irreduziblen Diagramme. Ansonsten würden bestimmte Diagramme überzählt.

²Die Skala U ist klein in Bezug auf die Energieskala, welche durch die typischen Hybridisierungsskalen des Problems $V_{\underline{k}}$ (im Fall des Anderson-Modells), der Bandbreite W (im Kontext eines translationsinvarianten Gitters) auftreten oder der Hüpfamplitude t (im Fall des ortsaufgelösten Hubbard-Modells).

³Die Bedeutung des Begriffs *einteilchen-irreduzibel* wird in Abschnitt A.3 erläutert.

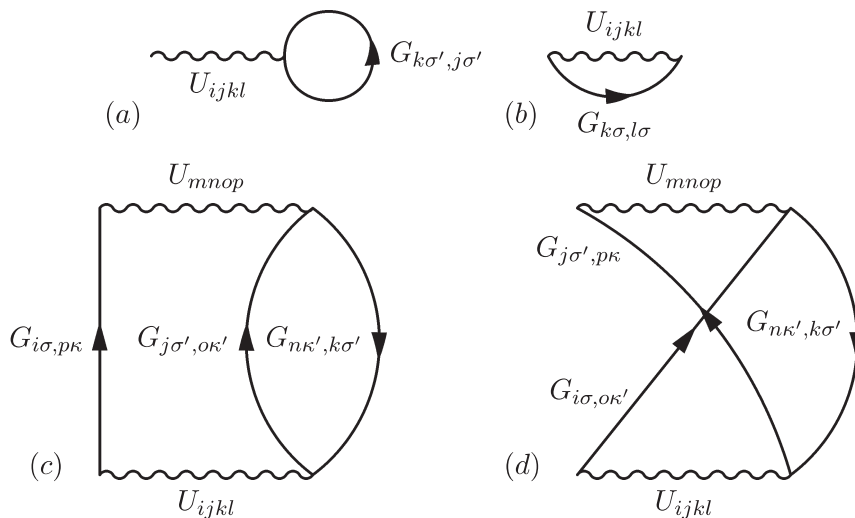


Abbildung 2.2: Alle Diagramme 1. und 2. Ordnung in Schwachkopplungsstörungstheorie für eine beliebige Wechselwirkung gemäß (1.4). In (a) Hartree-Diagramm, (b) Fock-Diagramm (oder Austauschdiagramm), (c) Dichte-Dichte-Diagramm 2. Ordnung und (d) Austauschdiagramm 2. Ordnung

Abschirmeffekte können durch eine Renormierung der Wechselwirkung implementiert werden. In der Literatur wird hier häufig die *random phase*-Approximation herangezogen, bei der die Wechselwirkung im Vertex (Fig. 2.1) durch Teilchen-Loch-Blasen renormiert wird. In diesem Fall wird die Wechselwirkung frequenzabhängig und repräsentiert die effektive, durch Abschirmeffekte gekennzeichnete Wechselwirkung [Mattuck76].

Für den einfachen Fall einer s -Schale finden sich auf dem Gitterplatz höchstens zwei Elektronen, sodass bei einer rein lokalen Wechselwirkung (d.h. nur Elektronen am selben Gitterplatz werden verknüpft) das Fock-Diagramm (Abb. 2.2b) und auch das Austauschdiagramm (Abb. 2.2d) verschwinden, weil die entsprechenden Vertizes dort nicht existieren, wie sich leicht am Hamiltonian (2.1) verifizieren lässt. Es verbleiben das Hartree-Diagramm (Abb. 2.2a) und ein Diagramm 2. Ordnung (Abb. 2.2c).

Diese Selbstenergie ist geeignet für Systeme, bei denen die Wechselwirkung relativ schwach ist, d.h. $U/W \ll 1$. In diesem Fall sind alle Diagramme höherer Ordnung $n > 2$ wenigstens um den Faktor $(U/W)^{n-2}$ kleiner. Typischerweise nimmt die Zahl der irreduziblen Diagramme in höherer Ordnung jedoch zu. Auch werden in höherer Ordnung Divergenzen generiert, die teils in anderen Ordnungen kompensiert werden, sodass sich die höheren Ordnungen quantitativ nicht abschätzen lassen und damit die approximative Beschreibung der Selbstenergie in einer Störungstheorie nicht unbedingt gerechtfertigt ist. Trotzdem wird durch die Entwicklung der Selbstenergie schon eine unendliche Resummierung vorgenommen.

Neben dem typischen Anwendungsgebiet bei schwacher Wechselwirkung zeigt sich aber eine Besonderheit für die Schwachkopplungsstörungstheorie 2. Ordnung für eine s -Schale. Betrachtet man die lokale Green-Funktion (2.2)

$$G_{\sigma}^{SIAM}(z) = \frac{1}{z + \mu - \epsilon_{\sigma}^f - \Delta(z) - \Sigma_{\sigma}} \quad (2.5)$$

und macht den Grenzübergang in den atomaren Limes $V_{\underline{k}} \rightarrow 0$ ($\Rightarrow \Delta(z) \rightarrow 0$), so muss sich gerade die lokale Resonanzstruktur [Hewson66]

$$G_{\text{Atom}}^{\text{s-Schale},\sigma}(z) = \frac{1 - \langle \hat{n}_{\bar{\sigma}} \rangle}{z - \epsilon_f} + \frac{\langle \hat{n}_{\bar{\sigma}} \rangle}{z - \epsilon_f - U} \quad (2.6)$$

ergeben. Für den halbgefüllten, teilchen-loch-symmetrischen Fall $\langle \hat{n}_{\bar{\sigma}} \rangle = \langle \hat{n}_{\sigma} \rangle = \frac{1}{2}$ und $\epsilon_f = -U/2$ wird diese Polstruktur mit der Selbstenergie

$$\Sigma(z) = \frac{U}{2} + \frac{1}{4} \frac{U^2}{z} \quad (2.7)$$

reproduziert. Konstruiert man eine Selbstenergie störungstheoretisch mit den Diagrammen 1. und 2. Ordnung, so werden per Konstruktion alle Terme $\propto U$ und $\propto U^2$ erzeugt. Terme höherer Ordnung treten in (2.7) nicht auf, sodass Diagramme höherer Ordnung sich offenkundig gegenseitig wegheben oder wegfallen. Folglich lässt sich mit einer Selbstenergie in zweiter Ordnung in U nicht nur der Grenzfall schwacher Wechselwirkung $U/t \rightarrow 0$ adäquat abbilden, sondern sogar der entgegengesetzte Starkwechselwirkungslimes $U/t \rightarrow \infty$ bei Halbfüllung. Da nun die Näherung der Selbstenergie durch eine Störungsentwicklung bis einschließlich der zweiten Ordnung für den halbgefüllten Fall gerade zwei wesentliche Grenzfälle enthält, besteht die berechtigte Hoffnung, dass eine derartige Näherung der Selbstenergie $\Sigma(z)$ eine qualitativ richtige Beschreibung liefert. Tatsächlich liefert diese Näherung im Kontext des SIAM auch eine Vielteilchenresonanz an der Fermi-Kante (vgl. Abb. 2.5, siehe im Besonderen das Inset), deren Breite die Tieftemperaturskala des Modells wiedergibt. Für die Schwachkopplungsentwicklung wird sie für größer werdende U nicht exponentiell kleiner, wie es physikalisch korrekt ist, sondern nur algebraisch [Hewson93]. Trotzdem sind die Ergebnisse qualitativ korrekt und stimmen auch mit Störungstheorie 4. Ordnung [Yosida75, Hewson93, Mahler03] überein.

Abseits der Halbfüllung kommen zu (2.7) Korrekturen höherer Ordnung in U hinzu, sodass der atomare Grenzfall $V_{\underline{k}} \rightarrow 0$ beziehungsweise $\epsilon_{\underline{k}} \rightarrow 0$ nicht mehr korrekt wiedergegeben wird. Verschiedene Schemata korrigieren dieses Verhalten und modifizieren die Selbstenergie im Sinne einer Wechselwirkungsrenormierung. Ein (relativ) allgemeiner Ansatz ist durch

$$\Sigma^{\text{Kettenbruch}}(z) = \Sigma(\infty) + \frac{A \Sigma^{(2)}(z)}{1 - B \Sigma^{(2)}(z) - \frac{C \Sigma^{(2)}(z)}{1 - D \Sigma^{(2)}(z) - \dots}} \quad (2.8)$$

mit Entwicklungskoeffizienten A, B, C usw. gegeben [Kotliar06]. Die ursprüngliche Idee enthält nur einen Ansatz bis zur zweiten Ordnung des Kettenbruchs [Martín-Rodero82]

$$\Sigma^{\text{Rodero}}(z) = \Sigma(\infty) + \frac{A \Sigma^{(2)}(z)}{1 - B \Sigma^{(2)}(z)} \quad (2.9)$$

und unterscheidet sich nur durch die spezielle Wahl der Koeffizienten von neueren Ansätzen [Martín-Rodero86, Kajuter96b, Potthoff97]. Die Wahl geeigneter Koeffizienten hängt von der zu erfüllenden Nebenbedingung des Problems ab. Man kann einerseits den atomaren Grenzfall korrekt auflösen [Martín-Rodero82], das Luttinger-Theorem erfüllen [Kajuter96b] oder aber auch die ersten Momente der Spektralfunktion reproduzieren [Potthoff97].

Erweiterungen der Interpolationsansätze (2.9) für Mehrorbitalsysteme führen zu Ansätzen der Form (2.8) [Kajueter96a] oder modifizieren die Polstruktur andersartig [Potthoff01]

$$\Sigma^{\text{Potthoff}}(z) = \Sigma(\infty) + \frac{U^2}{8} \left(\frac{1}{\omega - B} + \frac{1}{\omega + B} \right) \quad (2.10)$$

(hier im atomaren Limes), wobei die Bestimmung der Entwicklungskoeffizienten für diese Ansätze sehr technisch ist und erheblich davon abhängt, dass die Zahl der relevanten Orbitale beschränkt ist (im Fall dieser Ansätze höchstens zwei). Des Weiteren ist die Wahl der interorbitalen Wechselwirkungen für die genannten Ansätze keineswegs frei und beschränkt die Anwendbarkeit für realistische Systeme.

Zur Beschreibung eines annähernd realistischen Mehrorbitalsystems, welches mehrere Orbitale mit beliebiger interorbitaler Wechselwirkung beschreibt, sind die obengenannten interpolierenden Ansätze zu aufwändig. Verfolgt man beispielsweise die ursprüngliche Idee von Rodero und konstruiert eine interpolierende Selbstenergie, welche die richtigen Resonanzen im atomaren Grenzfall für eine d -Schale (bis zu zwei Elektronen pro Orbital) mit über eintausend Zuständen realisiert, so ist zunächst das atomare Problem exakt zu diagonalisieren. Durch spezielle Wahl der Wechselwirkung U_{ijkl} ergibt sich einerseits eine Vereinfachung, andererseits beschränkt man aber so auch die Klasse der beschreibbaren Probleme. Man kann auch die Zahl der relevanten Zustände beschränken und sich auf die präzise Beschreibung eines bestimmten Valenzsektors beschränken, d.h. man berücksichtigt nur Zustände mit einer vorher gewählten Valenz N und Zustände benachbarter Valenzen $N - 1$ und $N + 1$. Dies ist für große Wechselwirkungen U/W durchaus gerechtfertigt (hier sei an Hubbards Energieparabel⁴ erinnert [Hubbard64a]), aber sicher nicht für kleine Wechselwirkungen, bei denen man in der Regel am vollständigen Valenzsektor interessiert ist und das komplette Band untersuchen möchte. Problematisch wird die Beschränkung der Valenz aber in jedem Fall in Systemen mit mehreren Atomen, bei denen es zu Ladungsverschiebungen zwischen den Atomen kommen kann. In diesem Fall ändert sich die Valenz des einzelnen Atoms, und die berücksichtigten Zustände sind nicht mehr die relevanten. Für eine technische Anwendung müssen die Valenzzustände angepasst werden, je nach Lösung, die sich im Lösungsverfahren ausbildet.

Die genannten Schwierigkeiten bei der Beschreibung eines allgemeinen Mehrorbitalsystems durch derartige interpolierende Selbstenergien legen nahe, einen systematischeren Ansatz zu wählen und dabei einen kleineren physikalischen Gültigkeitsbereich in Kauf zu nehmen. Hierbei wird der Schwachkopplungsgrenzfall zum Ausgangspunkt genommen und um diesen systematisch bis zur 2. Ordnung entwickelt. Es werden dann *alle* möglichen Diagramme auf Basis aller nicht-verschwindenden Vertizes konstruiert.⁵ Dieses Vorgehen erlaubt dann, ein Mehrorbitalsystem mit beliebiger orbitaler Symmetrie und in beliebiger Besetzung für schwache Wechselwirkungen U/W zu beschreiben.⁶ In den in dieser Arbeit diskutierten Anwendungsfällen zeigt sich, dass die Beschreibung qualitativ gültige

⁴Hierbei handelt es sich um eine relativ grobe Abschätzung der relevanten Zustände für eine Valenzschale.

Die Einteilchen- und die Wechselwirkungsenergie lassen sich grob abschätzen mit einer quadratischen Funktion der Füllung $E(n) = (\epsilon_d - \mu)n + Un(n - 1)/2$ (ϵ_d ist das ionische Level, μ das chemische Potential, U die Wechselwirkung und n die Teilchenzahl). Die relevanten Valenzzustände sind die in der Nähe des Minimums der Parabel.

⁵Dies kann für nicht-triviale Systeme eine sehr große Zahl an Diagrammen sein. So ergeben sich für eine d -Schale in sphärischer Symmetrie etwa einhunderttausend Diagramme.

⁶Hier muss man sich aber immer im Klaren sein, dass diese Beschreibung streng nur für schwache Wechselwirkungen gültig ist.

Bilder liefert - ganz wie es im paramagnetischen s -Orbitalmodell (2.2) bei Halfüllung zu beobachten ist.

Mit diesem Ansatz können neben einfachen intraorbitalen und interorbitalen Dichte-Dichte-Wechselwirkungen U_{iiii} und U_{ijji} ⁷ auch Austauschintegrale U_{ijij} oder Paar-Hüpfprozesse U_{iijj} berücksichtigt werden. Darüber hinaus lassen sich auch korreliertes Hüpfen U_{ijjj} , U_{jijj} , U_{jjij} und U_{jjji} und mehr (U_{ijkk} , U_{ikjk} , etc.) abbilden. Für ein Mehrorbital-system, respektive Mehrbandsystem, werden dann systematisch alle Schwachkopplungsdiagramme 1. (Abb. 2.2a,b) und 2. Ordnung (Abb. 2.2c,d) berücksichtigt. Über die Bedeutung der verschiedenen Wechselwirkungsintegrale und deren quantitativer Bestimmung siehe Abschnitt 4.

Die einzelnen Diagramme entstehen durch Permutation der Wechselwirkungsvertizes und dem index-gerechten Anschluss der einzelnen Propagatoren.⁸ Im Einzelnen müssen dann die Diagramme aus den Propagatoren $G_{i\sigma,j\sigma'}(z)$ des Problems über Faltungen bestimmt und summiert werden. Die expliziten Formeln werden im Anhang A.3 abgeleitet. Es sei hier bemerkt, dass die Auswahl der Propagatoren für die inneren Linien vom Problem abhängt. Für die DMFT beispielsweise werden in der Arbeit die effektiv wechselwirkungsfreien Propagatoren des Weiss'schen Feldes eingesetzt (siehe Abschnitt 3.2); bei der Betrachtung des Störstellenmodells (siehe Abschnitt 2.2) werden die freien Gitterpropagatoren, d.h. die nackten Propagatoren, verwendet, und bei der Untersuchung der magneto-optischen Falle (Abschnitt 3.4) werden die Propagatoren selbstkonsistent bestimmt, d.h. die vollen Propagatoren werden eingesetzt.

2.1.2 Quanten-Monte-Carlo Methoden

In diesem Abschnitt wird die Lösung der Störstelle mittels Quanten Monte-Carlo-Methoden (QMC) diskutiert. Der Fokus liegt hierbei bei traditionellem Hirsch-Fye-QMC [Hirsch86], welche auch in dieser Arbeit verwendet wird. Im Folgenden wird noch ein Überblick über modernste Entwicklungen wie die Multi-Grid Hirsch-Fye-QMC oder die Continous-Time-QMC-Methode gegeben. Gemeinsam ist allen Methoden die Lösung des zu Grunde liegenden Wirkungsfunktionals für das quantenmechanische Problem; es ist in imaginärer Zeit $\Delta\tau$ formuliert. So muss die Green-Funktion $G(\tau)$ zur Bestimmung von Spektralfunktionen jedoch auf die reelle Achse analytisch fortgesetzt werden. Dieses nicht-triviale Problem ist schlecht konditioniert. Eine Lösungsmöglichkeit wird im Anhang A.5 diskutiert.

Bei der Lösung eines Störstellenproblems ist man an der Bestimmung thermischer Erwartungswerte interessiert. Diese lassen sich mit Hilfe von Grassmann-Variablen ψ , ψ^* für den Operator \hat{O} als Funktionalintegral schreiben [Negele98]

$$\langle \hat{O} \rangle_{\mathcal{A}} = \frac{1}{\mathcal{Z}} \int \mathcal{D}[\psi] \mathcal{D}[\psi^*] \hat{O}[\psi, \psi^*] e^{\mathcal{A}(\psi, \psi^*, \mathcal{G})} . \quad (2.11)$$

Die Zustandssumme \mathcal{Z} ist definiert mit

$$\mathcal{Z} = \int \mathcal{D}[\psi] \mathcal{D}[\psi^*] e^{\mathcal{A}(\psi, \psi^*, \mathcal{G})} . \quad (2.12)$$

⁷Hier seien unterschiedliche Indizes i, j, \dots voneinander verschieden ($i \neq j, i \neq k, \dots$).

⁸Bei der Untersuchung des vielbandigen Heusler-Materials Co_2FeSi (Abschnitt 4) werden pro DMFT-Iteration mehrere hunderttausend Diagramme bestimmt, bei der magneto-optischen Falle für die betrachtete Systemgröße pro Iteration ebenfalls etwa einhunderttausend. Für eine konvergente Rechnung ergeben sich dann mehrere Millionen ausgewerteter Diagramme.

Die genaue Form der Wirkung \mathcal{A} für die Störstelle wird durch die auf der Störstelle definierten Wechselwirkungen bestimmt. Für die in dieser Arbeit verwendete Implementierung ist sie auf Dichte-Dichte-Wechselwirkung

$$\mathcal{A}_U = -U \sum_{\nu} \int_0^{\beta} d\tau \psi_{\nu\uparrow}^*(\tau) \psi_{\nu\uparrow}(\tau) \psi_{\nu\downarrow}^*(\tau) \psi_{\nu\downarrow}(\tau) \quad (2.13)$$

und die Ising-Komponente der Austauschwechselwirkung

$$\mathcal{A}_{U'} = - \sum_{\sigma\sigma', \nu < \nu'} \left(U' - \delta_{\sigma\sigma'} J_z \right) \int_0^{\beta} d\tau \psi_{\nu\sigma}^*(\tau) \psi_{\nu\sigma}(\tau) \psi_{\nu'\sigma'}^*(\tau) \psi_{\nu'\sigma'}(\tau) \quad (2.14)$$

beschränkt. Die Indizes ν und σ bezeichnen orbitale Quantenzahl und Spinquantenzahl. Der Überlapp mit dem Band, in welches die Störstelle eingebettet ist, wird über die Weiss-Funktion \mathcal{G} implementiert und beinhaltet damit den wechselwirkungsfreien Anteil der Wirkung

$$\mathcal{A}_0 = \sum_{\nu\sigma n} \psi_{\nu\sigma n} \mathcal{G}_{\nu\sigma n}^{-1} \psi_{\nu\sigma n}^{\dagger} \quad (2.15)$$

Hier wird die Kurzschreibweise $\mathcal{G}_{\nu\sigma n} \equiv \mathcal{G}_{\nu\sigma}(i\omega_n)$ mit der Matsubara-Frequenz $\omega_n = (2n + 1)\pi T$ verwendet. Die Gesamtwirkung für die auf der Störstelle berücksichtigten Wechselwirkungen lautet damit

$$\mathcal{A}(\psi, \psi^*, \mathcal{G}) = \mathcal{A}_0 + \mathcal{A}_U + \mathcal{A}_{U'} \quad (2.16)$$

Gegenüber dem allgemeinen Mehrorbitalhamiltonian (2.39) werden hierbei nicht-diagonale Badprozesse ignoriert. Auf der Wechselwirkungsseite werden in dieser Näherung dichte-dichte-artige Wechselwirkungen berücksichtigt. Spinflip- oder Paar-Hüpf-Prozesse bleiben in (2.16) unberücksichtigt. Physikalisch führt das zu einer Einschränkung, sodass man beispielsweise keine Singulett-Triplett-Aufspaltung auflösen kann und der Spin gewissermaßen nur klassisch berücksichtigt wird. Die Berücksichtigung von Spinflip-Prozessen erfordert einen wesentlich komplizierteren QMC-Algorithmus, da in der Spinquantenzahl nicht-diagonale Green-Funktionen auftreten, welche die Diagonalelemente der Green-Funktionsmatrix teilweise koppeln [Held99].

Zur Berechnung des Exponentials in (2.11) und (2.12) wird die Wirkung (2.16) in diskretisierter Näherung geschrieben

$$\begin{aligned} \mathcal{A}_{\Lambda}[\psi, \psi^*, \mathcal{G}] &= (\Delta\tau)^2 \sum_{\sigma} \sum_{l=0, l'=0}^{\Lambda-1} \psi_{\nu\sigma l}^* \left(\underline{\underline{\mathcal{G}}}_{\nu\sigma}^{-1} \right)_{ll'} \psi_{\nu\sigma l'} - \Delta\tau U \sum_{l=0}^{\Lambda-1} \psi_{\nu\uparrow l}^* \psi_{\nu\uparrow l} \psi_{\nu\downarrow l}^* \psi_{\nu\downarrow l} \\ &\quad - \Delta\tau \sum_{\sigma\sigma', \nu < \nu'} \left(U' - \delta_{\sigma\sigma'} J_z \right) \sum_{l=0}^{\Lambda-1} \psi_{\nu\sigma l}^* \psi_{\nu\sigma l} \psi_{\nu'\sigma' l}^* \psi_{\nu'\sigma' l} \end{aligned} \quad (2.17)$$

mit $\Delta\tau = \beta/\Lambda$ (Λ ist die Zahl der diskretisierten Zeitscheiben) und der Weisschen Green-Funktion $\left(\underline{\underline{\mathcal{G}}}_{\nu\sigma} \right)_{ll'} \equiv \mathcal{G}_{\nu\sigma}((l-l')\Delta\tau)$. Mit der Trotter-Suzuki-Formel [Trotter59, Suzuki76] für Operatoren \hat{A} und \hat{B}

$$e^{-\beta(\hat{A}+\hat{B})} = \left(e^{-\Delta\tau\hat{A}} e^{-\Delta\tau\hat{B}} \right)^{\Lambda} + \mathcal{O}(\Delta\tau) \quad (2.18)$$

lässt sich diese entwickeln. Eine diskrete Hubbard-Stratonovich Transformation [Hirsch83]

$$\exp\left(\frac{\Delta\tau}{2}V_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}\left(\psi_{\nu\sigma l}^*\psi_{\nu\sigma l}-\psi_{\nu'\sigma' l}^*\psi_{\nu'\sigma' l}\right)^2\right)=\frac{1}{2}\sum_{\mathbf{s}}\exp\left(\lambda_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}s_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}^l\left(\psi_{\nu\sigma l}^*\psi_{\nu\sigma l}-\psi_{\nu'\sigma' l}^*\psi_{\nu'\sigma' l}\right)\right)\quad (2.19)$$

mit $\cosh\lambda_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}=\exp\left(\frac{\Delta\tau V_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}}{2}\right)$ und

$$V_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}=\begin{cases} U & \nu=\nu',\sigma<\sigma' \\ U'-J & \nu<\nu',\sigma=\sigma' \\ U' & \nu<\nu',\sigma\neq\sigma' \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}\quad (2.20)$$

entkoppelt nun die Wechselwirkungsterme und führt auf einen in Erzeugern und Vernichtern bilinearen Term, der an ein Hilfsfeld $\mathbf{s}=\{s_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}^l\}$ gekoppelt ist.

Damit ergibt sich das Funktionalintegral für die Green-Funktion zu

$$G_{\nu\sigma}((l-l')\Delta\tau)\equiv G_{\nu\sigma ll'}=\frac{1}{\mathcal{Z}}\sum_{\{\mathbf{s}\}}\int\mathcal{D}[\psi]\mathcal{D}[\psi^*]\psi_{\nu\sigma l}^*\psi_{\nu\sigma l'}e^{\sum_{\nu\sigma, ll'}\psi_{\nu\sigma l}^*M_{\nu\sigma ll'}^s\psi_{\nu\sigma l'}}\quad (2.21)$$

mit

$$M_{\nu\sigma ll'}^s=\Delta\tau^2(\mathcal{G}_{\nu\sigma}^{-1})_{ll'}-2\delta_{ll'}\sum_{\nu'\sigma'}\lambda_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}s_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}^l\Theta(\sigma'-\sigma\delta_{\sigma\sigma'}(\nu'-\nu))\quad (2.22)$$

Die Summation ist über alle Konfigurationen des Ising-Hilfsfelds zu nehmen, mit unabhängigen Fermionen in jedem Term der Summe.

Hier wird eine gegenüber den Arbeiten [Georges96, Held99] verbesserte Implementierung eingesetzt, die um Korrekturterme höherer Ordnung $\mathcal{O}(\Delta\tau)$ ergänzt ist

$$M_{\nu\sigma ll'}^s=\left(\Delta\tau^2(\mathcal{G}_{\nu\sigma}^{-1})_{ll'}-1\right)e^{-\tilde{\lambda}_{\nu\sigma}^s}+\delta_{ll'}\quad (2.23)$$

Da die Fermionen in (2.16) nur noch quadratisch eingehen, kann das Funktionalintegral durch eine einfache Gaußsche Integration beziehungsweise das Wick'sche Theorem [Negele98, Gasser01] berechnet werden. Man erhält für die Einteilchen-Green-Funktion

$$G_{\nu\sigma ll'}=\frac{1}{\mathcal{Z}}\sum_{\mathbf{s}}(\underline{M}_{\nu\sigma}^s)_{ll'}^{-1}\prod_{\nu\sigma}\det\underline{M}_{\nu\sigma}^s\quad (2.24)$$

und für die Zustandssumme

$$\mathcal{Z}=\sum_{\mathbf{s}}\prod_{\nu\sigma}\det\underline{M}_{\nu\sigma}^s\quad (2.25)$$

Problematisch ist hierbei die Auswertung der hochdimensionalen Summe über $\mathbf{s}=\{s_{\nu\sigma,\nu'\sigma'}^l\}$, deren Dimension exponentiell mit der Zahl der Diskretisierungsschritte und der Temperatur (via $\Lambda=1/\Delta\tau T$) sowie Band- und Spinzahl ansteigt. Damit ist die vollständige Bestimmung der Summe durch Summation aller Summanden für relevante Systeme nur bei sehr hohen Temperaturen möglich.

Die Bestimmung der 2^Λ Terme in (2.24) mit (2.23) ist eine Operation vom Aufwand $\mathcal{O}(\Lambda^3)$. Falls die Terme so geordnet werden, dass aufeinanderfolgende Konfigurationen \mathbf{s} sich nur durch einen Spinflip unterscheiden ($s_l \rightarrow -s_l$), so können alle Matrizen und Determinanten mit weniger Aufwand $\mathcal{O}(\Lambda^2)$ aktualisiert werden. Mit der nachfolgend beschriebenen Monte-Carlo Integration reduziert sich im Weiteren die Zahl der zu bestimmenden Terme von 2^Λ auf $\mathcal{O}(\Lambda)$.

Monte-Carlo Integration

Für die Summen (2.24), (2.25) besteht die Hoffnung, dass die stark veränderlichen Beiträge nur in relativ beschränkten Bereichen des hochdimensionalen Integrationsbereichs $\{\mathbf{s}\}$ erzeugt werden. In einem solchen Fall bietet es sich an, die Summe mittels einer Monte-Carlo-Methode zu bestimmen. Hierbei wird der Integrand in eine normierte Wahrscheinlichkeitsverteilung P und einen Restterm O aufgeteilt

$$\int dx F(x) = \int dx O(x) P(x) = \int d\tilde{x} O(x) \equiv \langle O \rangle_P \quad . \quad (2.26)$$

Die Wahrscheinlichkeitsverteilung $P(x)$ ist a priori unbekannt, kann aber mit einem stochastischen Markov-Prozess generiert werden: Unter der Voraussetzung, dass eine Konfiguration i realisiert ist, wird eine neue Konfiguration j mit der Wahrscheinlichkeit

$$\mathcal{P}(i \rightarrow j) = \min \left\{ 1, \frac{P(j)}{P(i)} \right\} \quad (2.27)$$

akzeptiert. Diese Übergangsbedingung [Metropolis53] erfüllt das Prinzip der *detailed balance*

$$P(i)\mathcal{P}(i \rightarrow j) = P(j)\mathcal{P}(j \rightarrow i) \quad (2.28)$$

und erzeugt eine Folge von Konfigurationen $i, \dots \equiv \{i\}$, entsprechend der Wahrscheinlichkeitsverteilung P , sofern der Prozess ergodisch ist. Innerhalb des Markov-Prozesses bleibt P unnormiert, sodass die Summen (2.24), (2.25) nur bis auf eine Normierungskonstante bestimmbar sind. In Konsequenz sind somit Observable nur im Verhältnis zur Zustandssumme bestimmbar. Außerdem muss man die Anfangskonfigurationen aus den Mittelwerten ausschließen, weil ihre Gewichte verschwindend klein sein können. In jeder endlichen Folge $\{i\}$ wären sie damit überrepräsentiert; man unterscheidet daher zwischen *warmup sweeps* und *measurement sweeps*.

Zur Bestimmung von (2.24) identifiziert man die Wahrscheinlichkeitsverteilung P durch

$$P(\{\mathbf{s}\}) = \left| \prod_{\nu\sigma} \det \underline{\underline{M}}_{\nu\sigma}^{\mathbf{s}} \right| \quad (2.29)$$

für das Hilfsfeld $\{s\}$, sodass die Green-Funktion (2.24) als Mittelwert $\langle \dots \rangle_s$ der verschiedenen Konfigurationen genähert werden kann

$$G_{\nu\sigma ll'} = \frac{1}{\tilde{Z}} \left\langle \left(\underline{\underline{M}}_{\nu\sigma}^{\mathbf{s}} \right)^{-1}_{ll'} \tilde{Z}_{\mathbf{s}} \right\rangle \quad , \quad (2.30)$$

mit

$$\tilde{Z}_s = \left\langle \text{sign} \left(\prod_{\nu\sigma} \det \underline{M}_{\nu\sigma}^s \right) \right\rangle . \quad (2.31)$$

Man beachte, dass die Zustandssumme \tilde{Z} von der tatsächlichen Zustandssumme Z um einen konstanten Vorfaktor abweicht, was, wie oben beschrieben, eine direkte Konsequenz des Markov-Prozesses ist.

Gemäß dem zentralen Grenzwertsatz erhält man bei der Berücksichtigung von N statistisch unabhängigen Summanden für den Mittelwert einen Fehler

$$\Delta O = \frac{1}{\sqrt{N}} \sqrt{\langle O^2 \rangle_P - \langle O \rangle_P^2} \quad (2.32)$$

für die Observable O . Falls die Observable über den Integrationsbereich hinweg positive und negative Beiträge summiert, die sich annähernd ausgleichen, führt das zu einem ungünstigen *signal-to-noise* Verhältnis $\Delta O/|O| \gg 1$ für endliche N . Dies ist insbesondere bei dem sogenannten Vorzeichen-Problem der Fall, welches ganz typisch für bestimmte fermionische Probleme auftaucht und einen exponentiellen Zuwachs in der notwendigen Rechenzeit bedingt. Die Quanten Monte-Carlo-Methode wird erst im kombinierten Grenzfall $N \rightarrow \infty$ und $\Delta\tau \rightarrow 0$ exakt.

Das Vorzeichenproblem ist inhärent für fermionische Systeme und *NP hard*⁹ [Troyer05]. Das schließt aber allgemein nicht aus, dass für eine Subklasse quantenmechanischer Probleme das Vorzeichenproblem gelöst wird, beispielsweise durch Abbildung auf bosonische Systeme [Chandrasekharan99, Arnow82] oder nicht-frustrierte Systeme. Es besteht die Hoffnung, dass Quantencomputer Probleme dieser Klasse allgemein lösen [Farhi01].

Es ist wichtig anzumerken, dass das Vorzeichenproblem für Störstellenprobleme, die sich auf die Dichte-Dichte-Wechselwirkung beschränken (wie es für das J_z -Modell in Abschnitt 3.3 gilt), nicht relevant ist.

Die Zahl der tatsächlich unabhängigen Messungen reduziert sich auf Grund der Autokorrelation der sukzessiven Messungen. Mit dieser vergrößert sich der Fehler der autokorrelierten Daten im Vergleich zu den unabhängigen $\Delta O_{\text{auto } T} = T \Delta O$ [Blümer08a]. Der Einfluss einer endlichen Autokorrelation auf Observable, Fehler und Konvergenz für Quanten Monte-Carlo Simulationen wird in der Literatur [Blümer02, Fehske07, Evertz03] ausführlich diskutiert.

Verbesserungsmöglichkeiten für QMC

Bei der Diskretisierung des Wirkungsfunktionals (2.17) entstehen unvermeidliche, systematische Fehler, die nur im Grenzfall $\Delta\tau \rightarrow 0$ verschwinden. Zur befriedigenden Bestimmung von Observablen ist es deshalb notwendig, den systematischen Diskretisierungsfehler zu berücksichtigen. Dies gelingt durch Extrapolation der Observablen in $\Delta\tau \rightarrow 0$. In der Praxis wird jedoch häufig darauf verzichtet, und die Ergebnisse werden für verschiedene $\Delta\tau$ verglichen und, sofern die Übereinstimmung akzeptabel ist, das Ergebnis für das kleinste $\Delta\tau$ verwendet.

⁹*NP hard* ist ein Begriff aus der theoretischen Informatik, der zur Klassifizierung von Komplexitätsproblemen dient. Nach bisherigem Erkenntnisstand sind derartige Probleme nicht allgemein in polynomieller Zeit lösbar.

Derzeit gibt es sehr erfolgreiche und bewährte Ansätze, die genau diesen systematischen Fehler vermeiden und hier kurz skizziert werden:

Multi-Grid Hirsch-Fye-QMC Im Rahmen der Anwendung in der DMFT ist Multi-Grid Hirsch-Fye-Quanten-Monte-Carlo [Blümer08b] ein erfolgreicher Ansatz. Der Algorithmus lässt sich sehr geradlinig aus dem herkömmlichen Hirsch-Fye-QMC ableiten: Die wesentliche Beobachtung ist, dass einzig die Lösung der Störstelle in einer DMFT vom Trotter-Fehler direkt betroffen ist. Der Fehler setzt sich dann in die anderen relevanten Größen (Selbstenergie und Weiss-Funktion) systematisch fort. Das Ergebnis des Störstellenlösers ist im Fall von Hirsch-Fye-QMC die lokale Green-Funktion $G_{\Delta\tau}$. Die korrekte Lösung des Störstellenproblems ergibt sich für $\lim_{\Delta\tau \rightarrow 0} G_{\Delta\tau} = G$. Aus der Perspektive des einfachen Störstellenmodells wird hier das Ergebnis (die Green-Funktion G) in $\Delta\tau$ aus interpolierten Green-Funktionen für verschiedene $\Delta\tau$ extrapoliert. Für die DMFT (siehe 3.2) ist das Vorgehen maßgeblich, weil der Trotter-Fehler erheblich früher beseitigt wird und sich damit für die anderen relevanten Systemgrößen Selbstenergie und Weiss-Funktion kein Trotter-Fehler ergibt. Dieses Vorgehen ermöglicht den Einsatz größerer $\Delta\tau$ und ist damit in höchstem Maße effizient.

Stochastic Series Expansion Die ursprüngliche Idee von Sandvik [Sandvik91, Sandvik97] (siehe auch [Fehske07]) entwickelt den Operator $\exp(-\beta\hat{H})$ ohne Diskretisierungsfehler. Hierzu wird der Hamilton-Operator H örtlich aufgelöst $\hat{H} = -\sum_b^{m_b} \hat{H}_b$ (mit Gitterplätzen b) und das Exponential entwickelt

$$\begin{aligned} \exp(-\beta\hat{H}) &= \sum_n \frac{\beta^n}{n!} (-\hat{H})^n = \sum_n \frac{\beta^n}{n!} (\hat{H}_1 + \hat{H}_2 + \hat{H}_3 \dots)(\hat{H}_1 + \hat{H}_2 + \hat{H}_3 \dots) \dots \\ &= \sum_n \frac{\beta^n}{n!} \sum_{S_n} \hat{H}_{i_1} \hat{H}_{i_2} \hat{H}_{i_3} \dots \quad , \end{aligned} \quad (2.33)$$

wobei die Summe über alle Multiindizes i_1, i_2, i_3, \dots mit $i_\alpha \in \{1, 2, 3, \dots, m_b\}$ läuft. Die Hamiltonians H_b dürfen dabei nicht verzweigend sein, d.h. für jede Basis $\{|j\rangle\}$ muss $H_b|j\rangle$ proportional zu einem einzelnen Basiszustand sein und ein endliches Spektrum haben. Beim Ausspuren $\text{Tr}[\exp(-\beta\hat{H})] = \sum_i \langle i | \exp(-\beta\hat{H}) | i \rangle$ modifiziert jeder einzelne Operator \hat{H}_b das Ket und führt den Basiszustand in einen neuen über. Stellt man die Kets schematisch dar, lässt sich ein QMC-Weltlinienverfahren anwenden.

Continous Imaginary Time QMC Hier wird für fermionische Systeme der Boltzmann-Operator $e^{\beta\hat{H}}$ zerlegt. Daraus resultiert eine kontinuierliche Summe über Exponentiale von Einteilchenoperatoren in einer Entwicklung der Wechselwirkung [Rombouts99, Rubtsov05] oder der Hybridisierung [Werner06]. Die Methode kann auch auf allgemeine Mehrbandsysteme angewandt werden und erlaubt die Auswertung von thermodynamischen Erwartungswerten wie auch von Grundzustandsgrößen. Vergleiche der Effizienz von Continous Imaginary Time QMC mit Hirsch-Fye-QMC findet sich in [Blümer07a, Gull07].

Welche der beschriebenen Methoden für ein gewähltes Problem besser geeignet ist, lässt sich allgemein nur schwer beurteilen. Das für alle QMC-Verfahren schwierige Vorzeichen-

problem tritt bei Continuous Imaginary Time QMC erfahrungsgemäß weniger auf. Andererseits bietet Multi-Grid Hirsch-Fye-QMC eine hervorragend kontrollierbare Genauigkeit der Ergebnisse.

Hochfrequenzkorrektur

Verschiedene Störstellenlöser, so auch Hirsch-Fye-QMC, geben als Resultat eine in imaginärer Zeit aufgelöste Green-Funktion $G(\tau)$ (siehe Abschnitt 2.1.2) zurück. $G(\tau)$ ist mit der frequenzauflösten $G(i\omega_n)$ über eine Fourier-Transformation assoziiert

$$G(i\omega_n) = \int_0^\beta d\tau e^{i\omega_n\tau} G(\tau) \quad , \quad (2.34)$$

$$G(\tau) = \frac{1}{\beta} \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-i\omega_n\tau} G(i\omega_n) \quad , \quad (2.35)$$

mit $\omega_n = (2n + 1)\pi T$. Green-Funktionen fallen für große Argumente nur langsam ab $G(|z| \gg 1) = \frac{1}{z}$ (siehe Gleichung (A.16)). Damit sind die Probleme bei der Fourier-Transformation offenkundig: Die hochfrequenten Eigenschaften der Green-Funktion $G(i\omega_n)$ mit $\omega_n \gg 1$ werden mit einem stark oszillierenden Integralkern $e^{-i\omega_n\tau}$ in Gleichung (2.34) abgetastet. Die Kompensation der negativen und positiven Anteile im Integral geschieht auf Intervallen der Breite $\sim 1/\omega_n$. Die Green-Funktion $G(\tau)$ in (2.34) ist in imaginärer Zeit, aber nur auf einem Gitter $0, \frac{\beta}{L}, \frac{2\beta}{L}, \frac{3\beta}{L}, \dots, \beta$ bekannt. Damit sind gerade die hochfrequenten Eigenschaften nicht in einer diskretisierten Green-Funktion $G_{\Delta\tau}$ verschlüsselt. Dieser Zusammenhang ist gemeinhin als Sampling oder Nyquist-Theorem [Nyquist28, Shannon49] bekannt. Mit einer diskretisierten Green-Funktion $G_{\Delta\tau}$ enthält ihre Fourier-Transformierte $G_{\Delta\tau}(i\omega_n) = \mathcal{F}(G_{\Delta\tau})$ nur auf dem Intervall $[-\omega_c + \omega_0, \omega_c + \omega_0]$ mit $\omega_c = \frac{\pi}{\Delta\tau}$ relevante (nicht-redundante) Information. Abseits dieses Intervalls wird die Green-Funktion periodisch fortgesetzt. Hinzu kommt, dass die endliche Summe

$$\text{Gl. (2.35)} \approx \frac{1}{\beta} \sum_{n=-L/2}^{L/2-1} e^{-i\omega_n\tau} G(i\omega_n) \quad (2.36)$$

keine Unstetigkeiten bei $\tau = 0$ erzeugen kann, wie es die analytischen Eigenschaften für $G(\tau)$ erfordern.

Die analytischen Eigenschaften der Green-Funktion $G(i\omega_n)$ und $G(\tau)$ erfordern ein beliebig kleines $\Delta\tau$. Ein sehr kleines $\Delta\tau$ erfordert aber einen erheblichen numerischem Aufwand ($\sim \Delta\tau^{-3}$, siehe Abschnitt 2.1.2). Zur Lösung dieses Problems gibt es verschiedene Ansätze: Man kann die Green-Funktion $G_{\Delta\tau}$ verbessert interpolieren oder glätten¹⁰ und damit die numerische Integration (2.36) verbessern (siehe den Überblick in [Knecht06]). Von Vorteil ist die einfache Implementierbarkeit, weil sich die Korrektur nur auf die Fourier-Transformation auswirkt. Nachteilig ist jedoch, dass man über die Wahl der Interpolationsfunktionen ein bestimmtes Verhalten für die analytischen Eigenschaften festlegt. Alternativ zu diesen Interpolations- und Glättungsansätzen kann man die Green-Funktion auch als Summe eines analytisch bekannten Modellanteils und einer diskretisierten, numerisch zu bestimmenden Korrektur schreiben. Der Modellanteil implementiert dann die

¹⁰Hier lassen sich Splines [Jarrell92, Knecht06, Joo01], Polynome oder andere Glättungsansätze [Ulmke95, Blümer02] verwenden.

notwendigen analytischen Eigenschaften der Green-Funktion und der diskretisierte Anteil nur die Abweichungen von diesem Anteil auf Grund der spezifischen Rechnung. Eine derartige Korrektur ist in dem in dieser Arbeit verwendeten DMFT+QMC Code enthalten und wurde als QMC+ $\frac{1}{\omega}$ veröffentlicht [Knecht06, Knecht05]. Diese Korrektur adaptiert aber nicht die Green-Funktion, sondern die Selbstenergie. Die originale Überlegung für den Fall eines s -Orbitals [Potthoff97] basiert auf der exakten Hochfrequenzkorrektur der Selbstenergie

$$\Sigma_{\sigma}(\omega) = U \langle \hat{n}_{-\sigma} \rangle + \frac{1}{\omega} U^2 \langle \hat{n}_{-\sigma} \rangle (1 - \langle \hat{n}_{-\sigma} \rangle) + \mathcal{O}(\omega^{-2}) \quad . \quad (2.37)$$

Die Multiorbitalerweiterung ist gegeben durch [Knecht02, Joo01]

$$\Sigma_{\gamma}(\omega) = \sum_{\beta \neq \gamma} U_{\beta\gamma} \langle n_{\beta} \rangle + \frac{1}{\omega} \sum_{\alpha, \beta \neq \gamma} U_{\alpha\gamma} U_{\beta\gamma} (\langle n_{\alpha} n_{\beta} \rangle - \langle n_{\alpha} \rangle \langle n_{\beta} \rangle) + \mathcal{O}(\omega^{-2}) \quad (2.38)$$

mit den Multiindizes α, β und γ für orbitale Quantenzahl und Spinquantenzahl. Im Vergleich zum Einbandfall (2.37) gehen hier zusätzlich Zweiteilchenerwartungswerte $\langle n_{\alpha} n_{\beta} \rangle$ ein. Die Erwartungswerte in den Entwicklungskoeffizienten sind selbstkonsistent zu bestimmen.

Eine derartige, sorgfältige Behandlung bei der Störstellenlösung ist für die Betrachtung von orbital-selektiven Mott-Übergängen im Rahmen einer DMFT-Betrachtung unerlässlich. Daher wird auch in dieser Arbeit (siehe Abschnitt 3.3) das Störstellenproblem mit der beschriebenen Hochfrequenzkorrektur der Selbstenergie gelöst.

2.2 Das Mehrstörstellen-Anderson-Modell

Das Mehrstörstellen-Anderson-Modell - *Multi Impurity Anderson-Modell* (MIAM) - ist eine Erweiterung des SIAM und platziert mehrere Störstellen in denselben oder auch verschiedenen Leitungsbändern, die paarweise miteinander hybridisieren können. Die Hybridisierung zwischen den einzelnen Störstellen wird über ein sogenanntes nicht-diagonales Bad (respektive Leitungsbänder) oder direkte Transfers (Hoppings) zwischen den Störstellen ermöglicht. Erstgenannte koppelt die Störstellen effektiv über freie Badprozesse. Letztgenannte führen zu einer direkten Kopplung der Störstellen. Die räumliche Anordnung der Störstellen bestimmt die präzise Form der nicht-diagonalen Bänder und drückt sich in der \underline{k} -Abhängigkeit der Green-Funktion des Leitungsbands aus. Zusätzlich sind direkte Wechselwirkungen zwischen den Elektronen der einzelnen Störstellen möglich (beispielsweise Dichte-Dichte- oder Austauschwechselwirkungen), welche ebenfalls zu einer Kopplung der Störstellen führen.

Von aktuellem Interesse ist die Lösung des MIAM im Kontext sogenannter *Quantum dots* (QD). Diese lassen sich experimentell zu ein, zwei oder mehr Punkten [Jeong01, Jiang08, Craig04] zusammenlegen und sich am selben äußeren Leitungsbänder anschließen. Hierbei sind die Quantenpunkte nicht in einem Kristallgitter verteilt. Die theoretischen Untersuchungen für drei oder mehr Störstellen konzentrieren sich besonders auf die Untersuchung der Wechselwirkung zwischen den Störstellen untereinander, d.h. im Besonderen die Frustration des Systems, und auf den Einfluss der Wechselwirkungselemente [Wang07, Mitchell09]. Die Effekte auf die Störstellen auf Grund der energetischen Struktur der Leitungsbänder werden marginalisiert, ihre Zustandsdichte wird typischerweise

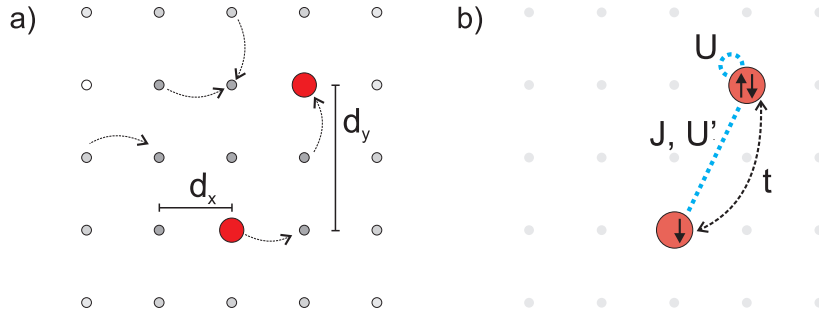


Abbildung 2.3: Konfiguration zweier Störstellen in einem zweidimensionalen, einfach-kubischen Gitter. In (a) sind beispielhaft die erlaubten, elementaren Transfers zwischen Gitterplätzen und zwischen Störstellen und Gitter abgebildet. Die rechte Abbildung (b) zeigt, welche Wechselwirkungen und welche direkten Hüpfprozesse eingehen.

als flach [Nishimoto06, Izumida00] oder linear [Žitko08] angenommen, oder es werden sehr einfache, eindimensionale Ketten angeschlossen [Žitko06, Fabrizio05]. Diese nicht-triviale Einschränkung verbietet eine Untersuchung des Einflusses der räumlichen Anordnung der Störstellen in einem Kristallgitter bzw. Festkörper. Derartige Betrachtungen mit nicht-diagonaler Hybridisierung wurden bisher nach Kenntnisstand des Autors für das Mehrstörstellen-Anderson-Modell theoretisch nicht unternommen.

Der Hamiltonian für das MIAM lautet für verschiedene Störstellen i, j, \dots und Leitungsbänder α, β

$$\begin{aligned}
 \hat{H} = & \sum_{\alpha, \underline{k}, \sigma} \epsilon_{\alpha \underline{k} \sigma}^c \hat{c}_{\alpha \underline{k} \sigma}^\dagger \hat{c}_{\alpha \underline{k} \sigma} + \sum_{i, \sigma} \left(\epsilon_{i \sigma}^f \hat{f}_{i \sigma}^\dagger \hat{f}_{i \sigma} + \frac{U_i}{2} \hat{n}_{i \sigma}^f \hat{n}_{i \sigma}^f \right) + \frac{1}{\sqrt{N_0}} \sum_{i, \alpha, \underline{k}, \sigma} \left(V_{i \alpha \underline{k}} \hat{f}_{i \sigma}^\dagger \hat{c}_{\alpha \underline{k} \sigma} + \text{h.c.} \right) \\
 & + \sum_{\alpha \neq \beta, \underline{k}, \sigma} \left(\epsilon_{\alpha \beta \underline{k}}^c \hat{c}_{\alpha \underline{k} \sigma}^\dagger \hat{c}_{\beta \underline{k} \sigma} + \text{h.c.} \right) + \sum_{i \neq j, \sigma} \left(t_{ij}^f \hat{f}_{i \sigma}^\dagger \hat{f}_{j \sigma} + \text{h.c.} \right) \\
 & + \sum_{ijkl, \sigma \sigma'} \frac{U_{ijkl}}{2} \hat{f}_{i \sigma}^\dagger \hat{f}_{j \sigma'}^\dagger \hat{f}_{k \sigma'} \hat{f}_{l \sigma} \left(1 - \delta_{ij} \delta_{jk} \delta_{kl} \right) . \tag{2.39}
 \end{aligned}$$

In der ersten Zeile finden sich die dem Hamiltonian des SIAM (2.1) formgleichen Terme. Im Fall des MIAM sind diese aber nun für die einzelnen Störstellen i und Leitungsbänder α aufgelöst und erlauben eine differenzierte Formulierung der einzelnen Störstellen und angeschlossener Leitungsbänder.

Die Kopplung der einzelnen Störstellen erfolgt über die hinzukommenden Terme in den folgenden Zeilen: Der erste Summand in Zeile zwei beschreibt die Hybridisierung zwischen den einzelnen Leitungsbändern ($\epsilon_{\alpha \beta \underline{k}}^c$). Mit dem zweiten Summanden werden die direkten Transfers zwischen den einzelnen Störstellen beschrieben (t_{ij}^f). In der dritten Zeile kommen nun die direkten Wechselwirkungen U_{ijkl} zwischen Elektronen unterschiedlicher Störstellen i, j hinzu.

In Abbildung 2.3 wird eine Konfiguration zweier Störstellen in einem einfach-kubischen Gitter dargestellt. In 2.3a erkennt man, wie die drei Störstellen im Gitter eingebettet sind, und sieht beispielhaft, welche elementaren Transfers im Gitter und zwischen Störstellen

und Gitter möglich sind. Diese Prozesse werden durch die Bandanteile $\epsilon_{\underline{k}\sigma}^c$ und die Ankopplung der Störstellen an das Leitungsband $V_{i\underline{k}}$ im Hamiltonian 2.39 abgebildet. Weil die Störstellen an das gleiche Leitungsband angeschlossen werden, entfallen die Indizes i an den Operatoren der Bandelektronen $\hat{c}_{\underline{k}\sigma}^\dagger, \hat{c}_{\underline{k}\sigma}$. Teilabbildung 2.3b verdeutlicht, wie die Wechselwirkungen zwischen den Elektronen auf der Störstelle (U) und zwischen verschiedenen Störstellen eingehen (U', J). Zudem erlaubt die Modellbeschreibung auch direkte Hüpfprozesse zwischen benachbarten Störstellen (t). Auf der Basis dieser Parametrisierung vereinfacht sich der Hamiltonian für das MIAM (2.39) zu

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \sum_{\underline{k},\sigma} \epsilon_{\underline{k}}^c \hat{c}_{\underline{k}\sigma}^\dagger \hat{c}_{\underline{k}\sigma} + \epsilon_f \sum_{i,\sigma} \hat{f}_{i\sigma}^\dagger \hat{f}_{i\sigma} \\ &+ \frac{U}{2} \sum_{i,\sigma} \hat{n}_{i\sigma}^f \hat{n}_{i\bar{\sigma}}^f + \frac{U'}{2} \sum_{i \neq j, \sigma} \hat{n}_{i\sigma}^f \hat{n}_{j\bar{\sigma}}^f + \frac{J}{2} \sum_{ij,\sigma} \hat{f}_{i\sigma}^\dagger \hat{f}_{j\bar{\sigma}}^\dagger \hat{f}_{j\bar{\sigma}} \hat{f}_{i\sigma} \\ &+ \frac{1}{\sqrt{N_0}} \sum_{i,\underline{k},\sigma} \left(V_{\underline{k}} \hat{f}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{\underline{k}\sigma} + \text{h.c.} \right) + t \sum_{i \neq j, \sigma} \left(\hat{f}_{i\sigma}^\dagger \hat{f}_{j\sigma} + \text{h.c.} \right) . \end{aligned} \quad (2.40)$$

Die Terme der ersten Zeile von (2.40) beschreiben die Einteilchenenergien der Band- und der Störstellenelektronen. In der zweiten Zeile sind Dichte-Dichte- und Austauschwechselwirkungen berücksichtigt. Die Terme in der dritten Zeile implementieren die Transfers von Elektronen zwischen Störstellen und Band sowie die Transfers zwischen den verschiedenen Störstellen.

Für die Mehrbanderweiterung von (2.2) des vereinfachten Hamiltonian (2.40) lautet dann die Einteilchen-Green-Funktion der Störstelle

$$\underline{\underline{G}}_\sigma^{MIAM}(z) = \left((z + \mu - \epsilon_f) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\Delta}}_\sigma(z) - \underline{\underline{\Sigma}}_\sigma(z) \right)^{-1} \quad (2.41)$$

mit der Anderson- oder Hybridisierungsfunktion für diagonale und nicht-diagonale Badprozesse

$$\Delta_{ij,\sigma}(z) = \sum_{\underline{k}} \frac{|V_{\underline{k}}|^2}{z + \mu - \epsilon_{\underline{k}\sigma}^c} \times \begin{cases} 1 & i = j \\ \cos(\underline{k} \cdot \underline{d}) & i \neq j \end{cases} . \quad (2.42)$$

Hier ist $\epsilon_{\underline{k}\sigma}^c$ die Einteilchendispersion für das Leitungsband, in welches die Störstellen eingebettet sind, und $\underline{d} = (d_x, d_y, d_z)$ definiert deren Abstand. Für Störstellenprobleme wird $V_{\underline{k}} = V$ typischerweise als konstant angenommen [Hewson93]. Für die Anderson-Funktion $\underline{\underline{\Delta}}_\sigma(z)$ ergibt sich der Imaginärteil, wie in Abbildung 2.4 für verschiedene Abstände dargestellt. Diese Imaginärteile wurden für verschiedene Gitterabstände von Torben Jabben [Jabben09] berechnet und mittels Kramers-Kronig-Relationen analytisch vervollständigt.

Das Verhalten einer einzelnen Störstelle im Gitter ist allgemein bekannt und wird umfassend in der einschlägigen Literatur behandelt. Gute Überblicke hierzu finden sich in [Hewson93, Fazekas99]. Ein prominenter Effekt ist hier die Ausbildung einer Resonanz im Einteilchenspektrum der Störstelle mit abnehmender Temperatur, die sogenannte Kondo- oder Abrikosov-Suhl-Resonanz. Diese ergibt sich aus einem Vielteilcheneffekt, dem Kondo-Effekt, und ist mit einer charakteristischen Temperaturskala T_K verknüpft. Charakterisieren lässt sich der Kondo-Effekt als Formation eines dynamischen Singulett des Störstellenelektrons mit den Bandelektronen des angeschlossenen Leitungsbands. Die Hybridisierung

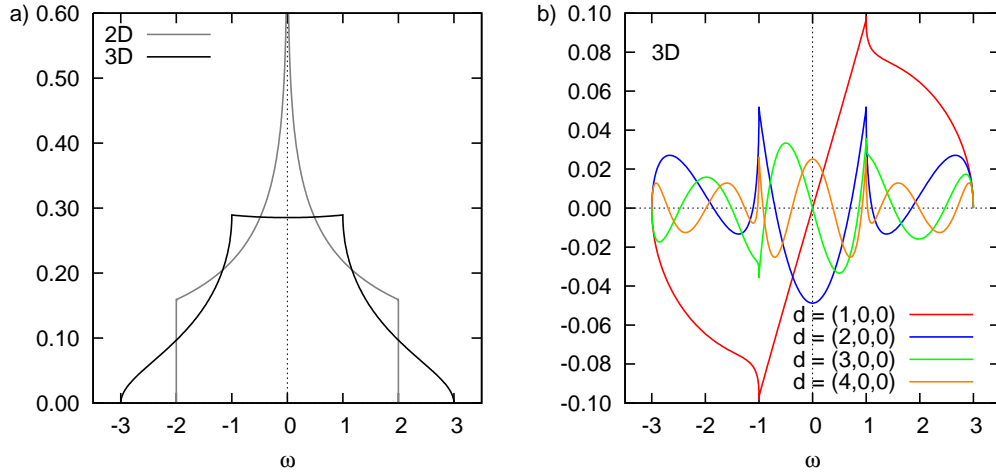


Abbildung 2.4: Anderson- oder Hybridisierungsfunktion für das Mehrstörstellenmodell. (a) zeigt den Imaginärteil der Diagonalen für ein zwei- und ein dreidimensionales einfach-kubisches Gitter mit Hybridisierungsamplitude $t = 0.50$. In (b) ist der Imaginärteil des Nichtdiagonalelements für ausgewählte Abstände \underline{d} der Störstellen im dreidimensionalen kubischen Gitter dargestellt. Der Realteil der Anderson-Funktion wird konsistent mit Hilfe der Kramers-Kronig-Relationen bestimmt.

der Störstelle mit dem Band induziert eine effektive, antiferromagnetische Kopplung. Die Bandelektronen bilden eine Abschirmwolke des lokalisierten Spins und kompensieren diesen zum Teil oder sogar völlig. Das Singulett selbst ist dynamisch, weil der beitragende Spin des Bandes durch die Überlagerung vieler delocalisierter Bandelektronen erzeugt wird. Diese Bandelektronen erzeugen die sogenannte Kondo-Wolke, welche von typischen Oszillationen der beitragenden Elektronenspins gezeichnet ist [Affleck08, Bergmann08, Borda07]. Bildlich gesprochen adaptieren die die Störstelle passierenden Elektronen ihren Spin und tragen so zum dynamischen Singulett bei. Dieses Vorstellung ist, streng genommen, nur gültig im Kondo-Regime ($U \rightarrow \infty$, $\epsilon_f = -U/2$), bei dem Ladungsfluktuationen an der Störstelle unterdrückt werden. Obwohl die in dieser Arbeit gewählten Parameter $U \sim W$ dem Kondo-Limit nicht nahe sind, spielen der Kondo-Effekt und die -Abschirmung eine wesentliche Rolle. So lässt sich die im Einteilchenspektrum sichtbare Resonanz (Abbildung 2.5, Inset) an der Fermi-Kante einer Spin-Flip-Anregung mit verschwindender Anregungsenergie für das dynamische Singulett zuordnen. Für Temperaturen oberhalb der Kondo-Temperatur $T \gg T_K$ zerstören die thermischen Anregungen das dynamische Singulett und unterdrücken die Kondo-Resonanz im Einteilchenspektrum (siehe Abbildung 2.5). Für $T \ll T_K$ lässt sich der physikalische Zustand als Fermi-Flüssigkeit, mit dem typischen Verhalten des Imaginärteils der Selbstenergie $\text{Im } \Sigma(\omega) \sim \omega^2$ ($\omega \ll 1$) charakterisieren. Für das Kondo-Problem sind logarithmische Abhängigkeiten von Temperatur T und Kondo-Temperatur T_K für physikalische Größen, wie elektrischer Widerstand, Magnetisierung etc., typisch. So gilt beispielsweise mit $|\ln(T/T_K)| \gg 1$ für den Störstellenwiderstand [Hewson93]

$$R_{\text{imp}} = R_0 \left\{ 1 - \frac{\pi^2 S(S+1)}{4(\ln(T/T_K))^2} + \frac{3(\pi^2 S(S+1))^2}{16(\ln(T/T_K))^4} + \dots \right\} \quad (2.43)$$

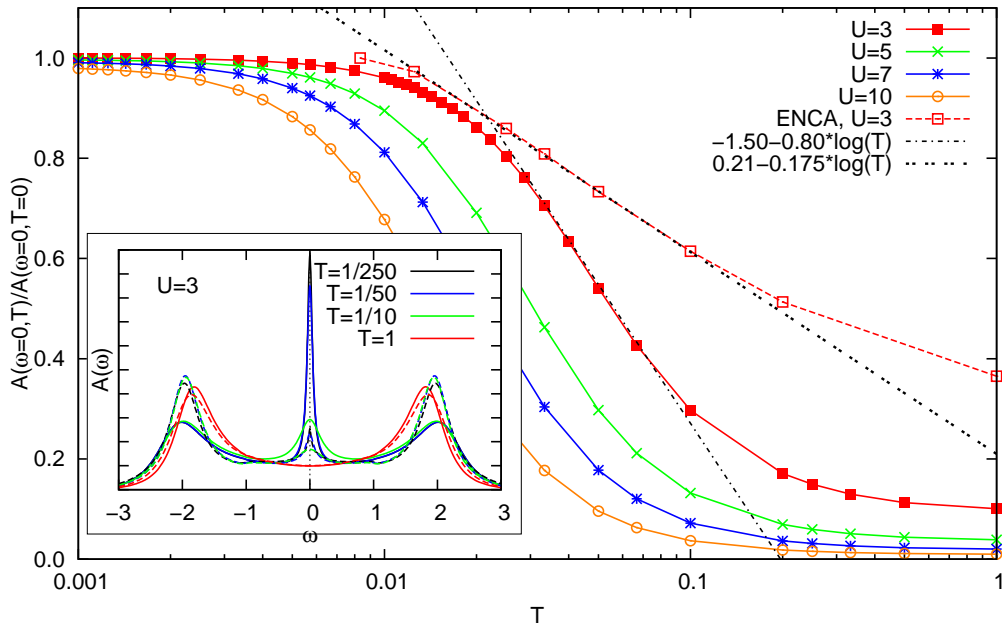


Abbildung 2.5: Spektraldichte an der Fermi-Kante für verschiedene Wechselwirkungen als Funktion der Temperatur für eine einzelne Störstelle im einfach-kubischen Gitter in 3D im Vergleich zu ihrem Sättigungswert bei $T \rightarrow 0$. Die gestrichelten Kurven entsprechen *Extended Non-Crossing Approximation*-Lösungen (ENCA, siehe auch Abschnitt A.6), die von Torben Jabben [Jabben09] zur Verfügung gestellt wurden. Bei mittleren Temperaturen sind die logarithmischen Abhängigkeiten des Kondo-Effekts als Geraden in der Darstellung zu erkennen; zum Vergleich ist ein logarithmischer Fit für die Kurve für $U = 3$ im betroffenen Bereich eingezeichnet. Mit zunehmender Wechselwirkung wird die Kondo-Temperatur abgesenkt. Die ENCA-Lösung führt zu einer von der Störungstheorie verschiedenen Kondo-Temperatur, sodass sich eine unterschiedliche Steigung für den logarithmischen Fit ergibt. Im Inset ist die komplette Spektralfunktion für verschiedene Temperaturen für $U = 3$ dargestellt.

oder für die spezifische Wärme

$$C_{\text{imp}} \sim \frac{\pi^2 k_B S(S+1)}{(\ln(T/T_K))^4} . \quad (2.44)$$

In Abbildung 2.5 ist der logarithmische Anstieg für die Zustandsdichte an der Fermi-Kante $A(\omega = 0)$ bis zum Sättigungswert für $0.007 \lesssim T \lesssim 0.1$ ($140 \gtrsim 1/T \gtrsim 10$) zu erkennen.

Nimmt man eine weitere Störstelle ins Gitter hinzu, ergeben sich qualitativ neue physikalische Möglichkeiten. Sofern die zwei Störstellen ausreichend weit voneinander entfernt sind, können sich im Kondo-Regime zwei unabhängige dynamische Singulettts zwischen Bandelektronen und den jeweiligen Störstellen ausbilden, die Störstellen sind faktisch unabhängig voneinander.

Rücken die Störstellen näher zueinander, können sich die jeweiligen Abschirmwolken gegenseitig beeinflussen und zu einer räumlich veränderlichen Verstärkung oder Abschwächung des Kondo-Effekts führen. Eine starke, direkte Austauschwechselwirkung ($|J| \gg T_K$) zwischen den Elektronen der Störstellen erzeugt (je nach Vorzeichen der Wechselwirkung) ein Singulett oder Triplett zwischen den lokalisierten Elektronen, wobei das Singulett in direkter Konkurrenz zum jeweiligen dynamischen Singulett der Störstellenelektronen mit den Bandelektronen steht.

Die Austauschkopplung kann hier durch verschiedene Mechanismen generiert werden. Zum einen kann sie zwischen den Störstellenelektronen durch eine direkte Austauschwechselwirkung J erzeugt werden, zum anderen kann sich eine solche durch einen Hybridisierungsprozess ergeben. Dieser kann ursächlich durch einen indirekten Hybridisierungsprozess $J \sim V_k^2/U > 0$ über das Band (mit zwischenliegender Propagation des Elektrons durch das Leitungsband) oder infolge eines direkten Hüpfens via t (via $J \sim t^2/U > 0$ auf Grund überlappender orbitaler Wellenfunktionen zwischen den Störstellen) erzeugt werden.

Verstanden werden kann diese Austauschkopplung auf Grund der Hybridisierung als virtueller Hüpfprozess des Elektrons zwischen beiden Störstellen. Der Energiegewinn liegt dann gerade in der Größenordnung $\sim t^2/U$. Der Übergang zwischen dem von der Störstellendynamik (Triplett und Singulett) und dem von der nicht-lokalen Banddynamik dominierten Bild (Kondo-Regime) tritt als quantenkritisches Phänomen auf [Jones87, Izumida00]. Besonders interessant ist hierbei der Fall $J > 0$, weil sich dann ein Singulett zwischen den Störstellenelektronen ausbildet, dessen Gesamtspin verschwindet ($S = 0$). Daher kann durch die Bandelektronen kein Spin abgeschirmt werden, der Kondo-Effekt bricht zusammen.

Mit der in der vorliegenden Arbeit verwendeten numerischen Lösung des Störstellenproblems (systematische Störungstheorie 2. Ordnung, siehe Abschnitt 2.1.1) lässt sich für größere Wechselwirkungsamplituden keine echte Austauschwechselwirkung J modellieren¹¹. Es können aber Ergebnisse für den effektiven Austausch auf Grund der direkten (über eine Hüpfamplitude t) und indirekten Hybridisierung (über das Band) zwischen den Orbitalen dargestellt werden. Damit unterscheidet sich die Untersuchung des MIAM wesentlich von der Untersuchung des SIAM.

Das MIAM wird in dieser Arbeit für zwei Störstellen in der paramagnetischen Phase für ein einfach-kubisches Gitter in zwei und drei Dimensionen untersucht. Das chemische Potential μ wird derart eingestellt, dass die Störstellen und das Leitungsband halbgefüllt

¹¹Der Grund hierfür liegt in der beschränkten Polstruktur der Störungstheorie 2. Ordnung.

sind. Die sich hieraus ergebenden Symmetrien führen dazu, dass die Resultate symmetrisch gegenüber einer Vertauschung der Spinquantenzahl wie auch einer Vertauschung der Störstellenquantenzahl sind. Folglich genügt es also, die Spektralfunktion nur einer Spinquantenzahl σ und nur einer Störstellen i zu betrachten, weil sich die jeweils anderen auf Grund der Symmetrien äquivalent ergeben. Sofern es möglich ist, wird daher im Folgenden auf die Indizierung von Spin und Störstelle verzichtet.

Die Störstellen werden auch in drei Dimensionen als in einer Gitterebene liegend angenommen ($d_z = 0$). Soweit nicht anders angegeben, wird die Temperatur mit $T = 1/100$ festgelegt, sodass das System im Kondo-Regime ist, wie es sich aus der Betrachtung im Folgenden ergibt. Für geradzahlige Abstände¹² der Störstellen $\|\underline{d}\|_1$ führt das Einstellen einer Austauschwechselwirkung $J \sim t^2/U$ zum Wegfall der Teilchen-Loch-Symmetrie in den Spektren, weil für geradzahlige Gitterabstände der direkte Transfer zwischen den zwei Störstellen die Bipartition des Gitters verletzt. Insofern wird die direkte Kopplung zwischen den zwei Störstellen in der vorliegenden Arbeit nur für einen Gitterabstand $\|\underline{d}\|_1 = 1$ betrachtet. In diesem Fall sind die Zustandsdichten teilchen-loch-symmetrisch.

2.2.1 Einfluss der Austauschwechselwirkung

In Abbildung 2.6 ist die lokale Zustandsdichte für verschiedene Hüpfamplituden bei einem Störstellenabstand $\|\underline{d}\|_1 = 1$ dargestellt. Mit zunehmendem $J \sim 4t^2/U$ öffnet sich an der Fermi-Kante eine gut identifizierbare Vertiefung, und die Kondo-Resonanz verschwindet. Das Singulett zwischen den Störstellenelektronen kann, weil es nur einen Gesamtspin $S = 0$ hat, nicht mehr durch Bandelektronen abgeschirmt werden. Folglich tritt kein Kondo-Effekt auf. Die Breite der Vertiefung ist von der Größenordnung der effektiven Austauschwechselwirkung. Als Funktion der effektiven Austauschwechselwirkung ist die Vertiefungsbreite, wie in den Zustandsdichten abzulesen, in Abbildung 2.6, Inset rechts, dargestellt. Für sehr kleine Wechselwirkungen ist die Vertiefungsbreite im Vergleich zu J überproportional groß. Dies lässt den Schluss zu, dass hier schon der effektive Austausch, der über das Gitter vermittelt wird, zu einem Singulett zwischen den Störstellenelektronen führt und eine Aufspaltung der Zustandsdichte an der Fermi-Kante verursachen kann. Erst für größere J dominiert der Austausch auf Grund des direkten Hüpfens und öffnet die Vertiefung (Inset recht, Abbildung 2.6). Um diese Singulett-Anregung besser zu charakterisieren, wird das Einteilchenspektrum (respektive die Zustandsdichte) mit der Spin-Flip-Suszeptibilität in Abbildung 2.7 verglichen. Die Suszeptibilität lässt sich als Funktion des Teilchen-Loch-Propagators $\pi(\omega)$ und der Vertexfunktion $\Gamma(\omega)$ formulieren [Fetter71, Mattuck76, Schmitt08]

$$\begin{aligned} \chi(\omega) &= -\frac{1}{1/\pi(\omega) + \Gamma(\omega)} \\ &\stackrel{\text{RPA}}{\approx} -\frac{1}{1/\pi(\omega) + U} \equiv \chi_{\text{RPA}}(\omega) \quad . \end{aligned} \quad (2.45)$$

Wählt man für den Teilchen-Loch-Propagator

$$\pi(\omega) = \int d\nu f_\beta(\nu) \left[\rho_{1\sigma,2\sigma}(\nu) G_{1\bar{\sigma},2\bar{\sigma}}(\nu + \omega + i\delta) + \rho_{1\bar{\sigma},2\bar{\sigma}}(\nu) G_{1\sigma,2\sigma}(\nu - \omega - i\delta) \right] \quad (2.46)$$

¹²Manhattan-Metrik : $\|\underline{d}\|_1 \equiv \sum_i |d_i|$

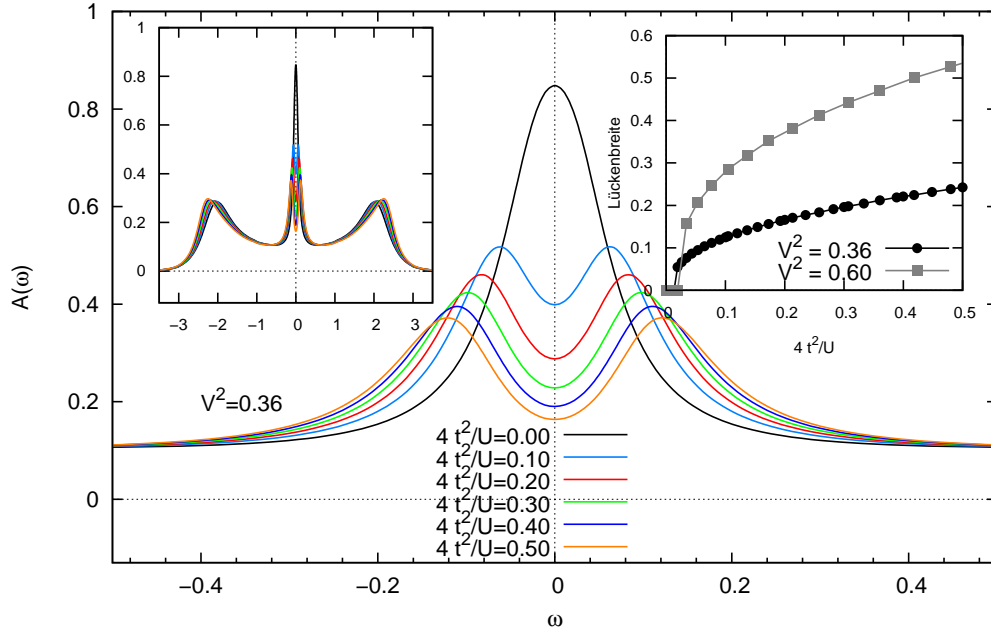


Abbildung 2.6: Zustandsdichte für verschiedene Austauschwechselwirkungen $J \sim 4t^2/U$ im Bereich der Fermi-Kante in drei Dimensionen bei $U = W = 3$ und $|V_{\mathbf{k}}|^2 = 0.36$ bei einem Störstellenabstand $\|\underline{d}\|_1 = 1$. Im Inset links ist die Zustandsdichte im kompletten Energiebereich dargestellt. Die Breite der Vertiefung als Funktion der Austauschwechselwirkung ist im Inset rechts dargestellt, für zwei verschiedene Hybridisierungsamplituden $V_{\mathbf{k}}^2 = V^2$ an das Band. Schon für sehr kleine $J \sim 4t^2/U$ geht die Vertiefung deutlich auf.

mit den Einteilchen-Green-Funktionen $G_{1\bar{\sigma},2\bar{\sigma}}$, $G_{1\sigma,2\sigma}$ sowie den Spektralfunktionen $\rho_{1\sigma,2\sigma}$, $\rho_{1\bar{\sigma},2\bar{\sigma}}$, so ist $\chi_{\text{RPA}}(\omega)$ eine Näherung für die Spin-Flip-Suszeptibilität. Die RPA nähert den dynamischen Vertex $\Gamma(\omega)$ durch die nackte Wechselwirkung U an und bezieht so die wechselseitige elektronische Abschirmung ein. In Abbildung 2.7 wird deutlich, dass der Energieabstand der Einteilchenresonanzen in der Zustandsdichte gerade den Anregungsresonanzen für eine Spin-Flip-Anregung entspricht. Man beachte, dass die Frequenz für die Suszeptibilität reskaliert wird, weil die Anregungsfrequenz gerade dem Energieunterschied der zwei Einteilchenresonanzen in der Zustandsdichte entsprechen muss. Die Positionen der Spin-Flip-Anregungen stimmen mit der Resonanz in der Zustandsdichte überein, wobei es zu leichten Verschiebungen kommt, die mit zunehmender Wechselwirkung abnehmen. Weil das Singulett der Störstellenelektronen mit zunehmendem J stabilisiert wird, nimmt die Höhe der Resonanz in der Spin-Flip-Suszeptibilität mit zunehmendem J zu.

Damit liefert die RPA-Näherung der Spin-Flip-Suszeptibilität einen glaubwürdigen Hinweis auf den Charakter der Anregung, wie sie durch Separation der Kondo-Resonanz im Einteilchenspektrum sichtbar wird, und ist im Einklang mit dem eingangs vorgestellten Bild des Singuletts zwischen den Störstellenelektronen.

Um das Singulett präziser zu charakterisieren und vom Triplet ($S = 1$, $m = 0$) zu differenzieren, ist es sinnvoll, den Gesamtspin der zwei Störstellen zu bestimmen. Dieser

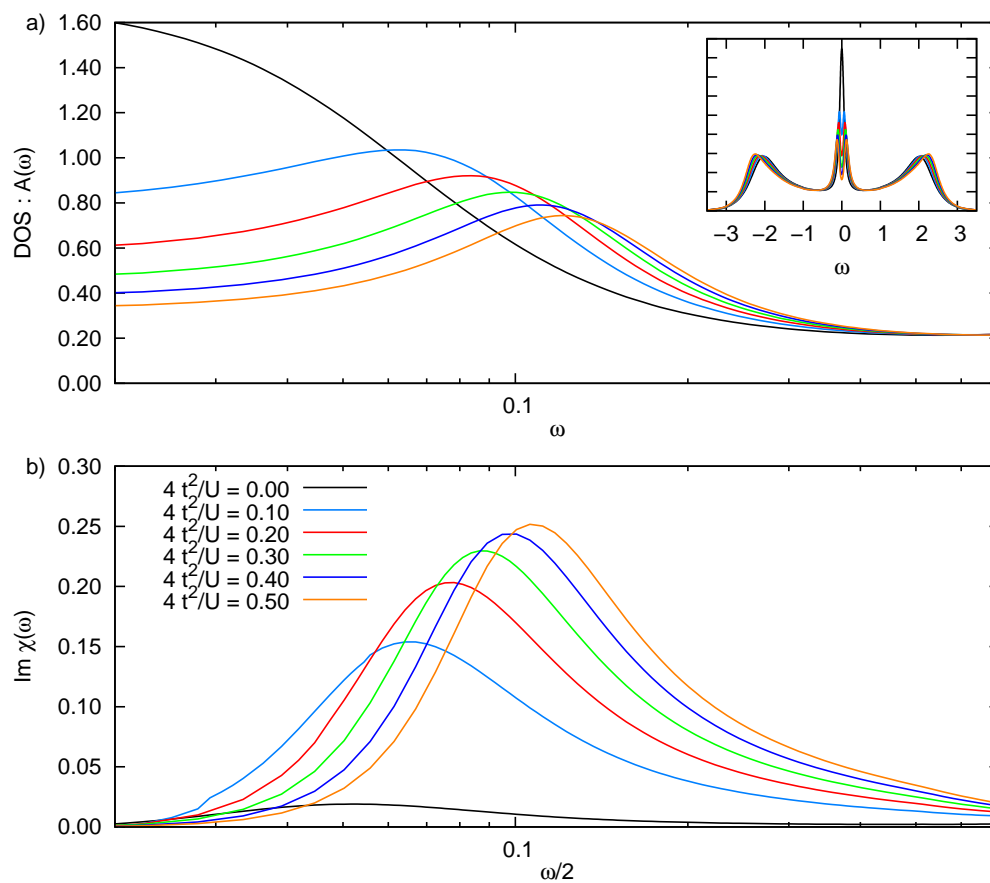


Abbildung 2.7: Vergleich der Anregung in der Einteilchenzustandsdichte (a) mit den Resonanzen der Spin-Flip-Suszeptibilität (b) (Gln. 2.45, 2.46). Die x -Achse der Suszeptibilität wird reskaliert, weil der Abstand der Einteilchenresonanzen in der Zustandsdichte gerade gleich dem doppelten Abstand der Resonanz zur Fermi-Kante ist. Diese Energiedifferenz entspricht der Anregungsenergie des Spin-Flips.

ergibt sich zu

$$\hat{\underline{S}}^2 = (\hat{\underline{S}}_1 + \hat{\underline{S}}_2)^2 = \hat{\underline{S}}_1^2 + \hat{\underline{S}}_2^2 + 2\hat{\underline{S}}_1\hat{\underline{S}}_2 \quad . \quad (2.47)$$

Mit $\hat{\underline{c}}_i = (\hat{c}_{i,\uparrow}, \hat{c}_{i,\downarrow})$, $\hat{\underline{c}}_i^\dagger = (\hat{c}_{i,\uparrow}^\dagger, \hat{c}_{i,\downarrow}^\dagger)$ (Störstellenindex i) und den Pauli-Matrizen $\underline{\sigma}_1, \underline{\sigma}_2, \underline{\sigma}_3$ ist

$$\begin{aligned} \hat{\underline{S}}_i \cdot \hat{\underline{S}}_j &= \frac{1}{4} \sum_k \left(\hat{\underline{c}}_i^\dagger \underline{\sigma}_k \hat{\underline{c}}_i \right) \left(\hat{\underline{c}}_j^\dagger \underline{\sigma}_k \hat{\underline{c}}_j \right) \\ &= \sum_\sigma \left(-\frac{1}{2} \hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma} \hat{c}_{j\bar{\sigma}}^\dagger \hat{c}_{i\bar{\sigma}} + \frac{1}{4} \hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{i\sigma} \hat{c}_{j\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma} - \frac{1}{4} \hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{i\sigma} \hat{c}_{j\bar{\sigma}}^\dagger \hat{c}_{j\bar{\sigma}} \right) \quad . \quad (2.48) \end{aligned}$$

Wie schon erläutert, können im Rahmen der Störstellenlösung Zweiteilchengrößen nur approximativ auf der Basis von Einteilchengrößen bestimmt werden. Daher werden die Erwartungswerte $\langle \hat{\underline{S}}_1^2 \rangle$, $\langle \hat{\underline{S}}_2^2 \rangle$ und $\langle \hat{\underline{S}}_1 \hat{\underline{S}}_2 \rangle$ als Erwartungswerte der genäherten Zweiteilchengrößen (Teilchen-Loch-Propagatoren der Art (2.46)) bestimmt

$$\langle \hat{\underline{S}}_1^2 + \hat{\underline{S}}_2^2 + 2\hat{\underline{S}}_1\hat{\underline{S}}_2 \rangle \approx \int d\omega b_\beta(\omega) \left[-\frac{1}{2}\pi_{11}(\omega) - \frac{1}{2}\pi_{22}(\omega) - \pi_{12}(\omega) \right] \equiv \tilde{S}^2 \quad (2.49)$$

mit der Bose-Funktion $b_\beta(\omega)$. In Abbildung 2.8 ist die Näherung \tilde{S}^2 als Funktion der Austauschwechselwirkung $J \sim 4t^2/U$ für zwei Störstellen mit Gitterabstand $d = 1$ dargestellt. Im Vergleich dazu ist der Gesamtspin $\langle \hat{\underline{S}}^2 \rangle$ als Funktion einer echten Austauschwechselwirkung J für eine entsprechende ENCA-Rechnung¹³ eingezeichnet. Mit zunehmender Wechselwirkung wird der Gesamtspin der zwei Störstellen kleiner, das zeigen beide Rechnungen übereinstimmend. Quantitativ sind jedoch starke Unterschiede auszumachen: Schon für $J \sim 0.5$ zeigt die ENCA-Rechnung einen nur noch kleinen Gesamtspin $\langle \hat{\underline{S}}^2 \rangle|_{J=0.5} \sim 0.2$, der schon nahe am Spin des reinen Singulets $\langle \hat{\underline{S}}^2 \rangle = 0.0$ ist. Die Näherung \tilde{S}^2 ist davon weit entfernt und liefert einen relativ großen Wert. Ursächlich für die Diskrepanz dürfte die Qualität der Näherung des Zweiteilchenerwartungswertes mit Hilfe der Suszeptibilität sein, im Besonderen angesichts der ordentlichen Übereinstimmung bei den Zustandsdichten (Abb. 2.5).

2.2.2 Einfluss der räumlichen Anordnung der Störstellen

Für beliebige Gitterabstände $\|d\|_1 \neq 1$ bietet es sich an, die Ergebnisse des Zweistörstellenproblems mit denen des bekannten Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida- (RKKY)-Modells [Ruderman54] zu vergleichen. Wie bereits diskutiert, wird dazu das Zweistörstellenproblem dann für $J = U' = t = 0$ ausgewertet, d.h. neben der Gitterstruktur wird nur die Wechselwirkung U zwischen zwei Elektronen an derselben Störstelle berücksichtigt. Im Fall des RKKY-Modells werden stark lokalisierte f -Elektronen durch lokalisierte Spins in einem Gitter modelliert, die das umgebende Medium polarisieren. Das Medium vermittelt nun eine effektive Spin-Wechselwirkung zwischen zwei verschiedenen f -Spins. Die Ergebnisse des MIAM lassen sich nun mit denen für das RKKY-Modell vergleichen, weil die

¹³ENCA \equiv *Extended Non-Crossing Approximation* [Pruschke88, Keiter90], siehe auch Abschnitt A.6. Die Daten für die ENCA-Rechnung wurden von Torben Jabben [Jabben09] zur Verfügung gestellt.

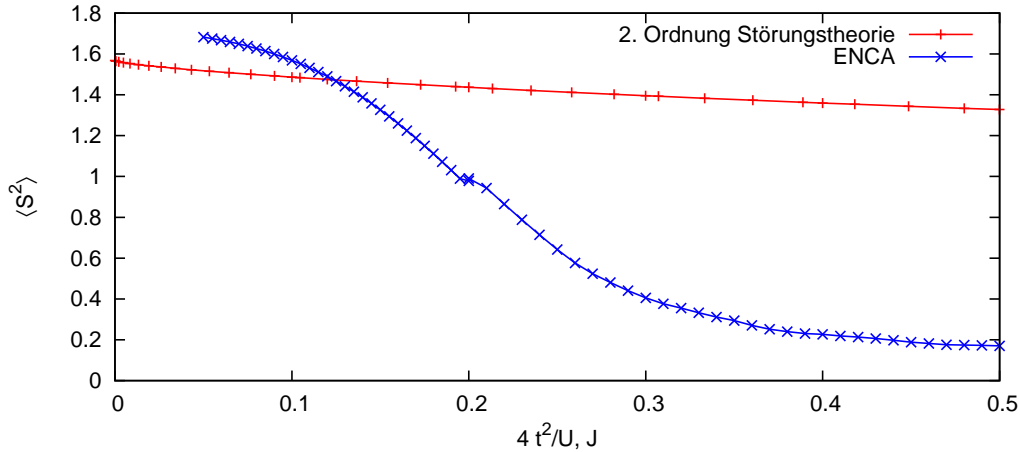


Abbildung 2.8: Gesamtspin der zwei Störstellen in der Näherung durch eine Einteilchenbeschreibung (2. Ordnung Störungstheorie, siehe Text) und durch eine ENCA [Jabben09]. Beide Resultate zeigen eine Abnahme des Störstellen-Gesamtspins mit zunehmender Austauschwechselwirkung. Dies stützt die These, dass es sich bei dem Teilchen um ein Singulett handelt. Die Diskrepanzen sind auf die Näherung der Einteilchenbeschreibung (2. Ordnung Störungstheorie) zurückzuführen. Details siehe Text.

Elektronen zumindest zeitweise an den Störstellen lokalisieren und dann wie lokalisierte Spins agieren. Für das RKKY-Modell lässt sich ein effektiver Hamiltonian mit einer abstandsabhängigen, indirekten Austauschwechselwirkung formulieren

$$\hat{H}_{RKKY} = \sum_{\underline{k}, \sigma} \epsilon_{\underline{k}} \hat{n}_{\underline{k}\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \mathcal{I}(\underline{R}_i - \underline{R}_j) \hat{S}_i \cdot \hat{S}_j \quad (2.50)$$

mit der bekannten RKKY-Wechselwirkung [Ruderman54, Fazekas99]

$$\mathcal{I}(\underline{R}_i - \underline{R}_j) = - \left(\frac{J_{RKKY}}{L} \right)^2 \sum_{\underline{k}, \underline{k}'} \cos \left((\underline{k} - \underline{k}') \cdot (\underline{R}_i - \underline{R}_j) \right) \frac{f_{\beta}(\epsilon_{\underline{k}}) - f_{\beta}(\epsilon_{\underline{k}'})}{\epsilon_{\underline{k}} - \epsilon_{\underline{k}'}} \quad (2.51)$$

Hier ist $J_{RKKY} \sim V^2/U$ die Austauschkopplung und f_{β} die Fermi-Funktion. Für freie Elektronen $\epsilon_{\underline{k}} = \hbar^2 \underline{k}^2 / 2m$ lässt sich (2.51) analytisch auswerten. Man erhält [Ruderman54]

$$\mathcal{I}'(\underline{R}_i - \underline{R}_j) \propto - \frac{\sin(2k_F R) - 2k_F R \cos(2k_F R)}{(2k_F R)^4} \quad (2.52)$$

mit dem Betrag des Fermi-Vektors k_F und dem Abstand der zwei Spins $R = \left\| \underline{R}_i - \underline{R}_j \right\|_2$. Die RKKY-Wechselwirkung fällt asymptotisch mit dem Abstand $1/R^3$ ab.

Der Vergleich der RKKY-Lösung mit dem Ergebnis für das Zweistörstellenproblem ist in Abbildung 2.9 dargestellt. In 2.9a ist der Absolutbetrag der der RKKY-Wechselwirkung (2.52) für verschiedene Füllungen (angegeben ist der Fermi-Vektor k_F) mit isotroper Dispersion als Funktion des ganzzahligen Abstands, der zwei lokalisierten Spins dargestellt.

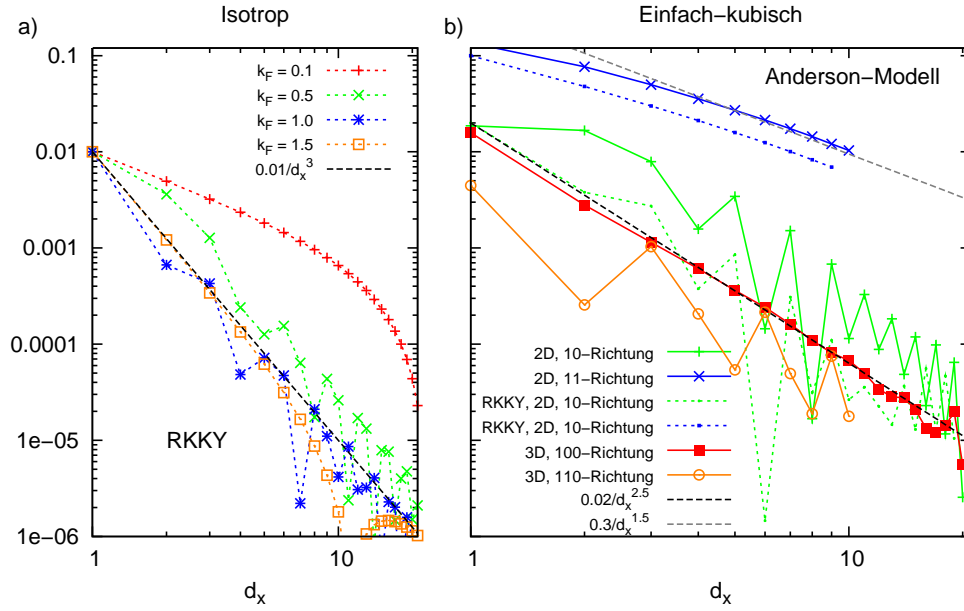


Abbildung 2.9: Charakteristischer Abfall der statischen Suszeptibilität $\chi_{RPA}(\omega = 0)$ im Vergleich zum Abfall der RKKY-Wechselwirkung. In (a) sind die analytischen Ergebnisse für eine isotrope, quadratische Dispersion des RKKY-Modells dargestellt, in (b) die numerisch bestimmten Daten für das Anderson-Modell (statische Suszeptibilität) und die RKKY-Wechselwirkung. Details siehe Text.

Die Amplituden sind so reskaliert, dass für alle Füllungen bei $d_x = 1$ der gleiche Wert steht, um die Ergebnisse besser vergleichen zu können. Aus den Faktoren k_F ergibt sich eine deutliche Abhängigkeit der Amplitude von der Füllung. Der charakteristische Abfall ist für größere Teilchendichten schon im Nahbereich gut erkennbar (im Vergleich zu $0.01/d_x^3$). Ein direkter Vergleich zur Lösung des Anderson-Modells ist aber wegen der verschiedenen Dispersion nicht möglich.

Lediglich für das zweidimensionale einfach-kubische Gitter wird die RKKY-Wechselwirkung numerisch bestimmt, um eine Vergleichsmöglichkeit zum Anderson-Modell zu haben.¹⁴ Die Korrelation zwischen den lokalisierten Elektronen (und damit ihren Spins) lässt sich im Anderson-Modell mit der Spin-Flip-Suszeptibilität (2.45) belegen. Deren Verhalten, im Besonderen die Abstandsabhängigkeit, kann man durch den statischen Anteil der Spin-Flip-Suszeptibilität charakterisieren. Deshalb wird die RKKY-Wechselwirkung (2.51) mit dem statischen Anteil der Spin-Flip-Suszeptibilität (2.45)

$$\chi_0 = \chi_{RPA}(\omega = 0) = \frac{-1}{1/\text{Re } \pi(\omega = 0) + U} \quad (2.53)$$

verglichen. Dieser ist ein Maß für die durch die Austauschkopplung vermittelten Korrelationen.

Um zwei und drei Dimensionen adäquat zu vergleichen, werden die Parameter für das Störstellenmodell reskaliert. So ist für zwei (drei) Dimensionen die Bandbreite des Bandes

¹⁴Dies geschieht hier nur für das zweidimensionale, einfach-kubische Gitter, weil die Integration in (2.51) numerisch schwierig ist.

$W = 2$ ($W = 3$), die *on-site*-Wechselwirkung $U = 2$ ($U = 3$) und die Hybridisierungsamplitude an das Band $V^2/W = 0.12$. Die Temperatur wird nicht reskaliert, ist mit $T = 1/100$ aber niedrig, und damit ist das System im Kondo-Regime.

In Abbildung 2.9 sind RKKY-Wechselwirkung und statische Suszeptibilität für das Anderson-Modell für verschiedene Dimensionen und Richtungen dargestellt. Bemerkenswert ist zunächst, dass im Nahbereich ($\|\underline{d}\|_1 \lesssim 20$) für die Koordinatenrichtung 10 (100) in zwei (drei) Dimensionen ein vom isotropen Fall leicht verschiedener Exponent für den charakteristischen Abfall ermittelt wird. Sowohl die Suszeptibilität als auch die RKKY-Lösung fallen schwächer, d.h. mit $0.01/d_x^{2.5}$, ab. Genau derselbe Exponent lässt sich auch für die xy -Diagonale in drei Dimensionen ermitteln (110-Richtung), weicht aber für die xy -Diagonale in zwei Dimensionen stark ab (~ 1.5). Im Vergleich der Störstellenlösung (durchgezogene Linien) mit der RKKY-Lösung (gestrichelte Linien) wird deutlich, dass der charakteristische Exponent im Nahbereich für die verschiedenen Richtungen kein genuiner Effekt des Anderson-Modells ist, sondern ein gittertypisches Ergebnis, welches auch schon in der RKKY-Lösung erkennbar ist.

Für beide Modelle ergibt sich in zwei Dimensionen eine klare Anisotropie in der Korrelationslänge: Zwei Störstellen entlang der Diagonalen sind stärker gekoppelt als zwei entlang einer Koordinatenrichtung für den Nahbereich. Die Kopplungsstärke der zwei Störstellen fällt zwar mit einem Potenzgesetz ab, ist allerdings stark richtungsabhängig. So koppeln die auf einer Gitterdiagonalen des 3D-Gitters platzierten Störstellen für einen Gitterabstand $d = (3, 3)$, $d = (6, 6)$ und $d = (9, 9)$ mit einer vergleichbaren Stärke wie zwei Störstellen, die entlang einer Koordinatenrichtung platziert sind, mit dem Abstand $d = (3, 0)$, $d = (6, 0)$ und $d = (9, 0)$ (rot- und orange-farbene Kurve). Die Kopplungsstärke wird hier von einem quantenmechanischen Interferenzeffekt der Spinwellen dominiert. Für das 2D-Gitter ist diese richtungsabhängige Kopplungsstärke noch deutlicher, wenn man den Absolutwert der Suszeptibilität für verschiedene Abstände in der 11-Richtung mit der der 10-Richtung vergleicht. An dieser Stelle sei aber erinnert, dass die Suszeptibilität (2.45) nur eine Näherung der tatsächlichen Suszeptibilität ist und daher quantitative Vergleiche problematisch sind.

Trotzdem ist die hier genähert bestimmte Suszeptibilität in guter Übereinstimmung mit anderen für das Anderson-Problem typischen Observablen: In Abbildung 2.10 sind die in Abb. 2.9 entlang verschiedener Richtungen geplotteten Beträge der statischen Suszeptibilitäten (2.53) im Ortsraum farbkodiert und für zwei und drei Dimensionen in (dekadischer) logarithmischer Darstellung aufgeschlüsselt (Abb. 2.10a,c). Zum Vergleich ist jeweils daneben die Änderung der Zustandsdichte (Gl. 2.54, siehe unten) an der Fermi-Kante dargestellt (Abb. 2.10b,d). Wie auch im RKKY-Modell führt die Kopplung der Störstellen über das umgebende Medium zu Oszillationen in der Wechselwirkung. Die Spinabschirmungen der einzelnen Störstellen interferieren und führen an der Störstelle selbst zu einer Verstärkung oder Abschwächung des Kondo-Effektes, verglichen mit der einzelnen Störstelle. Letzterer ist dem Fall $\|\underline{d}\|_1 \rightarrow \infty$ äquivalent. Weil die Kondo-Resonanz in der Zustandsdichte Ausdruck des Kondo-Effektes ist und mit ihm entsteht, ist ihre Änderung ein direktes Maß für die Kopplung der Störstellen. Daher wird in Abbildungen 2.10b,d die Zustandsdichte an der Fermi-Kante im Vergleich zu ihrem Wert für $\|\underline{d}\|_1 \rightarrow \infty$ dargestellt

$$\Delta A_0 = A(\omega = 0, \underline{d}) - A(\omega = 0, \|\underline{d}\|_1 \rightarrow \infty) \quad . \quad (2.54)$$

Im Inset der Abbildungen ist jeweils das Vorzeichen der Observablen kodiert. Hieraus folgt sofort, dass die Wellenlänge der ferromagnetisch- respektive antiferromagnetischen

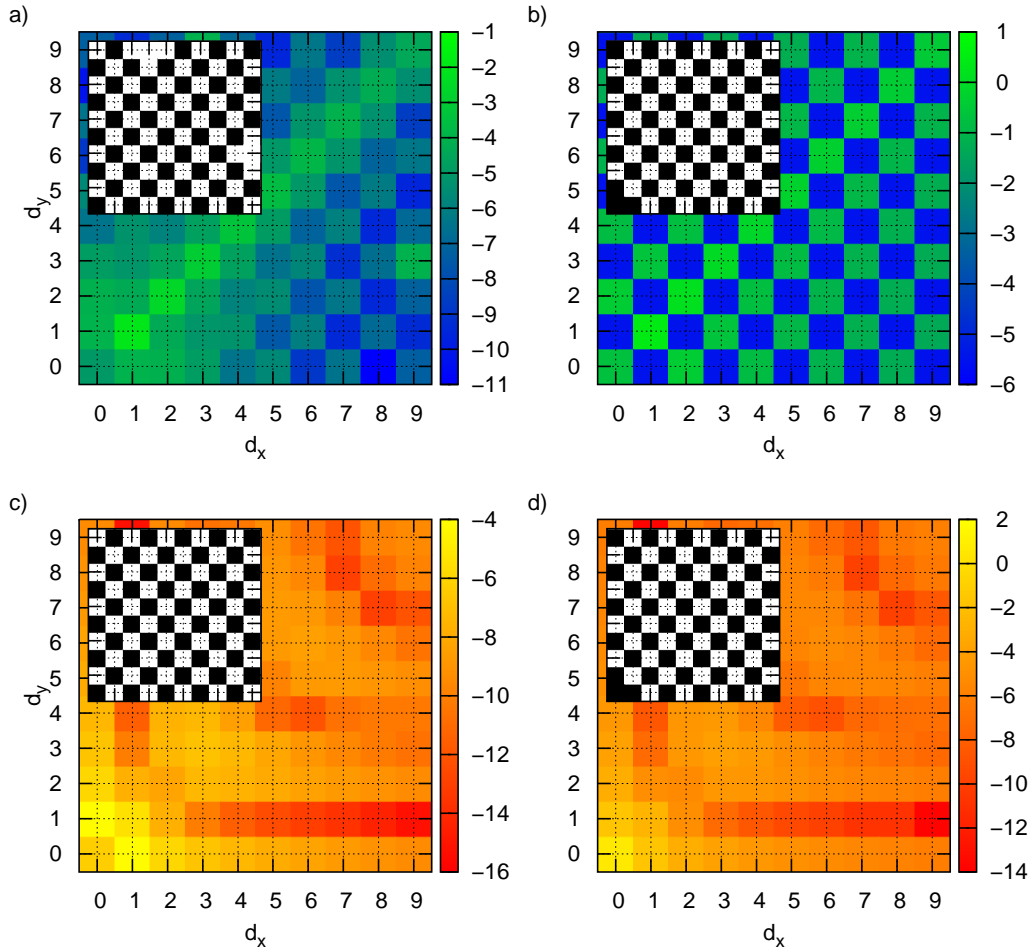


Abbildung 2.10: Vergleich der Beträge der statischen Spin-Flip-Suszeptibilität χ_0 (Gl. 2.53, Abb. (a, c)) mit der Änderung der Zustandsdichte an der Fermi-Kante ΔA_0 (Gl. (2.54), Abb. (b, d)) abhängig von der relativen Position der Störstellen zueinander für zwei (a, b) und drei (c, d) Dimensionen. Im Besonderen ist man am Potenzverhalten der Größen interessiert, sodass der Logarithmus dargestellt wird und die Skala am Rand gerade dem dekadischen Logarithmus der Gln. (2.53) und (2.54) entspricht. Für zwei (drei) Dimensionen ist die Bandbreite des Bades $W = 2$ ($W = 3$), die *on-site*-Wechselwirkung $U = 2$ ($U = 3$) und die Hybridisierungsamplitude an das Bad $V^2/W = 0.12$. Im Inset ist jeweils das Vorzeichen von χ_0 respektive ΔA_0 kodiert, weil es wegen der Betragsbildung unkenntlich ist (weiß entspricht einem positiven Vorzeichen). Die detaillierte Diskussion findet sich im Text.

Kopplung bei der gewählten Halbfüllung gerade zwei Einheitszellen im kubischen Gitter entspricht. Für drei Dimensionen (Abb. 2.10c,d) bildet sich für Suszeptibilität und Zustandsdichte die gleiche Struktur aus. Bemerkenswert ist, dass für die Linien $d_y = 1$ (respektive $d_x = 1$) auch schon bei sehr kleinen Gesamtabständen $\|\underline{d}\|_1 \sim 10$ die Störstellen einander nicht beeinflussen. Die Suszeptibilität verschwindet hier nahezu ($|\chi_0| \sim 10^{-16}$), die Höhe der Kondo-Resonanz ist bis auf $|\Delta A_0| \sim 10^{-16}$ gleich der einer einzelnen Störstelle im Leitungsband. In diesem Sinn lassen sich zwei Störstellen im Gitter so positionieren, dass sie sich trotz ihrer örtlichen Nähe gegenseitig faktisch nicht beeinflussen. Genau dieses Verhalten tritt in zwei Dimensionen noch viel deutlicher zu Tage: Es ergeben sich schon im Nahbereich ($d_x \lesssim 10$, $d_y \lesssim 10$) sehr viele Stellen, die schachbrettartig angeordnet sind, an welcher die statische Suszeptibilität nahezu verschwindet ($|\chi_0| \sim 10^{-11}$) und die Kondo-Resonanz in ihrer Höhe von der zweiten Störstelle nahezu unbeeinflusst bleibt $|\Delta A_0| \sim 10^{-6}$. Für die diagonalen Abstände ($d_x = d_y$) ist jedoch eine deutliche gegenseitige Beeinflussung der Störstellen erkennbar. Die Suszeptibilität fällt in 11-Richtung nur schwach ab (siehe auch Abb. 2.9b), die Kondo-Resonanz erfährt eine deutliche Änderung gegenüber dem einfachen Störstellenproblem $|\Delta A_0| \sim 10^0$. Die Ursache hierfür ist die Interferenz der Spinabschirmungen der zwei Störstellen.

2.2.3 Das Mehrstörstellen-Anderson-Modell im Überblick

Dieser Abschnitt beinhaltet die Untersuchung des Mehrstörstellen-Anderson-Modells für zwei Störstellen in einem einfach-kubischen Gitter in zwei und drei Dimensionen. Die Ergebnisse werden einerseits mit denen einer ENCA-Lösung sowie andererseits mit Resultaten für ein einfaches, effektives RKKY-Modell verglichen und auch bestätigt. Die Suszeptibilitäten und auch die Spektralfunktionen liefern ein kohärentes Bild der physikalischen Situation. Diese findet sich zwischen den zwei Grenzfällen, dem *Single Impurity Anderson-Modell* für weit voneinander entfernte und ungekoppelte Störstellen, und dem atomaren Grenzfall zweier vom Band abgekoppelter Orbitale.

Für den ersten Grenzfall bildet sich an jeder der Störstellen ein separater Kondo-Effekt aus, der durch ein dynamisches Singulett des Störstellenelektrons mit den Bandelektronen gekennzeichnet ist. Der lokalisierte Elektronenspin wird dadurch abgeschirmt und induziert Spinwellen im angeschlossenen Band. In der Einteilchenspektralfunktion führt das zur Kondo-Resonanz an der Fermi-Kante.

Entgegengesetzt dazu findet sich der zweite Grenzfall des Zweistörstellenproblems, bei der eine zwischen den Orbitalen der Störstellen agierende Austauschwechselwirkung ein Singulett zwischen den zwei Störstellenelektronen erzeugt. Besonders interessant ist hierbei das Auftreten einer Vertiefung in der Einteilchenzustandsdichte an der Fermi-Kante, einem sogenannten Pseudo-Gap [Loram93], wie es für den ungeschirmten Singulettfall aus der Literatur bekannt ist [Leo04]. Die Spinsuszeptibilität stützt dieses Bild, weil sie eine Resonanz bei der Anregungsenergie des Singuletts zeigt.

Neben der Untersuchung der Störstellen-Dynamik werden in diesem Abschnitt auch die Einflüsse des Gitters untersucht, indem der Abstand der zwei Störstellen variiert wird. Die Verschiebung der Störstellen relativ zueinander führt zu räumlich auflösbaren Korrelationseffekten, die stark richtungsabhängig sind. Bemerkenswert ist hier die längerreichweitige Wechselwirkung der Störstellen für den zweidimensionalen Fall in der Diagonalrichtung. Es sind diese Art von nicht-lokalen Korrelationen, die in einem allgemeinen Gittermodell wie zum Beispiel dem Hubbard-Modell zu einer impulsabhängigen Selbstenergie führen.

Die Spin-Flip-Suszeptibilität, die hier mit Hilfe der Teilchen-Loch-Blase der Einteilchen-propagatoren ermittelt wird und ebenso die Struktur der Kondo-Resonanz (siehe Abschnitt 2.2.1, im Besonderen Abb. 2.7) stellen ein Maß für die nicht-lokalen Korrelationen zwischen den zwei Störstellen dar.

Man kann erwarten, dass das Pseudo-Gap, wie es für einen ausgewählten Abstand zwischen den Störstellen nachgewiesen wurde, ähnlich stark vom Abstandsvektor abhängt wie die Korrelationen der Störstellenelektronen. Eine Untersuchung der Austauschwechselwirkung für größere Abstände $\|\underline{d}\|_1 > 1$ kann, wie oben dargelegt, mit dem verwendeten Störstellenlöser nicht adäquat stattfinden.

Dennoch wird nachvollziehbar, dass sich dieses Verhalten bei der Betrachtung eines Gittermodells übertragen lässt; ganz wie sich viele Eigenschaften des SIAM mit Hilfe der DMFT auf das Hubbard-Modell übertragen lassen. Die Untersuchung von Gittermodellen unter Berücksichtigung nicht-lokaler Korrelationen führt schon für sehr einfache Modelle zu einer k -Abhängigkeit des Pseudo-Gaps [Ferrero09].

Es wird spekuliert, ob das Pseudo-Gap im Rahmen von Gittermodellen als möglicher Vorläufer einer Hochtemperatursupraleitungsphase identifiziert werden kann [Schiró08]. Man geht davon aus, dass dies mit der Existenz vorgeformter Cooper-Paare verknüpft ist, die aber noch keine globale Phase aufweisen. Bei optimaler Dotierung geht die Pseudo-Gap-Phase mit sinkender Temperatur unterhalb der Sprungtemperatur in die Supraleitungsphase über. Dieses Szenario wird durch eine starke, diamagnetische Suszeptibilität oberhalb der Sprungtemperatur in Experimenten bestätigt. In diesem Sinne könnte das Pseudo-Gap-Verhalten im MIAM ein Vorläufer für die symmetriegebrochene Phase bei niedriger Temperatur sein [Ferrero07].

3 Das Hubbard-Modell

Das Hubbard-Modell stellt ein minimales Modell zur Beschreibung korrelierter Elektronen auf einem Gitter dar. Es enthält die kinetischen Energien der Elektronen wie auch den lokalen Anteil der Coulomb-Wechselwirkung. Mit diesen Voraussetzungen stellt es das Minimalmodell für den Mott-Phasenübergang (oder kurz Mott-Übergang) dar, bei dem Beweglichkeit und Lokalisierung der Elektronen im Wettbewerb stehen. Mit zunehmender Wechselwirkung lokalisieren die Elektronen stärker, und das System geht vom Metall zum Isolator über.

Das vereinfachte elektronische Problem (1.2), welches die ionischen Freiheitsgrade und Elektronen innerer Schalen ausintegriert, stellt den Ausgangspunkt für das Mehrband-Hubbard-Modell dar. Entwickelt man die Feldoperatoren in einer um die Gitterpositionen m stark lokalisierten und orthogonalen Wannier-Basis

$$\hat{\psi}_\sigma^\dagger(\underline{r}) = \sum_{i,m} \hat{c}_{im\sigma}^\dagger f_{im}^*(\underline{r}) \quad , \quad \hat{\psi}_\sigma(\underline{r}) = \sum_{i,m} \hat{c}_{im\sigma} f_{im}(\underline{r}) \quad (3.1)$$

mit Gitterplatzindex i , orbitaler Quantenzahl m und Spinquantenzahl σ , lässt sich für ein einzelnes Valenzorbital ($m = 1$) an den Gitterplätzen das Einband-Hubbard-Modell ableiten

$$\hat{H}_{\text{Hubbard}} = -t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} \left(\hat{c}_{i\sigma}^\dagger \hat{c}_{j\sigma} + \text{h.c.} \right) + U \sum_i \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow} \quad , \quad (3.2)$$

sofern man eine perfekte Abschirmung der elektronischen Wechselwirkung zwischen verschiedenen Gitterplätzen annimmt und das Hüpfen nur nächste Nachbarn isotrop verknüpft.¹ In (3.2) parametrisiert t den direkten Nächste-Nachbar-Transfer und U die Coulomb-Wechselwirkung zwischen zwei Elektronen auf demselben Gitterplatz. Die Valenz des einzelnen Gitterplatzes kann damit die Werte 0, 1 und 2 annehmen.

In einer großkanonischen Rechnung muss der Hamiltonian (3.2) um einen Term mit dem chemischen Potential ergänzt werden ($-\mu \sum_{i,\sigma} \hat{n}_{i\sigma}$). Kinetischer Anteil (erster und zweiter Summand) und potentielle Energie (letzter Summand) lassen sich nicht gleichzeitig diagonalisieren, sodass ein hochgradig nicht-triviales Problem verbleibt.

Der Hamiltonian (3.2) wurde 1963 unabhängig von Hubbard [Hubbard63], Gutzwiller [Gutzwiller63] und Kanamori [Kanamori63] vorgeschlagen, um metallischen Ferromagnetismus zu beschreiben. Obwohl er strukturell sehr einfach ist, lässt sich nur für den eindimensionalen Fall eine analytische Lösung mit Hilfe des Bethe-Ansatzes im thermodynamischen Limes [Lieb68] angeben. Für Dimensionen $D \geq 2$ lässt sich nur wenig Allgemeines aussagen [Tasaki98]. So ist die Phase für ein halbgefülltes ($n = 1$) bipartites Gitter (bei $D = 2$ nur für Temperatur $T = 0$) antiferromagnetisch, d.h. die zwei Untergitter haben eine endliche, entgegengesetzte Magnetisierung. Ferromagnetismus wurde im reinen

¹Das Hubbard-Modell lässt sich leicht um längerreichweitiges Hüpfen ergänzen. Ebenso lässt sich das Modell einfach an ein äußeres Magnetfeld ankoppeln, indem man die Einteilchenniveaus spinabhängig verschiebt.

Hubbard-Modell nur im thermodynamisch irrelevanten Fall halber Füllung minus einem Elektron bei $U = \infty$ für verschiedene Gittertypen nachgewiesen. Bei halber Füllung $n = 1$ lässt sich das Hubbard-Modell für $U \rightarrow \infty$ auf ein Heisenberg-Modell (Spin 1/2) und für $n \neq 1$ auf das $t - J$ -Modell abbilden.

Das Einband-Hubbard-Modell stellt ein idealisiertes Bild für ein stark korreliertes Material dar. Im Ansatz wird von einer Lokalisierung der elektronischen Wellenfunktionen ausgegangen, was für typische d - oder f -Schalen gegeben ist, welche aber selbst vielfach entartet sind. Die Verwendung des Einband-Hubbard-Modells kann in Situationen, in denen diese Entartung durch Kristallfeld- oder Jahn-Teller-Effekte aufgehoben ist (sodass ein einzelnes d - oder f -Orbital im Niederenergiesektor verbleibt), angemessen sein. Dennoch ist das Einband-Hubbard-Modell für viele qualitative Betrachtungen von Bedeutung.

Ein Durchbruch bei der näherungsweise Lösung des Hubbard-Modells (und verwandter Modelle) gelang 1989 mit dem Grenzfall unendlicher Dimension [Müller-Hartmann89, Metzner89, Metzner91], heute auch bekannt als dynamische Molekularfeldtheorie (DMFT) [Georges96] (siehe Abschnitt 3.2). Diese wird im Grenzfall unendlicher Dimensionalität exakt.

Einen guten Überblick über das Hubbard-Modell und dessen Lösungsmöglichkeiten findet man in [Gebhard95].

3.1 Das Mehrband-Hubbard-Modell

Der mit (3.2) beschriebene Hamiltonian stellt ein einfaches Einband-System dar. Diese starke Idealisierung ist im Fall realistischer Systeme nicht immer angemessen. Trotzdem kann im Einband-Hubbard-Modell (3.2) die Wechselwirkung zwischen Elektronen verschiedener orbitaler Quantenzahlen effektiv molekularfeldartig berücksichtigt werden. Interorbitale Korrelationen werden aber weiterhin ignoriert. Für Systeme, in welchen die interorbitalen Wechselwirkungen zu nicht-vernachlässigbaren Korrelationen zwischen den Elektronen verschiedener orbitaler Quantenzahl führen, ist zur Beschreibung ein Mehrband-Hubbard-Modell geeigneter. Dies ist typischerweise für Elektronensysteme mit stark lokalisierten Ladungsträgern der Fall, wie sie in d - oder f -Schalensystem zu finden sind. Für diese Situationen sind aber dann bis zu fünf oder sieben Orbitale im Leitungsband relevant. Kristallfelder können die Situation erleichtern, weil sie die Entartung der Orbitale aufheben können und sich damit die Zahl der dynamisch relevanten Orbitale reduziert.

Der Unterschied zum Einband-Hubbard-Modell liegt beim Mehrband-Hubbard-Modell im Wesentlichen im größeren Aufwand bei der Lösung. Zur Beschreibung realistischer Systeme wird der Hubbard-Hamiltonian (3.2) damit systematisch auf die Mehrband-Situation erweitert. Mit Hilfe der Entwicklungen (3.1) erhält man

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{Hubbard, Multiband}} &= \sum_{\langle i,j \rangle, mn\sigma} t_{mn}^{ij} \left(\hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{jn\sigma} + \text{h.c.} \right) + \sum_{i,m\sigma} \epsilon_{m\sigma} \hat{n}_{i,m\sigma} \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{i,mnop\sigma\sigma'} \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{in\sigma'}^\dagger \hat{c}_{io\sigma'} \hat{c}_{ip\sigma} U_{mnop} \end{aligned} \quad (3.3)$$

mit den Gitterplätzen i, j , den orbitalen Quantenzahlen m, n, o, p und den Spinquantenzahlen σ, σ' . Der erste Summand implementiert das direkte Hüpfen zwischen zwei benachbarten Gitterplätzen zwischen Orbital m und Orbital m' . Der zweite Summand definiert das

ionische Einteilchenniveau der einzelnen Orbitale. Die Wechselwirkung² wird durch den letzten Summanden eingeführt und enthält intraorbitale Wechselwirkungen U_{mmmm} , interorbitale Dichte-Dichte-Wechselwirkungen U_{moom} , Austauschwechselwirkungen U_{momo} , Paarhüpfen U_{mmoo} , korreliertes Hüpfen U_{ommm} , U_{momm} , etc.³

Weitere Wechselwirkungen, wie beispielsweise Spinbahnkopplung oder Gitterschwingungen, sind in (3.3) nicht berücksichtigt.

3.2 Dynamische Molekularfeld-Theorie für das Hubbard-Modell

Weil das Einband-Hubbard-Modell (3.2) für eine Dimension $D > 1$ nicht exakt gelöst werden kann, muss man sich zusätzlicher Näherungen bedienen. Eine Vereinfachung des Problems lässt sich häufig nur dann zuverlässig durch analytische Näherungen erzielen, wenn die Näherung einen Entwicklungsparameter beinhaltet, der in der Entwicklung klein ist. Beispiele hierfür sind direkte Störungstheorien: Schwachkopplungsstörungstheorie mit dem Parameter U/t (z.B. in erster Ordnung mit Hartree-Fock (HF) oder in zweiter Ordnung [Martín-Rodero82], [van Dongen94b]) oder Starkkopplungsstörungstheorien mit kleinem Parameter t/U (z.B. [Harris67], [van Dongen94a]). Alternativ dazu lassen sich auch verschiedene direkte Methoden zur Lösung angeben, beispielsweise exakte Diagonalisierung oder auch Monte-Carlo-Methoden [Dagotto94].

Zur präzisen Beschreibung eines Metall-Isolator-Übergangs sind derartige Störungstheorien jedoch ungeeignet, weil der Übergang bei vergleichbaren Energieskalen für die Hybridisierung und die Wechselwirkung $W \sim U$ stattfindet.

Starkkopplungsansätze gehen vom ionischen Problem des einzelnen Gitterplatzes aus und entwickeln die Störungstheorie in der Hybridisierungsamplitude. Störungsentwicklungen in der Wechselwirkung gehen vom Bandgrenzfall aus und entwickeln die Störungstheorie in der Wechselwirkungsamplitude. Zum jeweiligen Grenzfall ergeben sich dann Korrekturen. Die Beschreibung von Vielteilcheneffekten wie dem Gitter-Kondo-Effekt oder schwerer Fermionen erfordert darüber hinaus auch nicht-perturbative Methoden.

Ein sehr erfolgreicher Ansatz bei der näherungsweisen Lösung des Hubbard-Modells ist der Grenzfall der unendlichen Gitterkoordination Z . Als kleiner Entwicklungsparameter kann dann die inverse Koordinationszahl $1/Z$ (bzw. die kinetische Energie 3.4) angenommen werden. Weil diese Koordination stark dimensionsabhängig ist und wenigstens linear mit der Dimension ansteigt ($Z \propto D$), bezeichnet man diese Theorie häufig auch als Grenzfall unendlicher Dimensionalität. Schon im Fall des einfach-kubischen Gitters mit $D = 1$, $D = 2$ und $D = 3$ ist die inverse Koordinationszahl $1/Z = 1/2$, $1/Z = 1/4$ und $1/Z = 1/6$ für höhere Dimension klein. Für kubisch-raumzentrierte (*body-centered cubic*) oder kubisch-flächenzentrierte (*face-centered cubic*) Gitter ist in $D = 3$ die inverse Koordinationszahl mit $1/Z = 1/8$ oder $1/Z = 1/12$ sogar noch kleiner.

Bei Anwendung dieses Limits auf das Hubbard-Modell (3.2) müssen die konkurrieren-

²Bei der Entwicklung der Feldoperatoren (3.1) sind die Ortsraumfunktionen spinunabhängig. Daher besitzen die Wechselwirkungsintegrale keine Spinindizes. Diese gehen über das Operatorprodukt in die Betrachtung ein.

³Es wird dabei angenommen, dass die elektronische Wechselwirkung zwischen Orbitalen verschiedener Gitterplätze effektiv abgeschirmt wird. Diese interatomaren Wechselwirkungselemente können über Terme der Form $\frac{1}{2} \sum_{ijkl, mnop} \sigma \sigma' \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{jn\sigma'}^\dagger \hat{c}_{ko\sigma} \hat{c}_{lp\sigma'} U_{mnop}^{ijkl}$ (mit paarweise verschiedenen atomaren Quantenzahlen i, j, k, l) berücksichtigt werden.

den Energieskalen reskaliert werden, sodass kinetische Energie⁴ und potentielle Energie weiterhin im Wettbewerb stehen [Müller-Hartmann89, Metzner89, Metzner91]. Für die Hybridisierungsamplitude ergibt sich (mit $t^* = \text{const.}$ für große Z)

$$t = t^*/\sqrt{Z} \quad , \quad (3.4)$$

wodurch die endliche Bandbreite des Einteilchenspektrums und die gleichwertige Berücksichtigung der konkurrierenden Energieskalen sichergestellt ist.

Untersucht man das Hubbard-Modell nun in einer räumlich aufgelösten, diagrammatischen Störungstheorie in freien Gitterpropagationen $G_{ij,\sigma}^0$, so entfallen alle nicht-lokalen Wechselwirkungsvertizes. Die volle Gitterpropagation $G_{ij,\sigma}$ ergibt sich nun durch Summation aller (in Form dieser Diagramme darstellbaren) Prozesse. Für die zum einzelnen Diagramm beitragenden Propagatoren gilt im Limes unendlicher Dimension $D \rightarrow \infty$ [Metzner91]

$$G_{ij\sigma} \propto Z^{-s(i,j)/2} \quad \text{mit } D \rightarrow \infty \quad (3.5)$$

mit der minimalen Anzahl $s(i,j)$ der Nächste-Nachbar-Hüpfprozesse, um von i nach j zu kommen. Für das fermionische Hubbard-Modell ergibt sich damit im Limes unendlicher Dimension $D \rightarrow \infty$ (bzw. $Z \rightarrow \infty$) eine einfache Konsequenz

$$\Sigma_{ij,\sigma} \xrightarrow{Z \rightarrow \infty} \delta_{ij} \Sigma_\sigma \quad . \quad (3.6)$$

Damit ist die Fourier-Transformierte der Selbstenergie im \underline{k} -Raum $\Sigma_{\underline{k},\sigma} = \Sigma_\sigma$ \underline{k} -unabhängig und über die gesamte Brillouin-Zone hinweg konstant.

Die \underline{k} -aufgelöste Green-Funktion [Georges96, Kotliar06] lautet dann in der Näherung durch die dynamische Molekularfeldtheorie (DMFT)

$$\underline{\underline{G}}(\underline{k}, z) = ((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\epsilon}}(\underline{k}) - \underline{\underline{\Sigma}}(z))^{-1} \quad , \quad (3.7)$$

wobei die orbitalen und Spinquantenzahlen in der Matrixstruktur aufgelöst werden. Hier ist zu bemerken, dass sich in DMFT die funktionale Abhängigkeit der Green-Funktion von \underline{k} nur aus der effektiv wechselwirkungsfreien⁵ Einteilchendisersion des Elektrons $\underline{\underline{\epsilon}}(\underline{k})$ und nicht mehr aus der Selbstenergie ergibt. Für die \underline{k} -summierte Green-Funktion erhält man

$$\begin{aligned} \underline{\underline{G}}(z) &= \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} (\underline{\underline{G}}(\underline{k}, z)) \\ &= \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} ((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\epsilon}}(\underline{k}) - \underline{\underline{\Sigma}}(z))^{-1} \quad . \end{aligned} \quad (3.8)$$

Im Störstellenmodell (2.2), (2.41) steht ebenfalls eine \underline{k} -unabhängige Selbstenergie. Es kann gezeigt werden, dass die zu berücksichtigenden Prozesse im Störstellenproblem denen des Gitters im DMFT-Grenzfall äquivalent sind. Daher wird die \underline{k} -summierte Green-Funktion (3.8) mit der lokalen Green-Funktion eines Störstellenmodells (2.41) identifiziert

$$\underline{\underline{G}}(z) \equiv \underline{\underline{G}}^{\text{MIAM}}(z) \quad . \quad (3.9)$$

⁴Der relative Anteil der kinetischen Energie nimmt nämlich mit der Koordinationszahl zu, sofern t konstant bleibt.

⁵Hier können statische Anteile der Wechselwirkungen enthalten sein, wie sie sich aus einer Dichtefunktionalrechnung ergeben.

So definiert man eine effektive, lokale Green-Funktion

$$\underline{\underline{G}}(z)^{-1} = \underline{G}(z)^{-1} + \underline{\underline{\Sigma}}(z) \quad , \quad (3.10)$$

welche die lokalen Quantenfluktuationen berücksichtigt. Im direkten Vergleich von (2.41) und (3.10) wird deutlich, dass die effektiv wechselwirkungsfreie Green-Funktion $\underline{\underline{G}}(z)$ (das sogenannte Weissche Feld) die Rolle der freien Gitterpropagation im Störstellenproblem einnimmt. Dort wird das Gitter mittels der Hybridisierungsamplituden, respektive der Anderson-Funktion für das Störstellenproblem, als freie Gitterpropagation beschrieben, während (3.10) eine *effektiv* freie Propagation beschreibt.

Weil das Molekularfeld in der Näherung frequenzabhängig ist, bezeichnet man diese Näherung als dynamische Molekularfeldtheorie (DMFT) oder *dynamical mean-field theory* [Georges96]. Im Sinne einer Störungsentwicklung in $1/Z$ ist die DMFT sozusagen die Näherung 0. Ordnung. Darüber hinaus ist sie eine erhaltende Näherung, d.h. thermodynamisch konsistent.

Die Gleichungen (3.7) und (3.10) (in Verbindung mit (3.8)) stellen zwei der drei notwendigen Bestimmungsgleichungen für die drei Unbekannten $\underline{G}(z)$, $\underline{\underline{G}}(z)$ und $\underline{\underline{\Sigma}}(z)$ dar. Die dritte Bestimmungsgleichung ergibt sich aus der Lösung des Störstellenproblems. Eine Möglichkeit, um Lösungen solcher nichtlinearen Gleichungssysteme zu bestimmen, ist die selbstkonsistente Iteration der konstituierenden Gleichungen. In Abbildung 3.1 sind die selbstkonsistenten Zyklen beispielhaft für die Lösung mit den in Abschnitt 2.1 vorgestellten Störstellenlösern (Hirsch-Fye-Quanten-Monte-Carlo (HF-QMC) und dem diagrammatischen Störstellenlöser) dargestellt. Der Startpunkt für eine derartige Iteration lässt sich mit Gleichung (3.7) wählen, weil sich dann konsequent aus einer analytischen Selbstenergie eine Green-Funktion mit den richtigen, analytischen Eigenschaften ergibt. Es genügt hierzu natürlich, $\underline{\underline{\Sigma}}^{(0)}(z) = 0$ zu wählen.

Die Summation über die Brillouin-Zone in (3.8) lässt sich im Detail verschieden ausführen. Für den allgemeinen Mehrbandfall lässt sich das in vielen Einband-Codes verwendete numerische Integrationsverfahren (mit Hilfe einer Hilbert-Transformation) nicht benutzen. Für den im Rahmen der Arbeit entwickelten Mehrband-Code wurde daher ein neues Verfahren entwickelt, welches die numerische Effizienz steigert und die Rechenzeit deutlich reduziert. Das Verfahren wird in Abschnitt A.4 vorgestellt und abgeleitet.

Findet sich bei der Iteration des Schemas (Abb. 3.1) ein Fixpunkt, so stellt dieser eine Lösung dar. Die gefundene Lösung muss nicht die einzige sein, auch impliziert eine fehlende Konvergenz des Schemas nicht, dass keine Lösung existiert. Vielmehr lassen sich durch eine Änderung des Ausgangspunktes oder die Anwendung eines Relaxationsschemas⁶ weitere Lösungen erschließen. Es hängt wesentlich von der Störstellenlösung ab, ob die Suche nach einer physikalischen Lösung erfolgreich ist. So finden sich beispielsweise charakteristische Nicht-Analytizitäten bei Resolventenverfahren (wie beispielsweise der NCA), die zu unphysikalischen Ergebnissen führen [Pruschke01].

Die DMFT stellt einen sehr erfolgreichen Ansatz bei der Beschreibung korrelierter Elektronen im Festkörper dar, versagt aber im Besonderen bei niedrigdimensionalen Systemen.

⁶In diesem Fall kann es erfolgreich sein, einer in der Iteration i gefundenen Größe Φ_i eine ältere Größe Φ_{i-1} beizumischen, sodass sich $\tilde{\Phi}_i = \alpha\Phi_i + (1-\alpha)\Phi_{i-1}$ ergibt. Die zufällige Variation $\delta\alpha$ des Mischungskoeffizienten $\alpha \rightarrow \alpha + \delta\alpha$ hat sich als Verbesserungsmöglichkeit erwiesen, so auch bei der numerischen Lösung der Hartree-Fock-Gleichungen (Abschnitt A.2). Deutlich ausgeklügelter ist die Verwendung eines Broyden-Mischungsschemas [Broyden65] (ein Überblick findet sich in [Eyert96]). In Anwendung auf ein DMFT Iterationsschema ist eine klare Verbesserung der Konvergenz festzustellen [Žitko09].

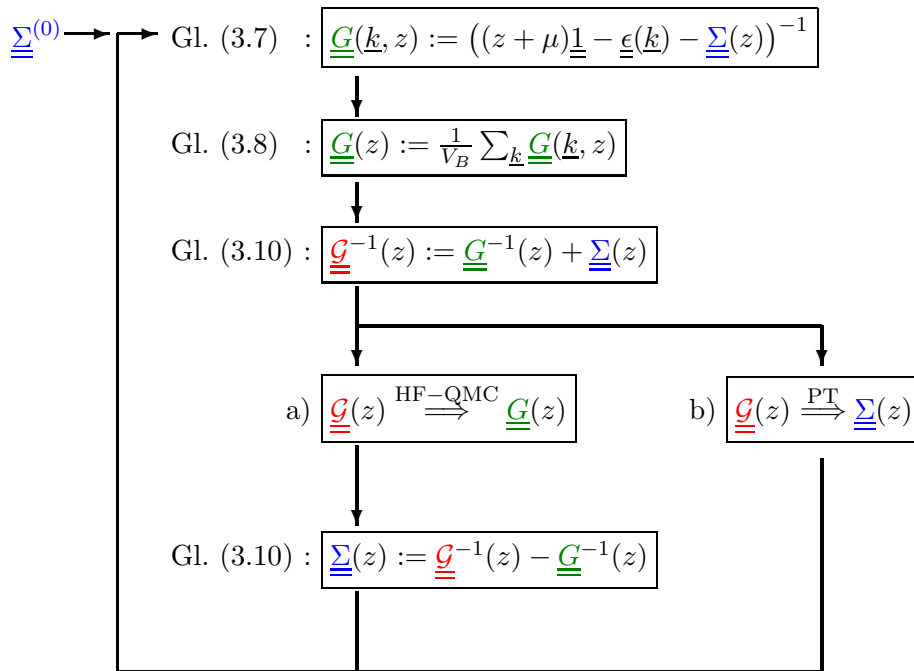


Abbildung 3.1: Iterationsschema zur selbstkonsistenten Lösung der dynamischen Molekularfeldtheorie (DMFT) für die zwei in der Arbeit verwendeten Störstellenlöser: (a) Hirsch-Fye-Quanten-Monte-Carlo (HF-QMC) und (b) Störungstheorie (PT). Die orbitalen Indizes und Spinindizes werden in der Matrixstruktur kodiert. Der Startpunkt ist angegeben mit einer initialen Selbstenergie $\underline{\underline{\Sigma}}^{(0)}$. Der Zyklus wird bis zur Konvergenz iteriert und kann an beliebiger Stelle abgebrochen werden.

Allgemein lassen sich Systeme nicht oder nur sehr schlecht beschreiben, bei denen eine starke Impulsabhängigkeit der Selbstenergie $\Sigma(\underline{k}, z)$ vorhanden ist. Diese ist notwendig, um Phasen mit explizit nicht-lokalen Ordnungsparametern oder solchen mit niedriger Symmetrie zu beschreiben, von denen vermutlich die d -Wellen-Supraleitung das bekannteste Beispiel ist. Methoden, um dieses Defizit zu beheben, existieren in Form der dynamischen Cluster-Approximation (DCA) oder der Cellular-DMFT (C-DMFT).

Die DCA [Hettler98, Hettler00] zerlegt die Brillouin-Zone in verschiedene Segmente mit einem repräsentativen Vektor \underline{K} , für welchen jeweils eine Selbstenergie $\Sigma(\underline{K}, z)$ bestimmt werden kann. Mit dieser ergibt sich dann für jedes Segment die Green-Funktion

$$\underline{\underline{G}}(\underline{K}, z) = \frac{N_c}{N} \sum_{\underline{k}} \left((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\epsilon}}(\underline{K} + \underline{k}) - \underline{\underline{\Sigma}}(\underline{K}, z) \right)^{-1}, \quad (3.11)$$

aus der sich mit Gl. (3.10) Mediums-Green-Funktionen $\underline{\underline{G}}(\underline{K}, z)$ ergeben. Um das Iterationsschema zu schließen, muss die Selbstenergie oder die lokale Green-Funktion im Störstellenproblem für jedes Segment bestimmt werden. Hierzu wird ein Löser für ein Störstellencluster verwendet.

Die C-DMFT [Lichtenstein00, Kotliar01] löst ein Cluster von Störstellen, welches dann in ein effektives Medium eingebettet wird. Einfach verstehen lässt sich dieser Ansatz, wenn man das Cluster als Superstörstelle versteht, wobei neben den Wechselwirkungsmatrixelementen auch noch Hybridisierungselemente zwischen den lokalen Orbitalen hinzukommen. Die Gleichungen (3.7), (3.8) und (3.10) beinhalten die Formulierung der C-DMFT, wenn man im Störstellenlöser eben jene Hybridisierungselemente zwischen den lokalen Quantenzahlen zulässt. Ein Nachteil dieser Methode ist offenkundig, wenn man bedenkt, dass im Ausgangsproblem äquivalente Orbitale im Cluster nun inäquivalent sein können und damit die Translationssymmetrie des Ausgangsproblems verletzt wird.

Vergleiche beider Methoden finden sich in in der Literatur [Biroli02, Maier05].

3.3 Orbital-selektive Mott-Übergänge

Der *orbital-selektive Mott-Übergang* tritt als separater *Mott-Übergang* einzelner Bänder in einem Mehrbandsystem auf. Der Mott-Übergang selbst beschreibt den wechselwirkungsinduzierten Übergang eines metallischen Systems in einen isolierenden Zustand, dem Mott-Isolator. Der Mott-Isolator ist zu differenzieren von anderen Isolatoren.

Der Ladungstransport in Festkörpern wird von verschiedenen Typen der Wechselwirkung der Elektronen (mit dem Gitterpotential, Gitterdefekten oder anderen Elektronen) bestimmt, sodass die Isolatoren in verschiedene Klassen (Band-, Anderson- und Mott-Isolatoren) eingeteilt werden können. Ein ausführlicher Überblick findet sich in der Literatur [Gebhard95].

Im Fall eines Bandisolators [Bloch29, Wilson31] geht man davon aus, dass die Elektron-Elektron-Wechselwirkung effektiv im Rahmen einer Einteilchennäherung (molekularfeldartig) berücksichtigt werden kann. Dann ist der Hamiltonian bilinear und wird im unendlichen idealen Gitter gemäß des Blochtheorems durch Einteilchenzustände mit Impuls \underline{k} und Bandindex b diagonalisiert. Die Bänder selbst können durch die Wirkung der Ionenrümpfe im Kristall gut voneinander durch eine Energielücke getrennt sein. Liegt die Fermi-Kante in einer solchen Lücke, so ist für $T = 0$ das darunterliegende Band (Valenzband) komplett gefüllt und das darüberliegende Band (Leitungsband) leer. Ist diese Energielücke von der

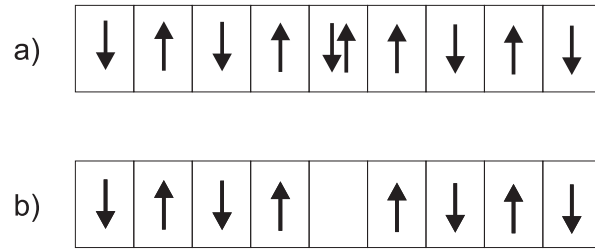


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des halbgefüllten Hubbard-Modells im Grundzustand mit (a) einem zusätzlichen Elektron ($N+1$ Teilchen) und (b) einem zusätzlichen Loch respektive fehlenden Elektron ($N-1$ Teilchen)

Größenordnung der thermischen Energie $\sim T \neq 0$, so spricht man von einem Halbleiter, ist die Lücke größer, von einem Isolator. Das gefüllte Band kann nicht zum Transport (Leitung) beitragen [Bloch29], ebenso wenig das leere.

Im Fall von Unordnung in einem Gitter auf Grund von zufällig verteilten Gitterdefekten kann die Rückstreuung in einem Zufallspotential zur Lokalisierung der Elektronen und damit zu einem isolierenden Zustand führen [Anderson58], dem Anderson-Isolator. Dies kann man modellieren, indem die ionischen Energieniveaus mit einer mittleren Schwankungsbreite δ auf den Gitterplätzen variiert werden. Wenn die Fluktuationen in den Energieniveaus in die Größenordnung der Bandbreite kommen, findet die Anderson-Lokalisierung statt und ein Isolator entsteht für tiefe Anregungsenergien.

Der Mott-Isolator wird durch elektronische Korrelationen verursacht. Hierbei wird zwischen Mott-Hubbard- und Mott-Heisenberg-Isolator unterschieden, je nachdem ob Ladungs- oder Spinkorrelationen dominant für das isolierende Verhalten verantwortlich sind. Bei großem Abstand der Gitterplätze ist der Überlapp der atomaren Wellenfunktionen klein und damit die Bandbreite W sehr viel kleiner als die Wechselwirkung U ($W \ll U$). Bei Halbfüllung ist im Grundzustand jeder Gitterplatz einfach besetzt.

Die erforderliche Energie $\mu^+ = E(N+1) - E(N)$, um dem System ein Elektron hinzuzufügen, ist $\mu^+ \approx U - W/2$ (siehe Abb. 3.2a). Da die Ladungsanregung auf dem Gitter beweglich ist, bildet sich ein Band der Breite W (oberes Hubbard-Band). Ganz analog verhält es sich bei der Entfernung eines Elektrons (siehe Abb. 3.2b), was mit einer Energie $\mu^- = E(N) - E(N-1) = W/2$ verknüpft ist (unteres Hubbard-Band).

Das chemische Potential weist eine Lücke für Ladungsanregungen $\Delta\mu(N) \approx U - W > 0$ auf. Bei kleiner Wechselwirkung $U \ll W$ findet man keine Anregungslücke im Spektrum. Im Bereich $U \approx W$ findet dann der sogenannte Mott-Hubbard-Übergang statt. Oberes und unteres Hubbard-Band leiten sich aber *nicht* aus Einteilchenzuständen ab, und daher ist der Mott-Hubbard-Isolator kein Bandisolator, auch wenn sich der Übergang in den Zustandsdichten respektive Bandbild ähnlich darstellt [Gebhard95].

Neben der Energieskala für Ladungsanregungen $\Delta\mu(N) \approx U - W$ existiert im System eine zweite Energieskala $J \sim W^2/U$ für Spinanregungen. Für kleine Temperaturen können die Momente im System langreichweitig ordnen und das System geht von einem paramagnetischen Mott-Hubbard-Isolator in einen antiferromagnetischen Mott-Heisenberg-Isolator über. Für kleine Wechselwirkungen $U \ll W$ können Spinkorrelationen die Ladungskorrelationen sogar dominieren, sodass der paramagnetische metallische Zustand direkt in den Mott-Heisenberg-Isolator übergeht.

Für Mehrbandsysteme hängt das Auftreten von Mott-Phasen und von metallischen Phasen empfindlich von den Wechselwirkungsmatrixelementen im System ab. Für das weiter unten beschriebene Modell (3.12), mit Wechselwirkung $U = U'$ und $J = 0$, wird das Zweibandmodell mit zwei äquivalenten Orbitalen (d.h. gleicher Bandbreite) untersucht [Rozenberg97] und für ausreichend große Wechselwirkung mehrere Mott-Phasen bei ganzzahliger Gesamtfüllung identifiziert. Entkoppelt man die zwei Orbitale, indem man die interorbitalen Wechselwirkungen vernachlässigt (im Modell durch $U' = J = 0$), so findet sich nur eine Mott-Phase bei Halbfillung, welche für alle Orbitale (bei gleicher Bandbreite) gleichermaßen stattfindet.

Falls die Orbitale an der Fermi-Kante inäquivalent sind, kann es zu neuen Phasen kommen, die weder eindeutig als Metall noch als Isolator zu identifizieren sind. Dies kann durch die Aufhebung der orbitalen Entartung oder Symmetriebrechung geschehen, wie es beispielsweise eine Konsequenz von Jahn-Teller-Effekten ist. Im Unterschied zum entarteten Mehrbandfall, respektive Einbandfall, ergeben sich aber hier zwei kritische Wechselwirkungen U_{c1} und U_{c2} . Für $U < U_{c1}$ ist das System in allen Orbitalen metallisch, d.h. in jedem einzelnen Orbital m sind niederenergetische Anregungen möglich $A_m(\omega \rightarrow 0) \neq 0$. Für Wechselwirkungen $U > U_{c2}$ ist $A_m(\omega \rightarrow 0) = 0$ und damit jedes Band isolierend.⁷ Im Zwischenbereich $U_{c1} < U < U_{c2}$ findet man orbital-selektive Mott-Phasen (OSMP), bei denen ein Teil der Orbitale itinerante Elektronen und der andere Teil lokalisierte Elektronen enthält. Gerade diese Phasen sind von besonderem Interesse, weil sich Teile des Gesamtsystems physikalisch unterschiedlich verhalten. Ein wesentlicher Aspekt dieser Untersuchung ist festzustellen, in welchem Maß die Eigenschaften der lokalisierten Elektronen stabil gegenüber Dotierung sind und wie die lokalisierten Elektronen itinerant werden und damit das Gesamtsystem die OSMP verlässt. Den Übergang in oder von einer OSMP bezeichnet man als orbital-selektiven Mott-Übergang (OSMT, *orbital-selective Mott transition*).

Experiment

Eines der bekanntesten Materialien, welches einen Mott-Übergang zeigt, ist das Übergangsmetalloxid V_2O_3 [Rice70]. Der Übergang wird durch die Änderung der Überlappintegrale der Wellenfunktionen ausgelöst, wie er sich durch eine Gitterverzerrung auf Grund äußeren Drucks ergibt. Dieser Übergang wird qualitativ gut im Rahmen des Einband-Hubbard-Modells bei Halbfillung beschrieben, wobei auch hier orbitale Effekte eine Rolle

⁷Genaugenommen ist die Zustandsdichte keine Observable, an welcher sich die Leitfähigkeit oder Metallizität ablesen lässt. Die relevante Größe ist hier die optische Leitfähigkeit $\sigma_{\alpha\beta}(\omega + i0^+) = -\frac{1}{\omega N V_0} \text{Im} \langle \hat{j}_\alpha | \hat{j}_\beta^\dagger \rangle (\omega + i0^+)$ beziehungsweise die Strom-Strom-Korrelationsfunktion $\langle \hat{j} | \hat{j}^\dagger \rangle (z) = e^2 \sum_{\sigma\sigma', k, k'} \underline{v}_k \underline{v}_{k'}^T \langle \hat{c}_{k\sigma}^\dagger \hat{c}_{k\sigma} | \hat{c}_{k'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{k'\sigma'} \rangle (z)$ (siehe [Mahan00, Voruganti92, Blümer02, Grenzbach06]), im Besonderen deren statischer Anteil. Offenkundig wird hier aber, dass die Zustandsdichte an der Fermi-Kante einen guten Hinweis auf die Metallizität für eine Vielzahl von Systemen liefert, da die Zweiteilchengröße $\langle \hat{c}_{k\sigma}^\dagger \hat{c}_{k\sigma} | \hat{c}_{k'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{k'\sigma'} \rangle$ unter Vernachlässigung von Korrelationseffekten höherer Ordnung als Produkt zweier Einteilchengrößen $\langle \hat{c}_{k\sigma}^\dagger \hat{c}_{k\sigma} \rangle \langle \hat{c}_{k'\sigma'}^\dagger \hat{c}_{k'\sigma'} \rangle$ geschrieben werden kann. Falls diese eine nicht-verschwindende Zustandsdichte an der Fermi-Kante aufweisen, ergibt sich in der Zweiteilchengröße ein nicht-verschwindender Beitrag an der Fermi-Kante und damit eine nicht-verschwindende statische Suszeptibilität. Folglich ergibt sich für das System eine endliche Leitfähigkeit. Diese Folgerung ist im Allgemeinen natürlich ungültig und wird von verschiedenen Systemen verletzt: Für Supraleiter [Bardeen57] findet sich eine Lücke in der Zustandsdichte an der Fermi-Kante, aber trotzdem eine nicht-verschwindende Leitfähigkeit. Umgekehrt findet man bei Systemen mit Anderson-Lokalisierung eine Zustandsdichte an der Fermi-Kante, aber eine verschwindende Leitfähigkeit [Anderson58].

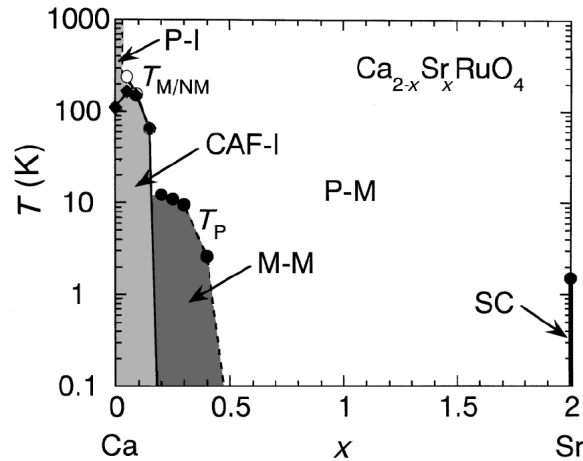


Abbildung 3.3: Phasendiagramm von $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ mit P paramagnetischer Phase, CAF gekippter antiferromagnetischer Phase, SC supraleitender Phase, $-M$ für die metallischen und $-I$ isolierenden Phasen [Nakatsuji00a].

spielen [Held01].

Die Untersuchung von OSMTs wurde durch Auffälligkeiten im Phasendiagramm des Rhutenats $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ motiviert [Nakatsuji00a, Nakatsuji00b]. Die Bandstruktur wird von den $4d-t_{2g}$ -Zuständen des Ruthenium dominiert, von welchen das d_{xy} -Orbital mit den benachbarten $2p$ -Orbitalen der Sauerstoffatome in der Ebene hybridisiert [Anisimov02]. Die Entartung der relevanten t_{2g} -Orbitale wird aufgehoben, und man findet inäquivalente d_{xy} - und $\{d_{xz}, d_{yz}\}$ -Orbitale. Vergleicht man die zwei Endpunkte im Phasendiagramm Sr_2RuO_4 und Ca_2RuO_4 , so lässt sich das System mittels Dotierung von einem Spin-Triplett Supraleiter (Sr_2RuO_4) [Maeno02, Ishida98] zu einem Mott-Isolator (Ca_2RuO_4) verstimmen.

Der Übergang zwischen den zwei Endpunkten im Phasendiagramm ist kompliziert. In Abb. 3.3 ist das Phasendiagramm für $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ dargestellt. Es lässt sich im Wesentlichen in drei Regionen einteilen. Für schwache Dotierung ist das System in einem antiferromagnetischen Grundzustand. Der Übergang vom Metall zum Nicht-Metall findet für nahezu alle Dotierungen $x \leq 0.2$ durch Veränderung der Temperatur statt. Lediglich das undotierte Ca_2RuO_4 ist bis zu einer Temperatur von wenigstens 300 K isolierend. Für Dotierungen $0.2 < x \leq 0.5$ ist das System in einem magnetisch-metallischen Zustand. Für Dotierungen $x > 0.5$ ist das Material paramagnetisch, der supraleitende Zustand wird für $T < 1.5$ K bei $x = 2$ erreicht.

Nach Anisimov [Anisimov02] führt die Reduktion der Dotierung x zu einer Abnahme der Bandbreite der verschiedenen Bänder; elektronische Korrelationen verursachen dann die OSMT (für $0.2 < x \leq 0.5$). Für $x \approx 0.2$ findet schließlich ein Phasenübergang erster Ordnung in die isolierende Phase des Ca_2RuO_4 statt.

Mikroskopisch führt die Ersetzung der Sr-Ionen durch Ca zu einer Verzerrung des Gitters. Für $x < 0.5$ geht das System zunehmend in die orthorhombische Struktur des Ca_2RuO_4 über. Diese Verzerrung verändert die Bandbreiten der t_{2g} -Orbitale, die Bandbreite des d_{xy} -Orbitals ist von der der $\{d_{xz}, d_{yz}\}$ -Orbitale verschieden. Daneben führt es zu einer Energieverschiebung der d_{xy} - gegenüber den $\{d_{xz}, d_{yz}\}$ -Orbitalen.

Es ist unklar, ob allein die elektronischen Korrelationen für die OSMT verantwort-

lich sind oder ob andere Effekte, wie beispielsweise Spin-Bahn-Kopplung, wie sie für das $4d$ -Element Ruthenium nicht vernachlässigbar sind, berücksichtigt werden müssen [Ng00, Sigris04]. Optische Spektroskopie deutet darauf hin, dass die beobachtbare Ladungsträgerkonzentration kleiner ist, als es sich aus dem Szenario einer OSMT ergeben würde [Lee02].

Theoretische Beschreibung

In den letzten Jahren hat sich die Erkenntnis durchgesetzt, dass OSMTs unter sehr allgemeinen Umständen in Mehrbandmodellen mit unterschiedlichen Bandbreiten der einzelnen Bänder realisiert werden [Knecht05, Blümer07b, van Dongen06, Bünemann07, Inaba06, de'Medici05, Ferrero05, Costi07, Liebsch05, Inaba05a, Koga04, Liebsch03, Inaba05b]. Ein (nahezu) minimaler Hamiltonian zur Beschreibung der OSMT ist ein generisches Zweiband-Hubbard-Modell mit unterscheidbaren Transfermatrixelementen zwischen den einzelnen Gitterplätzen t_m (m ist hier der Bandindex) und enthält, neben einer Dichte-Dichte-Wechselwirkung, eine einfache ising-artige Hund'sche Kopplung J_z (siehe auch Abb. 3.4)

$$\begin{aligned} \hat{H} = & - \sum_{\langle ij \rangle, m, \sigma} t_m \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{jm\sigma} + \frac{\Delta}{2} \sum_{i, \sigma} \left(\hat{n}_{i2\sigma} - \hat{n}_{i1\sigma} \right) \\ & U \sum_{im} \hat{n}_{im\uparrow} \hat{n}_{im\downarrow} + \sum_{i\sigma\sigma'} \left(U' - \delta_{\sigma\sigma'} J_z \right) \hat{n}_{i1\sigma} \hat{n}_{i2\sigma'} \quad . \end{aligned} \quad (3.12)$$

Der Spin wird hier mit σ , die Gitterplätze werden mit i, j gekennzeichnet. Die Teilchenzahloperatoren sind $\hat{n}_{im\sigma} \equiv \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{im\sigma}$. Das Hybridisierungselement zwischen verschiedenen Gitterplätzen ist t_m für das Orbital m , wobei das Hybridisierungselement t_n für das schmale (*narrow*) Band kleiner als das für das breite (*wide*) Band t_w ist ($t_n < t_w$). Die Kristallfeldaufspaltung wird durch eine Verschiebung Δ der ionischen Niveaus der einzelnen Orbitale relativ zueinander implementiert. Die intraorbitale Wechselwirkung U wirkt gleichermaßen auf beiden Orbitalen; U' beschreibt die interorbitale Dichte-Dichte-Wechselwirkung. Die Wechselwirkungen sind gemäß

$$U = U' + 2 J_z \quad (3.13)$$

verknüpft. Für dieses Modell wird im Folgenden die Bezeichnung J_z -Modell [Knecht05, Koga05, van Dongen06] benutzt. Eine allgemeinere Diskussion der Hund'schen Kopplung würde darüber hinaus Spin-Flip- und Pair-Hopping Anteile berücksichtigen

$$\hat{H}_\perp = \frac{1}{2} J_\perp \sum_{im\sigma} \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \left(\hat{c}_{i\bar{m}\bar{\sigma}}^\dagger \hat{c}_{im\bar{\sigma}} + \hat{c}_{i\bar{m}\bar{\sigma}}^\dagger \hat{c}_{i\bar{m}\bar{\sigma}} \right) \hat{c}_{i\bar{m}\sigma} \quad . \quad (3.14)$$

Wie sich aber gezeigt hat, genügt (3.12), um OSMTs zu beschreiben. Erweiterungen der Art (3.14) ändern die Physik qualitativ nur im $SU(2)$ symmetrischen Grenzfall ($J_z = J_\perp$). Im Besonderen wird für den teilchen-loch-symmetrischen Grenzfall [Biermann05] gezeigt, dass die itineranten Elektronen in der OSMP für alle $J_\perp < J_z$ Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten zeigen und sich die Fermi-Flüssigkeitseigenschaft nur bei $J_\perp = J_z$ ergibt. In diesem Sinne stellt das J_z Modell (3.12) den generischen Fall anisotroper Hund'scher Kopplung dar.

Die Natur der OSMTs ist für den teilchen-loch-symmetrischen Grenzfall gut verstanden [Knecht05, Blümer07b, van Dongen06, Bünemann07, Inaba06, de'Medici05, Ferrero05,

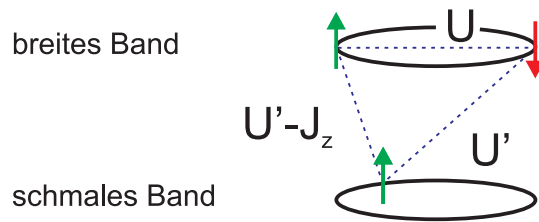


Abbildung 3.4: Schematische beispielhafte Darstellung des Zweibandproblems: Die Wechselwirkungen zwischen den Elektronen sind schematisch mit gestrichelten Linien dargestellt. Elektronen im gleichen Orbital wechselwirken über die Dichte-Dichte-Wechselwirkung, charakterisiert durch U . Für Elektronen in unterschiedlichen Orbitalen wird diese durch ein U' berücksichtigt. Die Austauschwechselwirkung wird ising-artig über ein J_z realisiert, sodass sich für Elektronen gleichen Spins in verschiedenen Orbitalen das Wechselwirkungsintegral effektiv zu $U' - J_z$ ergibt.

Costi07, Liebsch05, Inaba05a, Koga04, Liebsch03, Inaba05b]. Für realistische Systeme sind in der Regel Bänder, ionische Niveaus und Wechselwirkungen nicht derart abgestimmt, dass sich eine teilchen-loch-symmetrische Situation ergeben würde. Auch führen die Dotierung von Systemen oder die Kristallfeldaufspaltung zur Verletzung dieser Symmetrie. Der Einfluss schwacher Dotierung auf die OSMP [Koga04] oder der Effekt der Kristallfeldaufspaltung für Systeme mit zwei [Werner07] und drei [Xi Dai06] Orbitalen wird in der Literatur untersucht. Im Rahmen dieser Arbeit wird das J_z -Modell sehr umfassend in verschiedenen Observablen untersucht und erweitert.

Die numerische Lösung gelingt mit Hilfe der dynamischen Molekulfeldtheorie (DMFT, siehe auch Abschnitt 3.2). Das zugehörige Störstellenproblem wird mit einem Hirsch-Fye-Quanten-Monte-Carlo-Algorithmus mit hochfrequenzkorrigierter Selbstenergie gelöst (Details hierzu in Abschnitt 2.1.2). Mit dieser numerischen Behandlung ist ein systematischer Fehler im Diskretisierungsparameter $\Delta\tau$ assoziiert. Für diese Arbeit wird $\Delta\tau = 0.4$ gewählt, was einen guten Kompromiss zwischen der Qualität der Ergebnisse und dem Rechenaufwand darstellt. Der Diskretisierungsfehler wird durch Vergleichsrechnungen mit von $\Delta\tau = 0.4$ verschiedenen Werten $0.25 \leq \Delta\tau \leq 0.5$ abgeschätzt und erweist sich in allen Observablen als unbedeutend. Im Vergleich mit einer anderen QMC-Implementierung [Ulmke95] sind die systematischen Fehler auf Grund der Trotter-Diskretisierung erheblich kleiner. Dieser Fortschritt ist auf die Hochfrequenzkorrektur der Selbstenergie zurückzuführen, die auch in den vorangegangenen Arbeiten [Knecht05, Knecht06] unbedingt notwendig war, um OSMPs aufzulösen. Mit anderem Diskretisierungsparameter $\Delta\tau$ ergeben sich lediglich leichte Verschiebungen in der kritischen Wechselwirkung und kleine Korrekturen in den Einteilchenspektren.

Neben den numerischen Ergebnissen werden auch analytische Resultate des Modells präsentiert. Die numerischen Ergebnisse werden einerseits mit Hartree-Fock-Resultaten verglichen (siehe A.2), was im Niedrig- respektive Hochdichtegrenzfall opportun ist, und andererseits mit Resultaten in Freier Theorie, welche selbst eine Näherungsform der sehr viel allgemeineren Lokalen Theorie [Grew96] ist. Diese nimmt das ionische Problem, welches sich exakt lösen lässt, zum Ausgangspunkt und führt eine Störungsentwicklung in der Hybridisierung durch, um die Gitterlösung zu bestimmen. In Abschnitt 3.3.1 wird

eine knappe Einführung in die Freie Theorie gegeben. Die Freie Theorie ist im Ergebnis äquivalent zur Hubbard-I-Näherung [Hubbard63, Hubbard64a].

Das Modell (3.12) wird anhand verschiedener Observablen untersucht: Einteilchengrößen wie Spektren, Teilchenzahlen und auch Quasiteilchengewichte, aber auch Zweiteilchengrößen wie bandaufgelöste Doppelbesetzungen. Um den genauen Einfluss des jeweils anderen Bands respektive Orbitals beurteilen zu können, werden die Resultate denen einfacher Einbandsysteme gegenübergestellt. Für diesen Fall ergibt sich mit dem Quasiteilchengewicht $Z = m/m^*$ ein weiterer, wesentlicher Indikator für den Mott-Übergang. Beim Erreichen der isolierenden Phase $U \rightarrow U_c$ verschwindet das Quasiteilchengewicht Z im Grundzustand, und die effektive Masse der Elektronen m^* divergiert. Es ist wichtig festzustellen, dass die Begriffe ‘‘Quasiteilchengewicht’’ und ‘‘effektive Masse’’ nur in einer Fermi-Flüssigkeitsphase definiert sind. Das Quasiteilchengewicht lässt sich im Matsubara-Raum näherungsweise bestimmen [Serene91]

$$\begin{aligned} Z = \frac{m}{m^*} &\equiv \left(1 - \left. \frac{d\text{Re}\Sigma}{d\omega} \right|_{\omega=0} \right)^{-1} \\ &\simeq \left[1 + \frac{\text{Im}\Sigma(i\omega_1)}{\pi T} \right]^{-1} . \end{aligned} \quad (3.15)$$

Hier ist $\omega_1 = \pi T$ die erste Matsubara-Frequenz. Beide Ausdrücke lösen den nicht-wechselwirkenden Grenzfall $Z \rightarrow 1$ für beliebige Temperatur für $\Sigma \rightarrow 0$ auf. Zudem ist die Sekantenapproximation exakt in der Fermi-Flüssigkeitsphase im Limes $T \rightarrow 0$. In der isolierenden Phase jedoch unterscheiden sich die Ausdrücke, weil der Realfrequenz Ausdruck divergiert und die Sekantennäherung (3.15) endlich bleibt. Das unterstreicht, dass die Näherung (3.15) im Allgemeinen ungenau oder sogar falsch in einer Nicht-Fermi-Flüssigkeitsphase sein wird, im Besonderen in orbital-selektiven Mott Phasen, wo das schmale Band isolierend ist und das breite Band eine Nicht-Fermi-Flüssigkeit.

Die Transporteigenschaften des Systems wie optische Leitfähigkeit, Strom-Strom-Korrelationsfunktion könnten direkte Antwort auf die Frage nach der Metallizität geben, werden hier aber nicht untersucht.

Im Folgenden wird das J_z -Modell für zwei Bänder mit voneinander verschiedenen Bandbreiten $t_n = 0.5$ für ein schmales (*narrow*) und $t_w = 1.0$ für ein breites (*wide*) Band betrachtet. Für die zu Grunde gelegte Bethe-Zustandsdichte ergeben sich damit Bandbreiten $W_n = 2.0$ und $W_w = 4.0$. Für die zwischen den Elektronen verschiedener Bänder agierende Dichte-Dichte-Wechselwirkung wird $U' = \frac{U}{2}$ gewählt. Hieraus ergibt sich nach (3.13) $J_z = \frac{U}{4}$ (wie auch in [Rüegg05, Knecht05, Inaba06, Costi07]). Die Arbeit beschränkt sich auf die Untersuchung des paramagnetischen Falls, folglich werden Spinindizes gegebenenfalls vernachlässigt. Die QMC-Rechnungen werden für eine feste Temperatur $T = 1/\beta = 1/40$ ausgeführt. Diese ist in der Größenordnung der kritischen Temperatur für den Metall-Isolator-Übergang beim teilchen-loch-symmetrischen Grenzfall [Knecht05]. Für $\Delta = 0$ sind die ionischen Einteilchenniveaus gleich $\epsilon_n = \epsilon_w$. Damit können die Ergebnisse für eine Gesamtfüllung $n > n_{\text{halb}}$ größtenteils auf die Ergebnisse unterhalb der Halbfüllung $n < n_{\text{halb}}$ abgebildet werden (mit $n_{\text{halb}} = 2$ beim Zweibandproblem). Die Gesamtfüllung setzt sich hierbei aus den Füllungen der verschiedenen Orbitale zusammen

$$n = n_w + n_n = \sum_{\sigma} \langle n_{i_w\sigma} \rangle + \sum_{\sigma} \langle n_{i_n\sigma} \rangle . \quad (3.16)$$

Es ergeben sich Phasendiagramme (Abb. 3.11 und 3.21) und Füllungskurven (Abb. 3.6) spiegelbildlich für Gesamtfüllungen $n_{\text{halb}} + \delta$ zu Gesamtfüllungen $n_{\text{halb}} - \delta$.

3.3.1 Analytische Näherungslösung des J_z -Modells in Freier Theorie

Neben der numerischen Näherungslösung ist es immer interessant, die Ergebnisse mit Hilfe analytisch verfügbarer Näherungslösungen zu vergleichen und zu validieren. Zu diesem Zweck wird das Zweiband-Hubbard-Modell in der Freien Theorie behandelt, welche selbst eine Näherungsform in der Lokalen Theorie ist [Grewe96]. Die Lokale Theorie ist eine Störungsentwicklung in Bezug auf die interatomaren Transfermatrizelemente. Die Verwendung von lokalen Kumulanten-Green-Funktionen (kurz Kumulanten) an den einzelnen Gitterplätzen löst das *excluded volume* Problem formal und ermöglicht eine feynman-artige Störungstheorie. Diese Idee [Kubo62, Hubbard64b] und ihre Anwendung auf Probleme stark korrelierter Elektronensysteme [Kuramoto85, Vladimir90, Metzner91] sind wohlbekannt.

Im Wesentlichen basiert der Ansatz auf der Zerlegung des Hamilton-Operators in einen lokalisierten Anteil \hat{H}_0 und einen Transferanteil \hat{T}

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{T} = \sum_{\nu} \hat{h}_i + \hat{T} \quad , \quad (3.17)$$

wobei \hat{h}_i der Hamiltonian für den einzelnen Gitterplatz i ist und den Gitterplatz exakt, einschließlich aller lokaler Wechselwirkungen, beschreibt. Der Transferoperator \hat{T} enthält alle Hybridisierungsterme zwischen verschiedenen Atomen im Gitter.

Gemäß der zentralen Idee des Ansatzes wird das isolierte ionische Problem exakt im Vorhinein gelöst. Weil die Zahl der ionischen Zustände endlich ist, lässt es sich exakt lösen. Für eine d -Schale jedoch ergeben sich auch hier schon 1024 mögliche Zustände, die im Allgemeinen nicht analytisch diagonalisiert werden können. In der Praxis helfen dann Symmetrien oder eine Beschränkung auf wenige Valenzzustände (siehe [Hubbard64a]).

Der Transferoperator lautet

$$\hat{T} = \sum_{ij,mn} t_{ij}^{mn} \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{jn\sigma} \quad (3.18)$$

und beschreibt den Transfer von Elektronen zwischen zwei verschiedenen Gitterplätzen. Die Matricelemente t_{ij}^{mn} stellen den Überlapp des Orbitals m des Atoms i mit dem Orbital n des Atoms j dar und reflektieren direkt die Übergangswahrscheinlichkeit des Elektrons vom Zustand (i, m) in den Zustand (j, n) .

Zur Bestimmung der Einteilchen-Green-Funktionen $G_{im\sigma, jn\sigma'}$ auf dem Gitter müssen nun alle möglichen Wege im Gitter summiert werden. An den Kreuzungspunkten der einzelnen Wege müssen Vielteilchenvertizes höherer Ordnung eingesetzt werden, die der korrelierten Wechselwirkung der Elektronen Rechnung tragen. Die Näherungsstufe der Freien Theorie kann aus der Lokalen Theorie durch eine Wick-Zerschlagung der Vielteilchenvertizes höherer Ordnung in Produkte von Einteilchenvertizes abgeleitet werden. Dies ist der Hubbard-I-Lösung im Einband-Fall [Hubbard63] und im Multiband-Fall [Hubbard64a] äquivalent.

Die Näherung enthält elementare Korrelationseffekte wie den Mott-Übergang oder temperaturabhängige, fraktionale Spektralgewichte. Sie zeigt leider keine Lebensdauer-effekte

und hat eine kritische Wechselwirkung $U_c = 0$ für den Mott-Übergang. Für $U = 0$ erhält man die exakte *tight-binding*-Lösung. Jede nicht-verschwindende Wechselwirkung $U > 0$ führt im Einbandfall zur Separation des Bands in das obere und das untere Hubbard-Band. Der Wert der Näherung ist aber nicht zu unterschätzen, weil sie sowohl den *tight-binding*-Grenzfall $U = 0$ als auch den entgegengesetzten Starkkopplungsgrenzfall ($U/W \rightarrow \infty$) exakt enthält.

Die analytische Näherungslösung des Zweibandproblems in Freier Theorie macht die Diagonalisierung des ionischen Hamiltonians notwendig. In Unterschied zur originalen Formulierung durch Grewe, bei der ionische Transferoperatoren zum Einsatz kommen [Hubbard63, Grewe96], wird im Folgenden die Lehmann-Darstellung ausgenutzt und die Green-Funktion (siehe beispielsweise [Gasser01]) direkt bestimmt

$$G^{\hat{A}\hat{B}}(z) = \frac{1}{Z} \sum_{l,m} \langle \psi_l | \hat{B} \psi_m \rangle \langle \psi_m | \hat{A} \psi_l \rangle \frac{e^{-\beta E_m} + e^{-\beta E_l}}{z - E_l + E_m}, \quad \text{Im } z \neq 0. \quad (3.19)$$

Für das J_z -Modell ergibt sich der großkanonische Hamiltonian (3.12) im atomaren Grenzfall für den einzelnen Gitterplatz i zu

$$\begin{aligned} \lim_{t/U \rightarrow 0} \hat{H}_i = & - \mu \sum_{m,\sigma} \hat{n}_{im\sigma} + \frac{\Delta}{2} \sum_{\sigma} \left(\hat{n}_{i m=2\sigma} - \hat{n}_{i m=1\sigma} \right) \\ & + U \sum_m \hat{n}_{im\uparrow} \hat{n}_{im\downarrow} + U' \sum_{\sigma\sigma'} \hat{n}_{i m=1\sigma} \hat{n}_{i m=2\sigma'} - J_z \sum_{\sigma\sigma'} \hat{n}_{i m=1\sigma} \hat{n}_{i m=2\sigma'} \delta_{\sigma\sigma'}. \end{aligned} \quad (3.20)$$

Die atomaren Levels werden durch den Kristallfeldparameter Δ separiert. Außerdem enthält der Hamilton-Operator ausschließlich Besetzungszahloperatoren. Daher wird jede Basis in Teilchenzahlformulierung die Hamilton-Matrix diagonalisieren. Das Modellsystem ist außerdem paramagnetisch und folglich spin-entartet.

Die Eigenpaare der Hamiltonmatrix für den isolierten Gitterplatz sind in Tabelle 3.1 aufgelistet. In dieser Basis wird auch die Green-Funktion (3.19) mit $\hat{A} = \hat{c}_{m,\sigma}^\dagger$ und $\hat{B} = \hat{c}_{n,\sigma'}$ diagonal sein:

$$\left(G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{n\sigma'}}(z) \right) = \text{diag} \left(G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{w\uparrow}^\dagger \hat{c}_{w\uparrow}}(z), G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{w\downarrow}^\dagger \hat{c}_{w\downarrow}}(z), G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{n\uparrow}^\dagger \hat{c}_{n\uparrow}}(z), G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{n\downarrow}^\dagger \hat{c}_{n\downarrow}}(z) \right) \quad (3.21)$$

mit $\text{Im } z \neq 0$ für alle Gitterplätze i . Die Orbital des breiten (*wide*) und des schmalen (*narrow*) Bands sind mit w respektive n indiziert.

Mit Tabelle 3.1 ergibt sich die Green-Funktion $G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{w\sigma}^\dagger \hat{c}_{w\sigma}}(z)$ gemäß (3.19) explizit zu

$$\begin{aligned} G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{w\sigma}^\dagger \hat{c}_{w\sigma}}(z) = & \frac{1}{Z} \left(\frac{1 + e^{\beta(\mu + \frac{\Delta}{2})}}{z + \mu + \frac{\Delta}{2}} + \frac{e^{\beta(\mu + \frac{\Delta}{2})} + e^{\beta(2\mu + \Delta - U)}}{z + \mu + \frac{\Delta}{2} - U} + \frac{e^{\beta(\mu - \frac{\Delta}{2})} + e^{\beta(2\mu + U' - J_z)}}{z + \mu + \frac{\Delta}{2} - U' + J_z} + \right. \\ & \frac{e^{\beta(\mu - \frac{\Delta}{2})} + e^{\beta(2\mu + U')}}{z + \mu + \frac{\Delta}{2} - U'} + \frac{e^{\beta(2\mu - \Delta + U)} + e^{\beta(3\mu - \frac{\Delta}{2} - U - 2U' + J_z)}}{z + \mu + \frac{\Delta}{2} - 2U' + J_z} + \\ & \frac{e^{\beta(2\mu - U')} + e^{\beta(3\mu + \frac{\Delta}{2} - U - 2U' + J_z)}}{z + \mu + \frac{\Delta}{2} - U - U' + J_z} + \frac{e^{\beta(2\mu - U' + J_z)} + e^{\beta(3\mu + \frac{\Delta}{2} - U - 2U' + J_z)}}{z + \mu + \frac{\Delta}{2} - U - U'} + \\ & \left. \frac{e^{\beta(3\mu - \frac{\Delta}{2} - U - 2U' + J_z)} + e^{\beta(4\mu - 2U - 4U' + 2J_z)}}{z + \mu + \frac{\Delta}{2} - U - 2U' - J_z} \right) \end{aligned} \quad (3.22)$$

Zustand	Zahl der Teilchen	Energie
$ 0\rangle$	0	0
$\hat{c}_{1\uparrow}^\dagger 0\rangle, \hat{c}_{1\downarrow}^\dagger 0\rangle$	1	$-\mu - \frac{\Delta}{2}$
$\hat{c}_{2\uparrow}^\dagger 0\rangle, \hat{c}_{2\downarrow}^\dagger 0\rangle$	1	$-\mu + \frac{\Delta}{2}$
$\hat{c}_{1\uparrow}^\dagger \hat{c}_{1\downarrow}^\dagger 0\rangle$	2	$-2\mu - \Delta + U$
$\hat{c}_{2\uparrow}^\dagger \hat{c}_{2\downarrow}^\dagger 0\rangle$	2	$-2\mu + \Delta + U$
$\hat{c}_{1\uparrow}^\dagger \hat{c}_{2\uparrow}^\dagger 0\rangle, \hat{c}_{1\downarrow}^\dagger \hat{c}_{2\downarrow}^\dagger 0\rangle$	2	$-2\mu + U' - J_z$
$\hat{c}_{1\uparrow}^\dagger \hat{c}_{2\downarrow}^\dagger 0\rangle, \hat{c}_{1\downarrow}^\dagger \hat{c}_{2\uparrow}^\dagger 0\rangle$	2	$-2\mu + U'$
$\hat{c}_{1\uparrow}^\dagger \hat{c}_{2\uparrow}^\dagger \hat{c}_{2\downarrow}^\dagger 0\rangle, \hat{c}_{1\downarrow}^\dagger \hat{c}_{2\uparrow}^\dagger \hat{c}_{2\downarrow}^\dagger 0\rangle$	3	$-3\mu + \frac{\Delta}{2} + U + 2U' - J_z$
$\hat{c}_{1\uparrow}^\dagger \hat{c}_{1\downarrow}^\dagger \hat{c}_{2\uparrow}^\dagger 0\rangle, \hat{c}_{1\uparrow}^\dagger \hat{c}_{1\downarrow}^\dagger \hat{c}_{2\downarrow}^\dagger 0\rangle$	3	$-3\mu - \frac{\Delta}{2} + U + 2U' - J_z$
$\hat{c}_{1\uparrow}^\dagger \hat{c}_{1\downarrow}^\dagger \hat{c}_{2\uparrow}^\dagger \hat{c}_{2\downarrow}^\dagger 0\rangle$	4	$-4\mu + 2U + 4U' - 2J_z$

Tabelle 3.1: Eigenpaare der Hamiltonmatrix für den Hamiltonian (3.20) in Besetzungszahldarstellung

für $\sigma = \uparrow, \downarrow$. Hier ist \mathcal{Z} die ionische Zustandssumme. Die Green-Funktion für das zweite Band erhält man durch den Austausch $\Delta \rightarrow -\Delta$. Somit sind alle Komponenten der Matrixfunktion (3.21) bestimmt.

Im Rahmen der Freien Theorie wird die Gitter-Green-Funktion als Störungsreihe in Transfers und lokalen Green-Funktionen formuliert werden. Um diesen Zugang deutlicher zu machen, werden im Folgenden die lokalen Quantenzahlen m und σ für die Operatoren und die Green-Funktionen unterdrückt und in einer Matrixformulierung kodiert [Jakobi05]. Es ergibt sich

$$G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m,\sigma}^\dagger \hat{c}_{n,\sigma'}}(z) \equiv \underline{\underline{G}}_{\text{isol}}(z) \quad (3.23)$$

$$t_{ij}^{mm' \sigma\sigma'} \equiv \underline{\underline{T}}_{ij} \quad . \quad (3.24)$$

Die Transfermatrix ist diagonal in orbitalen Quantenzahlen m und m' und Spinquantenzahlen σ und σ' . Diese Gitter-Green-Funktion kann in Form einer Dysonreihe aufsummiert werden

$$\underline{\underline{G}}_{ij} = \underline{\underline{G}}_{\text{isol}} \left(\delta_{ij} + \underline{\underline{T}}_{ij} \underline{\underline{G}}_{\text{isol}} + \sum_k \underline{\underline{T}}_{ik} \underline{\underline{G}}_{\text{isol}} \underline{\underline{T}}_{kj} \underline{\underline{G}}_{\text{isol}} + \dots \right) \quad . \quad (3.25)$$

Die Näherung besteht darin, dass in den Produkten in (3.25) die Green-Funktion des isolierten Gitterplatzes steht und nicht der Vielteilchenvertex des traversierten Gitterplatzes. Die Näherung durch die Freie Theorie zerschlägt alle Korrelationsfunktionen höherer Ordnung, sodass die Gittersumme als *random-walk* durchführbar ist. Gl. (3.25) lässt sich vereinfachen zu

$$\underline{\underline{G}}_{ij} = \underline{\underline{G}}_{\text{isol}} \left(\delta_{ij} + \sum_k \underline{\underline{T}}_{ik} \underline{\underline{G}}_{kj} \right) \quad , \quad (3.26)$$

wobei die Matrix $\underline{\underline{T}}_{kj}$ alle elementaren Transfers von Gitterplatz i nach m enthält, die also keinen zwischenliegenden Gitterplatz streifen.

Gleichung (3.26) lässt sich durch eine Fourier-Transformation lösen

$$\underline{\underline{G}}_{\underline{k},\underline{k}'}(z) = \delta_{\underline{k},-\underline{k}'} \underline{\underline{G}}_{\text{isol}}(z) \left(\underline{\underline{1}} + \sum_{\underline{k}''} \underline{\underline{T}}_{\underline{k},\underline{k}''} \underline{\underline{G}}_{\underline{k}'',\underline{k}} \right) . \quad (3.27)$$

Im Fall des Zweibandmodells sind die elementaren Teilchentransfers in orbitaler Quantenzahl und Spinquantenzahl erhaltend. Somit ist auch die Transfermatrix $\underline{\underline{T}}$ diagonal in atomaren Quantenzahlen. Wie schon oben dargelegt, ist aber auch die atomare Green-Funktion $\underline{\underline{G}}_{\text{isol}}(z)$ diagonal. Daher wird die volle Green-Funktion (3.27) ebenfalls diagonal sein. Deshalb hat jede nicht-verschwindende Komponente der Green-Funktion die Form

$$\begin{aligned} G_{\underline{k}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z) &= \left(1 - G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z) T_{\underline{k}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}} \right)^{-1} G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z) \\ &= \left(G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z)^{-1} - T_{\underline{k}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}} \right)^{-1} , \end{aligned}$$

wobei die zweite Impulsquantenzahl wegen $\underline{\underline{G}}_{\underline{k},\underline{k}'}(z) \propto \delta_{\underline{k},-\underline{k}'}$ (ebenso $\underline{\underline{T}}_{\underline{k},\underline{k}'} \propto \delta_{\underline{k},-\underline{k}'}$) ignoriert werden kann.

Man erhält die lokale Zustandsdichte durch Summation über die vollständige Brillouin-Zone der \underline{k} -Raum aufgelösten Green-Funktionen (3.28)

$$G^{\hat{c}_{m,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,\sigma}}(z) = \sum_{\underline{k}} G_{\underline{k}}^{\hat{c}_{m,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,\sigma}}(z) . \quad (3.28)$$

Für den nicht-wechselwirkenden Grenzfall ($U = U' = J_z = 0$) ohne Kristallfeldaufspaltung ($\Delta = 0$) nimmt die ionische Green-Funktion (3.22) die einfache Form eines freien Propagators an

$$G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z) = \frac{1}{z + \mu} . \quad (3.29)$$

Fügt man (3.29) in (3.28) ein, so erhält man

$$G_{\underline{k}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z) = \frac{1}{z + \mu - t_{\underline{k}}} . \quad (3.30)$$

Die nicht-wechselwirkende lokale Green-Funktion kann man als Hilbert-Transformierte der freien Zustandsdichte $\rho_0(\epsilon) = \frac{1}{N} \sum_{\underline{k}} \delta(\epsilon - \epsilon_{\underline{k}})$ schreiben

$$G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z) = \int \frac{\rho_0(\epsilon) d\epsilon}{z + \mu - \epsilon} . \quad (3.31)$$

Man kann dann aus (3.28), (3.30) und (3.31) schließen

$$\int \frac{\rho_0(\epsilon) d\epsilon}{X - \epsilon} = \sum_{\underline{k}} \frac{1}{X - T_{\underline{k}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}} , \text{Im } X \neq 0 . \quad (3.32)$$

Analog schreibt man die lokale Green-Funktion der Freien Theorie

$$\begin{aligned} G_{\underline{k}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z) &= \sum_{\underline{k}} \frac{1}{G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z)^{-1} - T_{\underline{k}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}} = \int \frac{\rho_0(\epsilon) d\epsilon}{G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z)^{-1} - \epsilon} , \\ &\text{Im } G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{m\sigma}}(z) \neq 0 \quad \forall z . \end{aligned} \quad (3.33)$$

Die freie Zustandsdichte für das Bethe-Gitter ist

$$\rho_{0, \text{Bethe}}(\epsilon) = \frac{1}{\pi t_\alpha} \sqrt{1 - \left(\frac{\epsilon}{2t_\alpha}\right)^2} \quad (3.34)$$

mit der Hybridisierungsamplitude t_α ($\alpha = w, n$ für breites (*wide*) und schmales (*narrow*) Band). Durch Einsetzen der lokalen Green-Funktion (3.22) in (3.33) erhält man die analytische Näherungslösung des Zweibandmodells (3.12) in Freier Theorie

$$\begin{aligned} G^{\hat{c}_{w\sigma}^\dagger \hat{c}_{w\sigma}}(z) &= \int \frac{\rho_{0, \text{Bethe}}(\epsilon, t = t_w) d\epsilon}{G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{w\sigma}^\dagger \hat{c}_{w\sigma}}(z)^{-1} - \epsilon} \\ G^{\hat{c}_{n\sigma}^\dagger \hat{c}_{n\sigma}}(z) &= \int \frac{\rho_{0, \text{Bethe}}(\epsilon, t = t_n) d\epsilon}{G_{\text{isol}}^{\hat{c}_{n\sigma}^\dagger \hat{c}_{n\sigma}}(z)^{-1} - \epsilon} \end{aligned} \quad (3.35)$$

für schmales und breites Band beziehungsweise die volle Green-Funktion

$$\left(G^{\hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{n\kappa}}\right)(z) = \text{diag} \left(G^{\hat{c}_{w\uparrow}^\dagger \hat{c}_{w\uparrow}}(z), G^{\hat{c}_{w\downarrow}^\dagger \hat{c}_{w\downarrow}}(z), G^{\hat{c}_{n\uparrow}^\dagger \hat{c}_{n\uparrow}}(z), G^{\hat{c}_{n\downarrow}^\dagger \hat{c}_{n\downarrow}}(z) \right) \quad (3.36)$$

als analytische Näherung der Einteilchenlösung des Zweiband-Hubbard-Modells. Mit diesem Ergebnis werden die numerischen Resultate verglichen.

3.3.2 Das J_z -Modell bei Teilchen-Loch-Symmetrie

Für den teilchen-loch-symmetrischen Fall ist die Gesamtfüllung $n = n_{\text{halb}} = 2$, der Kristallfeldparameter $\Delta = 0$ und die Spektralfunktionen sind invariant unter der Transformation $\omega \rightarrow -\omega$. Ebenso sind die partiellen Füllungen der Bänder festgelegt $n_w = n_n = 1.0$. Die diesbezüglichen Ergebnisse der Arbeitsgruppe, die vor Beginn dieser Arbeit erzielt wurden [Knecht06, Knecht05], sollen hier nur kurz referiert werden. Mit zunehmender Wechselwirkung, ausgehend vom nicht-wechselwirkenden Fall und bei ausreichend niedriger Temperatur, durchlaufen beide Bänder konsekutive Mott-Übergänge. Für ausreichend schwache Wechselwirkung ($U < U_{c1} \approx 2.1$) sind die Elektronen beider Bänder itinerant und damit metallisch. Für eine starke Wechselwirkung ($U > U_{c2} \approx 2.6$) werden beide Bänder isolierend, die Elektronen sind lokalisiert. Im Zwischenbereich $U_{c1} < U < U_{c2}$ ist das eine Band metallisch, das andere ist isolierend. Leichte Variationen in der Temperatur ändern das Ergebnis nur unwesentlich [van Dongen06]. Dies ist gut zu verstehen, wenn man das Zweiband-Modell mit einem Modell zweier unterschiedlicher Bänder vergleicht, dessen einzelne Bänder Mott-Übergänge gemäß der Bandbreite t_m/U durchlaufen. In Abbildung 3.5 sind Spektralfunktionen für metallische, orbital-selektive Mott und isolierende Phase dargestellt. Eine ausführliche Diskussion findet sich in der Literatur [Knecht06, Knecht05, van Dongen06, Blümer07b].

3.3.3 Das dotierte J_z -Modell

Wie schon in der Einführung des Abschnitts angesprochen, ergibt sich durch die Kristallfeldsymmetrie $\Delta = 0$ eine Symmetrie für verschiedene Observablen wie Füllungen, Spektren oder auch die abgeleiteten Phasendiagramme in Bezug auf den halbgefüllten Fall n_{halb} . Für den kristallfeldsymmetrischen Fall beschränkt sich damit die folgende Diskussion der Ergebnisse, und es werden nur Systeme mit einer Gesamtfüllung $n > n_{\text{halb}}$ betrachtet. Die eigenen Resultate für das dotierte J_z -Modells wurden publiziert in [Jakobi09].

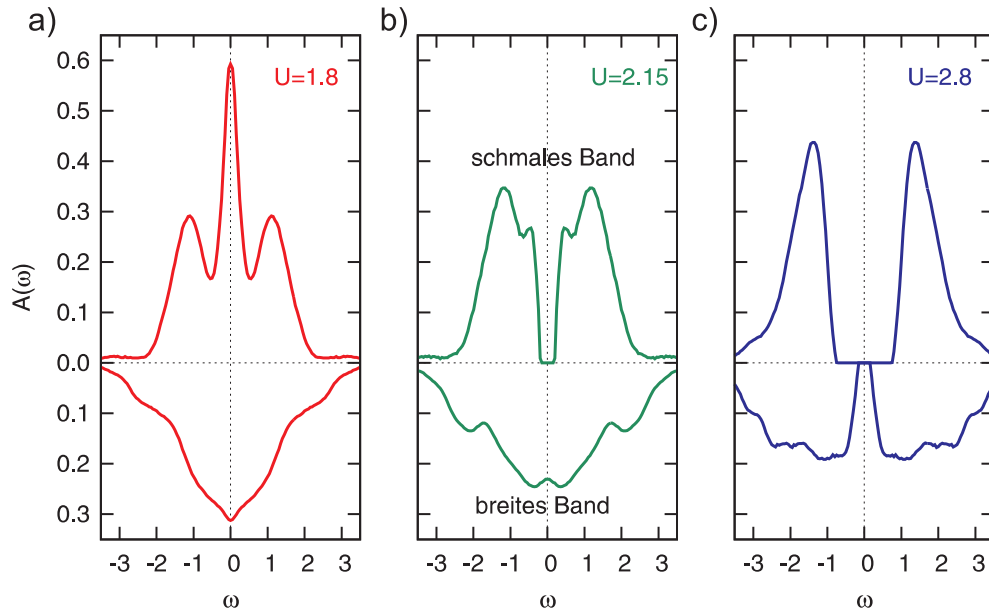


Abbildung 3.5: Spektralfunktionen bestimmt mit DMFT(QMC) für eine (a) metallische ($U = 1.8 < U_{c1}$), eine (b) orbital-selektive Mott- ($U = 2.15$) und eine (c) isolierende Phase ($U = 2.8 > U_{c2}$) für das teilchen-loch-symmetrische Modell ($n = n_{\text{halb}} = 2$, $\Delta = 0$) [Blümer09].

Band-selektive Füllungen

Die band-selektiven Füllungen sind für verschiedene Wechselwirkungen $1.8 \leq U \leq 2.8$ als Funktion der Gesamtfüllung in Abb. 3.6 abgebildet. Für kleine Abweichungen vom halbgefüllten Fall trägt ausschließlich das breite Band zur Dotierung des Systems bei, während das schmale Band in sehr guter Näherung halbgefüllt bleibt. In Konsequenz gilt für das System in diesem schwach dotierten Bereich $n_w \simeq n - 1$, das schmale Band ist inkompressibel und isolierend. Man erwartet, dass sich der Dotierungsbereich, in welchem nur das breite Band die Füllung kompensiert, mit zunehmendem U ausbreitet, da der Abstand der ionischen Zustände mit U zunimmt. Diese Bereiche werden durch scharfe Knicken in den partiellen Füllungskurven begrenzt, die abseits dieser Bereiche sehr steil, nahezu linear ansteigen: Hier werden dann zusätzliche Elektronen auch im schmalen Band platziert, d.h. die Dotierung findet in beiden Bändern statt. Folglich schwächt sich die Steigung der Füllungskurve für das breite Band signifikant ab. Die korrespondierende Phasengrenze wird später diskutiert. Man beachte, dass sich die Füllungskurven für schmales und breites Band in Abb. 3.6 bei $n \simeq 2.4$ kreuzen, mit einer leichten Abhängigkeit von der Wechselwirkung U (siehe dazu auch Abb. 3.11).

Doppelbesetzungen

In Abb. 3.7a werden die DMFT(QMC)-Ergebnisse für die intraorbitale Doppelbesetzung $\langle \hat{n}_{im\uparrow} \hat{n}_{im\downarrow} \rangle$ ($m \in \{w, n\}$) des breiten (*wide*) und des schmalen (*narrow*) Bands präsentiert. Im schwach dotierten Bereich ($n < 2.1$) der OSMP (mit $U \gtrsim 2.2$) ist die intraorbitale

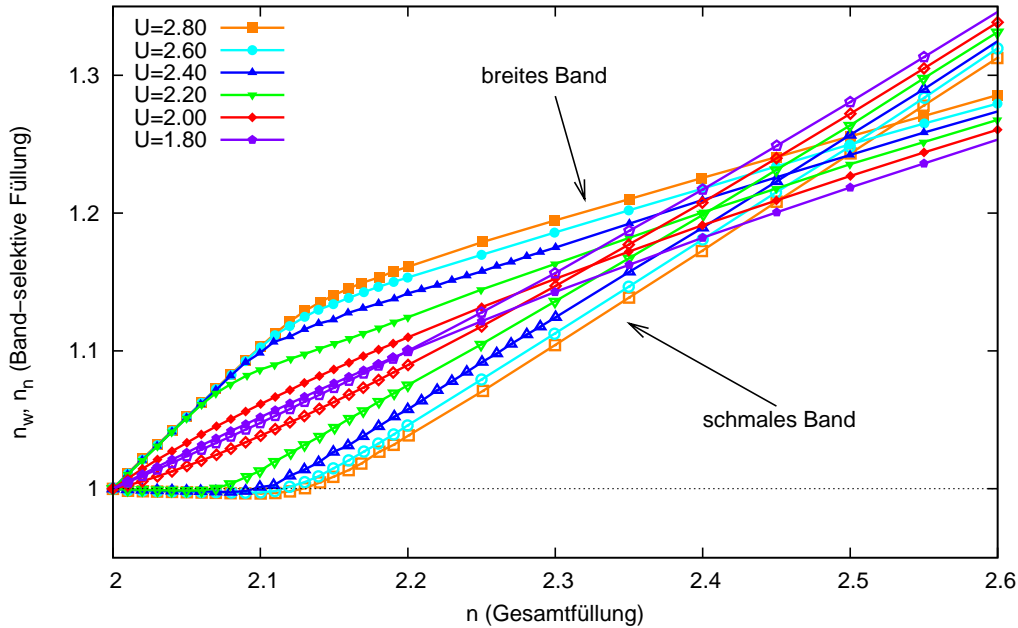


Abbildung 3.6: Band-selektive Teilchenzahlen n_w, n_n für das Zweibandmodell in Abhängigkeit der Gesamtfüllung n für verschiedene Wechselwirkungen U . Offene Symbole stellen das schmale, geschlossene Symbole das breite Band dar.

Doppelbesetzung für das schmale Band stark unterdrückt: Wie es sich auch in den Füllungskurven darstellt, ist das Orbital des schmalen Bands effektiv nur einfach besetzt, die einzelnen Elektronen sind lokalisiert. In diesem Bereich ($n \lesssim 2.1$) nimmt die Doppelbesetzung des breiten Bands deutlich mit zunehmender Coulomb-Wechselwirkung U ab. Im stärker dotierten Bereich ($n \gtrsim 2.1$) kehrt sich die Situation um: Die Doppelbesetzung wird im schmalen Band mit zunehmender Wechselwirkung unterdrückt, während die intraorbitale Doppelbesetzung für das breite Band nahezu wechselwirkungsunabhängig wird.

Wie sich noch zeigen wird, sind beide Bänder in diesem Bereich metallisch und zeigen signifikante Zustandsdichten im Bereich der Fermi-Kante, wobei die des schmalen Bands erheblich größer ist. Folglich nehmen die mittlere Füllung und die Konzentration doppelt besetzter Orbitale schneller im schmalen Band zu als im breiten Band für Füllungen $n \gtrsim 2.1$. Wie auch bei den Füllungskurven ergibt sich ein Kreuzungspunkt für die intraorbitalen Doppelbesetzungen, d.h. ein Punkt, bei dem beide Orbitale gleichermaßen wahrscheinlich doppelt besetzt werden, bei $n \simeq 2.5$. Für Füllungen $n \gtrsim 2.5$ ist die Doppelbesetzungswahrscheinlichkeit des schmalen Bands damit *größer*. Die schwache U -Abhängigkeit im mittleren Dotierungsbereich legt nahe, dass die Schwachkopplungstheorie das Verhalten gut beschreiben wird. Dies wird in einem der folgenden Absätze weiter diskutiert werden. Die Kreuzungspunkte und die scheinbare Wechselwirkungsunabhängigkeit lassen sich deutlich in Abb. 3.7b sehen, wo QMC Ergebnisse für die intraorbitalen Doppelbesetzungen für das gesamte Dotierungsspektrum $2 \leq n \leq 4$ dargestellt sind. Die Ergebnisse in Schwachkopplungstheorie (Hartree-Fock) und die wechselwirkungsfreien Resultate sind zum Vergleich ebenfalls eingetragen. Die Ableitung der Hartree-Fock-Gleichungen findet sich in Anhang A.2.

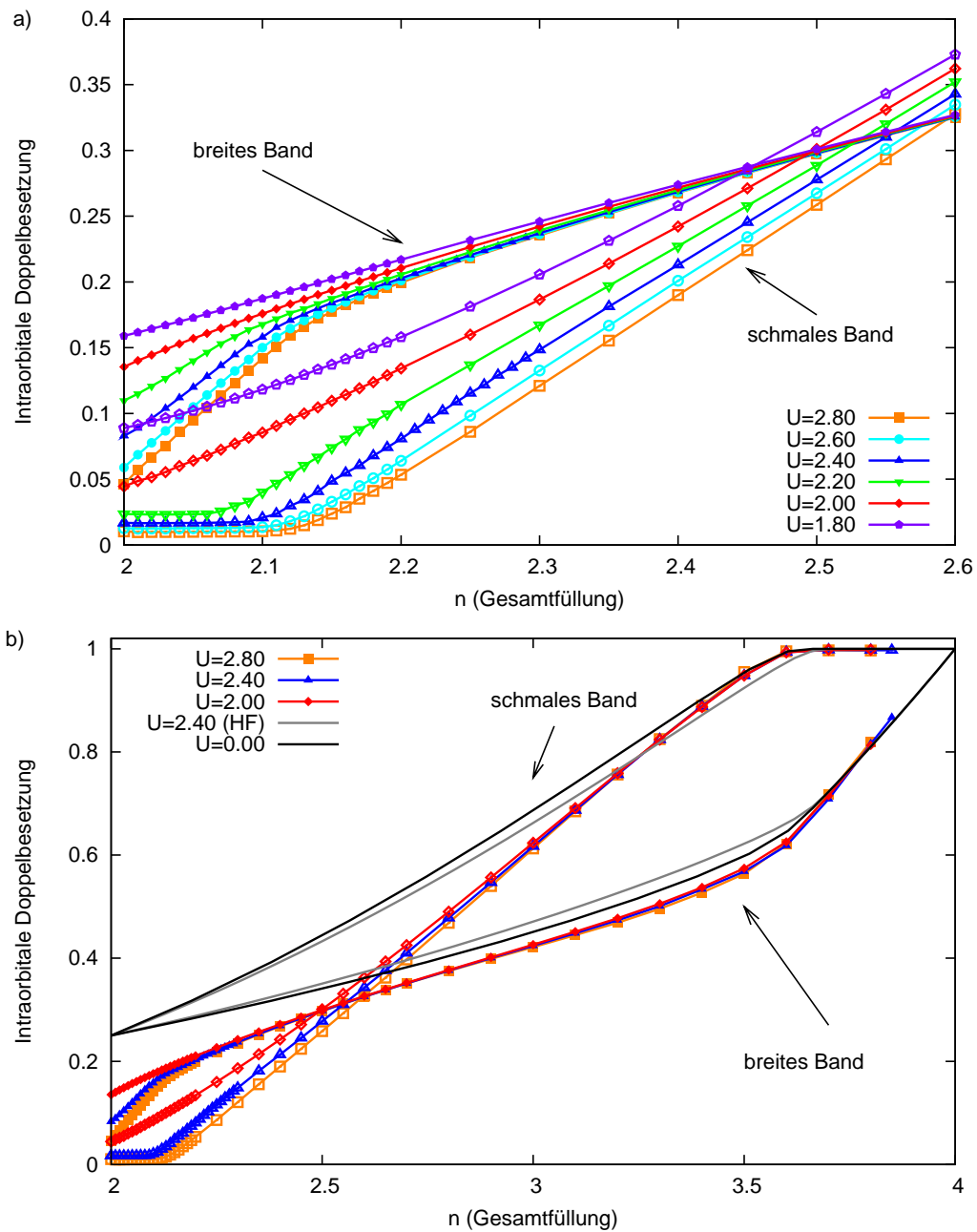


Abbildung 3.7: Intraorbitale Doppelbesetzung für verschiedene Wechselwirkungen U als Funktion der Füllung für das Zweibandmodell. Für das breite Band (geschlossene Symbole) zeigt sich in (a) für einen kleineren Dotierungsausschnitt und in (b) für den gesamten Dotierungsbereich $2 \leq n \leq 4$, dass die intraorbitale Doppelbesetzung für Füllungen $n \gtrsim 2.2$ nahezu unabhängig von den mittleren Wechselwirkungen U ist. In (b) sind zusätzlich die Ergebnisse in Hartree-Fock für $U = 0$ (schwarz) und $U = 2.4$ (grau) zum Vergleich eingetragen.

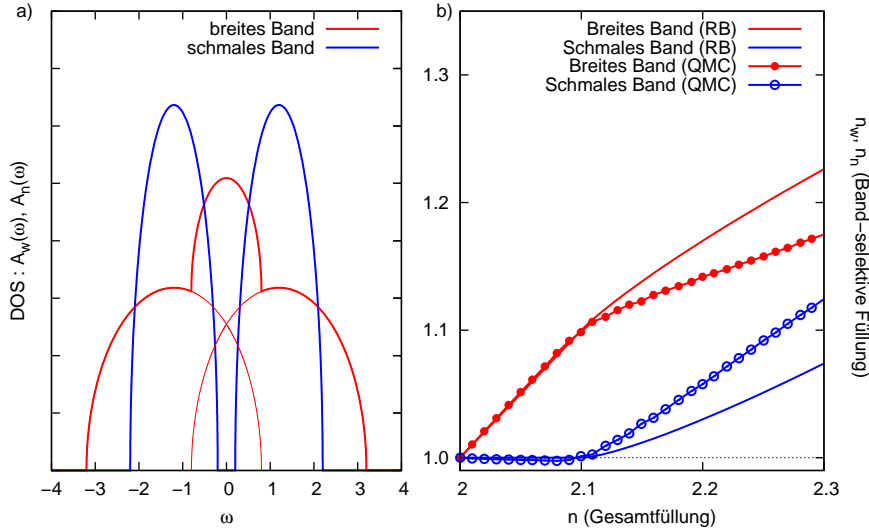


Abbildung 3.8: (a) Zustandsdichte des *rigid band*-Modells für eine halb elliptische Bethe-Zustandsdichte und Bandbreiten $W_n = 2$, $W_w = 4$ für eine Wechselwirkung $U \simeq 2.4$. (b) Bandspezifische Füllung für das *rigid band*-Modell, verglichen mit den numerischen QMC-Resultaten für $U = 2.4$ und $T = 1/40$. Ganz offenkundig beschreibt das Verhalten des *rigid band*-Modells die numerischen Resultate recht gut: Das Pinning der Füllung des schmalen Bands wird treffend abgebildet.

Der wesentliche Mechanismus, der die band-selektiven Füllungen und Doppelbesetzungen im schwach dotierten Bereich beschreibt, kann auf Grundlage eines einfachen *rigid band*-Modells⁸ mit zwei verschiedenen Bändern und ausschließlich intraorbitaler Kopplung verstanden werden. Ein Vergleich der band-spezifischen Füllungen des *rigid band*-Modells (siehe Abb. 3.8) mit denen der QMC-Ergebnisse zeigt eine gute Übereinstimmung für kleine Dotierungen mit $n \lesssim 2.1$. Folglich lassen sich das Pinning und die Lokalisierung der Elektronen für das schmale Band als Konsequenz der Einteilchenlücke im Spektrum verstehen. Nimmt man außerdem an, dass die intraorbitale Doppelbesetzung für das schmale Band eine Funktion der Füllung ist (siehe dazu minimale und maximale Doppelbesetzungen in Abb. 3.9), so muss diese in diesem Dotierungsregime ebenfalls gepinnt sein; dies stimmt völlig mit den numerischen Ergebnissen in QMC überein.

Der Gültigkeitsbereich des *rigid band*-Modells ist natürlich beschränkt und gilt nur für eine Gesamtfüllung $n < 2.1$. Im Unterschied zum QMC-Resultat wächst die Teilchenzahl im breiten Band schneller mit zunehmender Gesamtfüllung an als im schmalen Band. Diese Abweichungen lassen sich durch Korrelationen in der metallischen Phase ($n > 2.1$) erklären, die die Ausbildung einer Kondo-Resonanz in beiden Bändern verursachen und

⁸Für das hier verwendete *rigid band*-Modell werden an der Position der Einteilchenanregung ϵ und der Zweiteilchenanregung $\epsilon + U$ freie Elektronendispersionen angenommen.

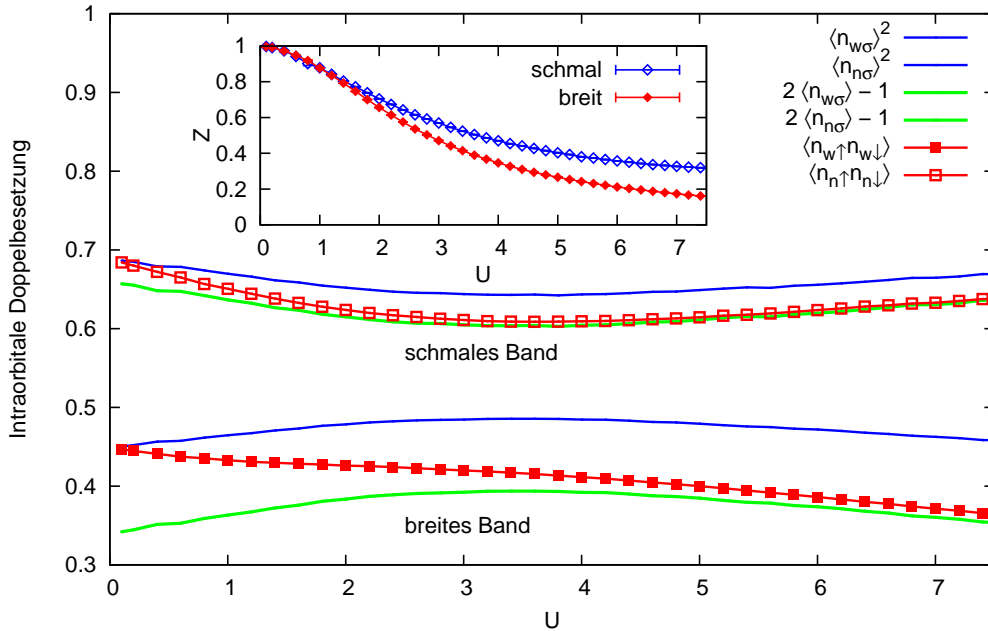


Abbildung 3.9: Intraorbitale Doppelbesetzung als Funktion der Wechselwirkung U für eine Gesamtfüllung $n = 3$ (Quadrate). Im Wechselwirkungsbereich $2.5 \lesssim U \lesssim 5$ ist die intraorbitale Doppelbesetzung nur schwach von der U abhängig. Dichteabhängige obere und untere Grenze ergeben sich aus minimaler (grüne Linien) und maximaler (blaue Linien) Korrelation. Im Inset ist das Quasiteilchengewicht der beiden Bänder abgebildet. Zu beachten ist, dass die Doppelbesetzung und das Quasiteilchengewicht für das schmale Band größer sind, auf Grund der größeren Füllung im schmalen Band bei $n = 3.0$.

im Bereich der Fermi-Kante damit eine erhebliche Abweichung der *rigid band*-Modell Ergebnisse von den QMC-Ergebnissen und auch der realen Situation bewirken.

Im Folgenden wird die bemerkenswert schwache Abhängigkeit der intraorbitalen Wechselwirkung des schmalen und des breiten Bands für $n \gtrsim 2.5$ diskutiert werden. Bevor die Ergebnisse mit störungstheoretischen Ergebnissen verglichen werden, wird die sehr schwache Abhängigkeit der Doppelbesetzungen für eine Gesamtteilchenzahl $n = 3$ über einen weiten Wechselwirkungsbereich $0 \leq U \lesssim 7$ illustriert. In Abb. 3.9 zeigt sich tatsächlich, dass die Doppelbesetzungen nahezu unverändert über einen sehr breiten Wechselwirkungsbereich sind. Angesichts der Tatsache, dass diese für $2 \lesssim U \lesssim 4$ praktisch konstant sind, lässt sich eine Übereinstimmung der QMC-Resultate mit Ergebnissen einer Schwachkoppelungsstörungstheorie erwarten. Wie sich in Abb. 3.7b zeigt, sind die Ergebnisse konsistent. In Abb. 3.7b ist offenkundig, dass das breite Band zumindest für $n \lesssim 3$ besser mit der

Störungstheorie übereinstimmt als das schmale, ganz in Übereinstimmung mit der Erwartung, da die effektive Wechselwirkung (bezogen auf die Bandbreite) für das schmale Band größer ist als für das breite Band. Dies wird auch bestätigt, wenn man einen direkten Blick auf die Quantenfluktuationen wirft (Abb. 3.10), die die Korrelationseffekte um die Hartree-Fock-Lösung herum auflösen. Tatsächlich sind diese Fluktuationen für das schmale Band im Bereich kleiner Dotierung $n \lesssim 2.7$ am größten. Die hervorragende Übereinstimmung der QMC-Ergebnisse für das schmale Band mit denen der Störungstheorie für starke Dotierung $n \gtrsim 3.4$ ergibt sich zwangsläufig aus der Abwesenheit einfach- und unbesetzter Orbitale im schmalen Band. Hier ist das schmale Band fast vollständig, d.h. mit zwei Elektronen pro Gitterplatz, gefüllt.

Zwischen einer isolierenden Starkkopplungsphase und einer metallischen Schwachkopplungsphase erwartet man einen Metall-Isolator-Übergang. Wie schon in der Einführung zu Abschnitt 3.3 erwähnt, wurden weitere Mott-Phasen, sogar mit vergleichbarer, kritischer Wechselwirkung, bei Viertel- und Dreiviertelfüllung schon in früheren QMC-Untersuchungen des $SU(4)$ symmetrischen Zweiband-Modells gefunden [Rozenberg97]. Ein wesentlicher Unterschied zur hier betrachteten Situation ergibt sich aus der Vernachlässigung der Austauschkopplung, welche die Mott-Phasen bei Viertel- und Dreiviertelfüllung deutlich unterdrückt und die kritischen Wechselwirkungen erheblich erhöht. Damit verschieben sich bei diesen Füllungen die Phasengrenzen zu viel größeren kritischen Wechselwirkungen U_c . Das lässt sich leicht einsehen, wenn man die Energiekosten einer Ladungsfluktuation im atomaren Limes vergleicht: $\frac{1}{4}U$ bei $n = 1$ oder $n = 3$, verglichen mit $\frac{7}{4}U$ bei $n = 2$; beides für $J = U/4, U' = U/2$. Das wurde numerisch für $SU(2)$ symmetrische Wechselwirkungen bestätigt [Inaba07]. Im hier dargelegten Fall wird sich das System metallisch verhalten (bei $n = 3$) bis zu einer kritischen Wechselwirkung $U_c \gtrsim 20$, was deutlich oberhalb der mit QMC zugänglichen Wechselwirkungen ist.

Mit den Daten in Abb. 3.9 lässt sich klar ein Phasenübergang bei $n = 3$ und $U \lesssim 7$ ausschließen: Die Doppelbesetzung und auch das Quasiteilchengewicht (Inset) sind absolut glatte Funktionen der Wechselwirkung, d.h. sie haben keine Unstetigkeiten und zeigen auch keine Hysterese, wie es für einen Metall-Isolator Übergang typisch wäre.

Das Phasendiagramm

In diesem Abschnitt wird das Phasendiagramm des Systems als Funktion der Wechselwirkung U und der Gesamtfüllung n im Hinblick auf dessen Metallizität diskutiert. Das Zweibandmodell zeigt drei Phasen: Eine isolierende Phase des Zweibandmodells, eine orbital-selektive Mott-Phase (OSMP), in welcher das eine Band metallisch ist, das andere isolierend und eine metallische Phase, bei der keines der Bänder isolierend ist. Bekanntermaßen existieren alle drei Phasen schon bei Halbfüllung ($n = 2$) in teilchen-loch-symmetrischer Konfiguration, wo sich die Phasengrenzen für $U_{c1} \simeq 2.1$ zwischen metallischer Phase und OSMP und für $U_{c2} \simeq 2.6$ zwischen OSMP und isolierender Phase ergeben.

Für das dotierte System ($n \neq 2$) ergibt sich schon aus der Betrachtung der bandselektiven Füllungen und der intraorbitalen Doppelbesetzungen, dass das schmale Band für nicht allzu schwache Wechselwirkungen U und bei schwachem Doping im isolierenden und halb-gefüllten Zustand fixiert bleibt. Da sich in diesem Bereich die Teilchenzahl des breiten Bands wesentlich mit der Gesamtteilchenzahl ändert (gemäß $n_w \simeq n - 1$), erwartet man, dass das breite Band für diese (U, n) -Werte metallisch sein muss. Entsprechend ist das Pinning des schmalen Bands ein Maß für die Existenz einer OSMP. Alternativ dazu stellt

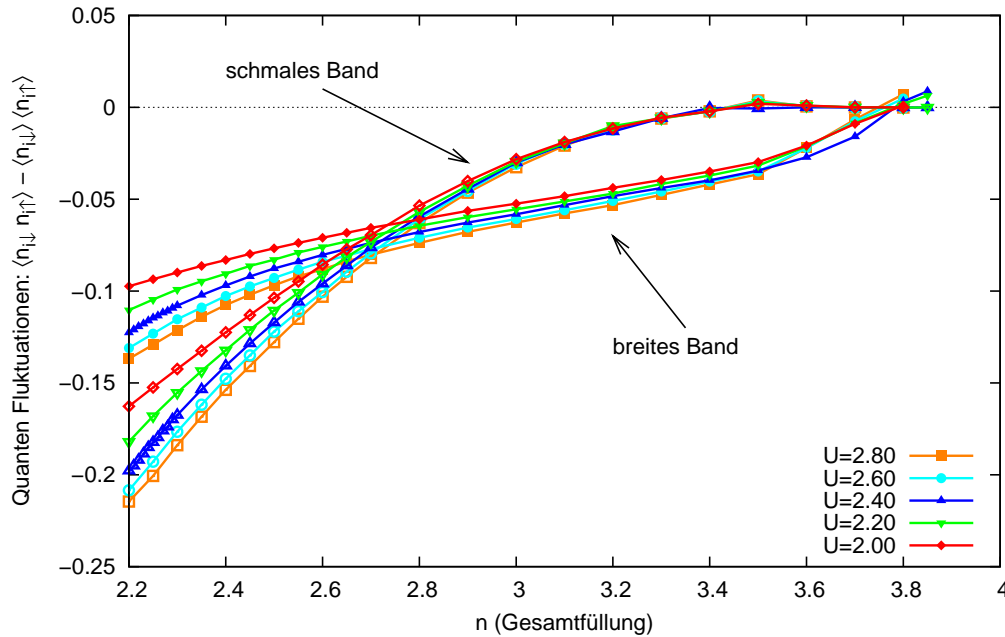


Abbildung 3.10: Die $\uparrow\downarrow$ -Dichte-Dichte-Korrelationsfunktion für Gesamtfüllungen $n \gtrsim 2.2$, die den Quantenfluktuationen der intraorbitalen Doppelbesetzung um das unkorrelierte Limit entsprechen. Die Korrelationen sind gewöhnlich negativ, weil die erhöhte \uparrow -Dichte auf einem Gitterplatz eine reduzierte \downarrow -Dichte bedingt. Bei festgehaltener Wechselwirkung U nimmt die Amplitude der Korrelationsfunktion monoton mit der Gesamtfüllung ab, weil der verfügbare Phasenraum für Dichtefluktuationen mit zunehmender Dotierung abnimmt.

man fest, dass bei größerer Dotierung beide Bänder ihre Füllung mit der Gesamtfüllung ändern, was ein Hinweis auf die Metallizität beider Bänder ist. Man erwartet, dass in der paramagnetischen Phase keine isolierenden Zustände gleichzeitig für beide Bänder existieren, weil wenigstens eines der Bänder eine fraktionelle Füllung aufweist und unbesetzte elektronische Zustände an der Fermi-Kante besitzt.

Zusammenfassend ergibt sich für die paramagnetische Phase ein sehr einfaches Kriterium für die OSMP als Funktion von Dotierung n und Wechselwirkung U auf Basis der bandselektiven Füllungen: Falls das schmale Band abseits der Halbfüllung fixierte Füllung zeigt, ist das System in einer OSMP, ansonsten ist es metallisch.⁹

Das Phasendiagramm, wie es auf dem obengenannten Kriterium (und den band-spezifischen Füllungen $n_n(n)$ und $n_w(n)$) basiert, ist in Abhängigkeit von der Gesamtfüllung in Abb. 3.11 für moderate Wechselwirkungen $U \leq 3$ und schwache Dotierung $n \lesssim 2.2$ dargestellt. Man stellt fest, dass die isolierende Phase, die - wie oben argumentiert - nur bei Halbfüllung existieren kann, eingebettet ist in eine OSMP, die von $U \simeq 2.1$ bis $U = \infty$ reicht und

⁹Selbstverständlich muss dieses Kriterium zur Bestimmung des Phasendiagramms mit der Betrachtung anderer Observabler überprüft werden, die Aufschluss über die dynamischen Eigenschaften des Systems geben. Es zeigt sich, dass die Spektren des breiten und des schmalen Bands an der Fermi-Kante in vollem Einklang mit dem Phasendiagramm stehen und zu den gleichen Ergebnissen führen.

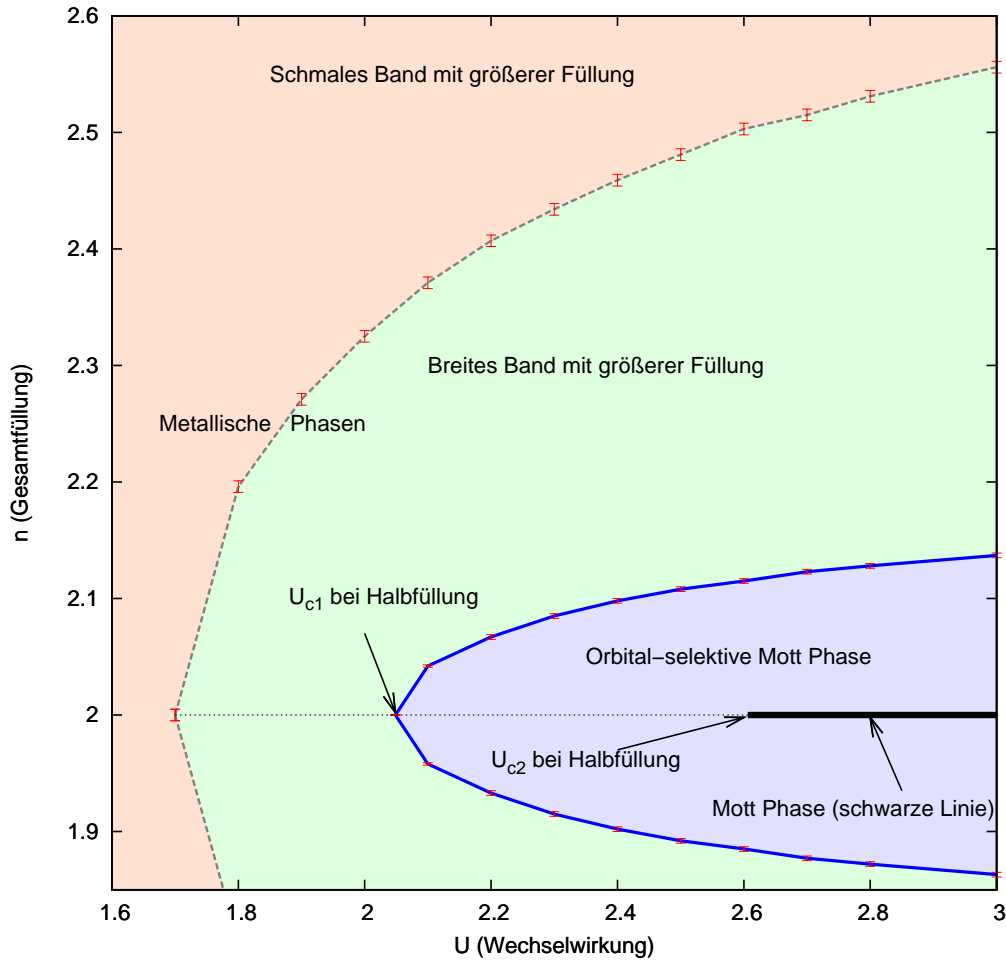


Abbildung 3.11: Orbital-selektives Mott-Phasendiagramm des Zweibandmodells für Gesamtteilchenzahlen $1.85 \leq n \leq 2.6$. Für eine Wechselwirkung $U < U_{c1}$, sind beide Bänder bei jeder Dotierung metallisch. Die isolierende Phase bei Halbfüllung (schwarze Linie) existiert nur für $U > U_{c2}$.

selbst wiederum in eine rein metallische Phase eingebettet ist. Wie sich in der Abbildung sehen lässt, können diese metallischen Zustände bei fixer Wechselwirkung $U \gtrsim 2.1$ nur für eine endliche, nicht-verschwindende Dotierung existieren. Dieses QMC-Phasendiagramm ist in qualitativer Übereinstimmung mit Ergebnissen variationeller Rechnungen [Rüegg05]. Zu bemerken ist, dass das breite Band in der die OSMP bei Halbfüllung in einem Nicht-Fermi-Flüssigkeitszustand ist [Blümer07b]. Auf Grund von Stetigkeitsargumenten ist daher zu erwarten, dass die OSMP bei Dotierung ebenfalls in einem Nicht-Fermi-Flüssigkeitszustand ist. Hinweise auf einen derartigen Nicht-Fermi-Flüssigkeitszustand lassen sich in der Selbstenergie und dem Quasiteilchengewicht finden und werden weiter unten diskutiert.

Das Phasendiagramm in Abb. 3.11 ist in guter Übereinstimmung mit dem Phasendiagramm des Grundzustands in der Literatur im $SU(2)$ symmetrischen Limit ($J_z = J_\perp = U/4$) [Inaba07]. Die kritischen Wechselwirkungen bei Halbfüllung unterscheiden sich leicht (ca. 10%). Für starke Wechselwirkungen $U \gtrsim 3$ ist die OSMP im $SU(2)$ -Fall jedoch stärker

ausgedehnt.

Die rein metallische Phase in Abb. 3.11 lässt sich in zwei Domänen aufteilen, je nachdem welches der beiden Orbitale stärker dotiert ist (siehe auch Abb. 3.6). Die OSMP ist in eine Domäne eingebettet, in welcher das breite Band den größeren Anteil an Elektronen besitzt, welche wiederum in eine Domäne eingebettet ist, in der das schmale Band den größeren Anteil der Elektronen hat. An der Grenze zwischen diesen beiden Domänen (grau gestrichelte Linie) ist die Teilchenzahl in beiden Bändern gleich, was den Kreuzungspunkten der Füllungskurven bei fester Wechselwirkung in Abb. 3.6 entspricht. Der Starkwechselwirkungslimes dieser Crossover-Grenze konvergiert gegen $n = 3.0$ für $U \rightarrow \infty$. Man erwartet nämlich, dass in allen Mott-Phasen beide Bänder asymptotisch gleichermaßen gefüllt werden, im Besonderen auch bei Dreiviertelfüllung (mit $U_c \gtrsim 20$, siehe [Inaba07]). Daher sollte die Crossover-Grenze entweder ihre Fortsetzung in der Mott-Phasenlinie finden oder gegen diese für $U > U_c$ konvergieren.

Spektralfunktionen

Neben den statischen Observablen sind gerade die dynamischen Größen, darunter die Spektralfunktionen, besonders interessant. Das spektrale Gewicht um die Fermi-Kante ist ein konkretes Maß für das Quasiteilchengewicht der Elektronen. Weil in der QMC-Rechnung die Green-Funktionen an der imaginären Achse bestimmt werden, steht die Spektralfunktion nicht direkt als Observable zur Verfügung (siehe dazu auch Abschnitt 2.1 und im Detail Abschnitt 2.1.2). Die Green-Funktion muss daher analytisch fortgesetzt werden. Dies geschieht in dieser Arbeit mit Hilfe der Maximum-Entropie-Methode (MEM, siehe Anhang A.5).

Um die Dotierungsabhängigkeit und den Einfluss eines zweiten Bands besser zu verstehen, ist es hilfreich, die Spektralfunktionen des Zweibandmodells mit denen einer Einband-Rechnung zu vergleichen. So lässt sich relativ klar erkennen, was generische Einbandeffekte sind und was durch das zusätzliche Orbital verursacht wird.

Die Spektralfunktionen des breiten Bands für das Zweibandmodell werden in Abb. 3.12a (links) den Spektralfunktionen eines Einbandmodells für identische Parameter gegenübergestellt Abb. 3.12b (rechts). Das Einbandmodell entspricht dem Grenzfall des Zweibandmodells mit verschwindender interorbitaler Kopplung ($U' \rightarrow 0$, $J_z \rightarrow 0$). Die Spektralfunktionen des breiten Bands in Abb. 3.12a sind charakteristisch für eine typische Zustandsdichte des breiten Bands in der OSMP. Kleine Änderungen in der Wechselwirkung U verändern das Bild nur unwesentlich.

Im Zweibandmodell ist das Spektrum stärker verbreitert als im Einbandmodell. Dies lässt sich mit einer höheren Streuamplitude im Zweibandmodell erklären, da in diesem mehr wechselwirkende Elektronen existieren und damit mehr Wechselwirkungskanäle offen sind. Im Einbandfall (Abb. 3.12b, rechts) ist die Kondo-Resonanz stärker ausgeprägt und die Täler zwischen Quasiteilchenresonanz und Hubbard-Bändern treten, im Besonderen bei den schwächer dotierten Spektren, deutlicher hervor. Im Zweibandmodell zeigt sich im schwach dotierten Bereich zusätzlich eine kleine Vertiefung im Spektrum an der Fermi-Kante. Dieses Phänomen ist gut bekannt aus einer früheren Arbeit [Knecht05] und kann dem Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten in der OSMP zugeordnet werden. Die gleiche Art Vertiefung findet sich in der Hubbard-III-Lösung oder, gleichwertig dazu, auch in der exakten Lösung des halbgefüllten Falicov-Kimball Modells, welches eine Nicht-Fermi-Flüssigkeit beschreibt. Man beachte, dass die Vertiefung im Spektrum bis hin zu $n = 2.10$, der

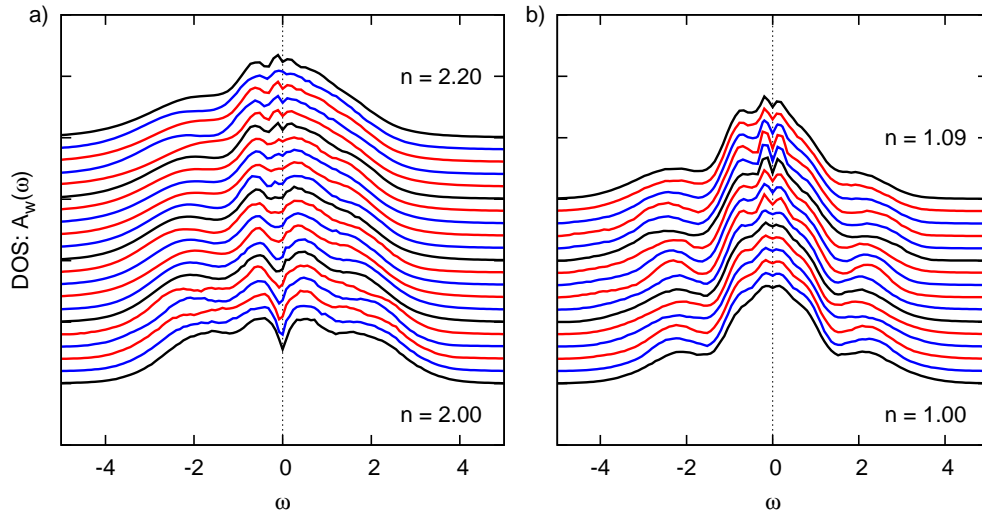


Abbildung 3.12: Spektralfunktionen für verschiedene Gesamtfüllungen nahe der Halbfüllung (a) für das breite Band im Zweibandmodell mit einer Wechselwirkung $U = 2.4$ und (b) für ein Einbandmodell mit identischen Parametern (Bandbreite $W = 4$, Wechselwirkung $U = 2.4$, Temperatur $T = 1/40$). Die Spektren verschiedener Füllung sind äquidistant verschoben, damit sie besser unterscheidbar sind. Die Gesamtfüllung des Systems nimmt von vorne nach hinten zu, für das Zweibandmodell (a) von $n = 2.00$ in Schritten von $\Delta n = 0.01$ hin zu $n = 2.20$. Die Füllung im Einbandfall (b) ist so eingestellt, dass das gegenübergestellte Spektrum auf gleicher Höhe dieselbe Füllung hat. Die feinen Strukturen an der Fermi-Kante (besonders auffällig in (b), hinten) sind auf numerisches Rauschen bei der MEM zurückzuführen.

Phasengrenze der OSMP für $U = 2.40$, besteht. Für größere Füllungen ist die Vertiefung in der Spektralfunktion nicht mehr vom unvermeidlichen numerischen Rauschen zu unterscheiden. Im Einbandfall treten ebenfalls Vertiefungen an der Fermi-Kante auf, die aber sehr viel schwächer ausgeprägt sind und daher ausnahmslos auf numerisches Rauschen zurückgeführt werden können.

Das schmale Band ändert sich beim Eintritt in die OSMP stärker. Daher wird hier das schmale Band für verschiedene Wechselwirkungen dem Resultat für ein vergleichbares Einbandmodell gegenübergestellt. Hierfür wird eine auf die kritische Wechselwirkung des Mott- bzw. des OSMP-Übergangs bezogene Wechselwirkungsstärke definiert mit $\tilde{U}^{(1)} \equiv U/U_c^{(1)}$ und $\tilde{U}^{(2)} \equiv U/U_c^{(2)}$ für das Ein- und das Zweibandmodell. Die numerischen Werte sind ungefähr durch

$$\begin{array}{ll} U_c^{(1)} \approx 2.35 & \text{Einbandmodell} \\ U_c^{(2)} \approx 2.10 & \text{Zweibandmodell} \end{array}$$

gegeben. Die Parametersets für das schmale und das breite Band werden als vergleichbar verstanden, wenn ihre skalierten Größen \tilde{U} gleich sind.¹⁰

¹⁰In der tatsächlichen QMC-Rechnung muss beachtet werden, dass die kritischen Wechselwirkungen leicht

Ein derartige Reskalierung der Wechselwirkung ist notwendig, weil der relevante Parameter $\tilde{U} - 1$ (d.h. der Abstand von der Mott-Phasengrenze) und im Besonderen sein Vorzeichen ist. Nur kleine Änderungen in der kritischen Wechselwirkung $U_c^{(i)}$ haben im interessierenden Phasenbereich einen deutlichen Einfluss auf genau diesen Abstand. Mit der Reskalierung der Energieskala über eine kritische Wechselwirkung müssten auch die anderen Energievariablen (wie Frequenzen, Temperaturen, etc.) reskaliert werden. Weil aber die kritischen Wechselwirkungen nur um $\lesssim 10\%$ voneinander abweichen, sind die Effekte weniger deutlich und machen den quantitativen Vergleich schwieriger. Es ist nicht zu erwarten, dass beispielsweise Temperaturänderungen im Bereich von 10% die Observablen nennenswert ändern. Auch ist es im Fall des breiten Bands (siehe Abb. 3.12) inadäquat, weil ja hier die kritische Wechselwirkung des Zweibandsystems im Kontext des Metall-OSMP-Übergangs definiert ist, das verglichene Einbandmodell jedoch bis hin zu $U \lesssim 4.7$ metallisch bleibt.

Für das schmale Band findet ein Metall-Isolator-Übergang statt, sobald die relative Wechselwirkung den kritischen Wert $\tilde{U} = 1$ passiert. Daher sind die Änderungen im Spektrum des schmalen Bands sehr viel deutlicher als im breiten Band. Für das schmale Band werden daher ein Wechselwirkungsverhältnis \tilde{U} unterhalb und eines oberhalb des Metall-Isolator-Übergangs diskutiert. Die Spektren sind in Abb. 3.13 für das Zweibandmodell (linke Spalte 3.13a,c) und für das vergleichbare Einbandmodell (rechte Spalte 3.13b,d) dargestellt.

Für eine relative Wechselwirkung $\tilde{U} \simeq 0.95$ unterhalb des Metall-Isolator-Übergangs lässt sich in Abb. 3.13a,b feststellen, dass nahe der Halbfüllung die Kondo-Resonanz für das schmale Band im Zweibandmodell erheblich schmaler ist als für das Einbandmodell. Im schmalen Band wird mehr spektrales Gewicht von der Fermi-Kante weg hin zu den Hubbard-Bändern verschoben, sodass die Vertiefungen zwischen Resonanz und Hubbard-Bändern deutlich schwächer ausgeprägt sind und auch die Hubbard-Bänder in Abb. 3.13a näher an der Fermi-Kante liegen als im Einbandfall in Abb. 3.13b. Die Vertiefungen zwischen Kondo-Resonanz und Hubbard-Bändern sind im Einbandfall etwas deutlicher, im Besonderen für stärkere Dotierung. Ansonsten sind sich die Spektren recht ähnlich.

Oberhalb des Metall-Isolator-Übergangs $\tilde{U} \simeq 1.11 - 1.14$ ist das schmale Band des Zweibandmodells für leichte Dotierungen ($n \lesssim 2.06$) in einem Mott-Zustand (Abb. 3.13c). Das ist im Einklang mit den bisherigen Beobachtungen bezüglich der Fixierung der Teilchenzahlen für leichte Dotierungen im schmalen Band. Trotz fester Teilchenzahl ($n_n \simeq 1$) lässt sich aber in Abb. 3.13c feststellen, dass sich die Form der Hubbard-Bänder im schmalen Band erheblich ändert: Für große Dotierung ($n \gtrsim 2.15$) ist die Vertiefung zwischen Kondo-Resonanz und Hubbard-Bändern im Zweibandfall viel flacher als im Einbandfall, ganz wie es auch für die schwächere Wechselwirkung schon festzustellen war. Das obere Hubbard-Band passiert die Fermi-Kante, und die Kondo-Resonanz entwickelt sich in Ein- und in Zweibandfall gleichermaßen. Für das schmale Band ist die Resonanz stark unterdrückt, und die Umgebung der Fermi-Kante wird durch das obere Hubbard-Band dominiert. Hier findet sich auch keine klare Vertiefung mehr zwischen Vielteilchenresonanz und oberem Hubbard-Band. Im Unterschied dazu entwickelt das Einbandmodell eine gut differenzierte und scharfe Kondo-Resonanz, die von dem tieferen Hubbard-Band eindeutig durch eine Lücke getrennt ist.

von der Trotter-Diskretisierung abhängen. Nicht jedes Verhältnis \tilde{U} kann aufgelöst werden, weil die Rechnungen für diskrete U ausgeführt werden und die kritischen Wechselwirkungen U_c ohnehin nur ungefähr bekannt sind, sodass eine leichte Diskrepanz der Verhältnisse $\tilde{U}^{(1)}$ und $\tilde{U}^{(2)}$ entsteht.

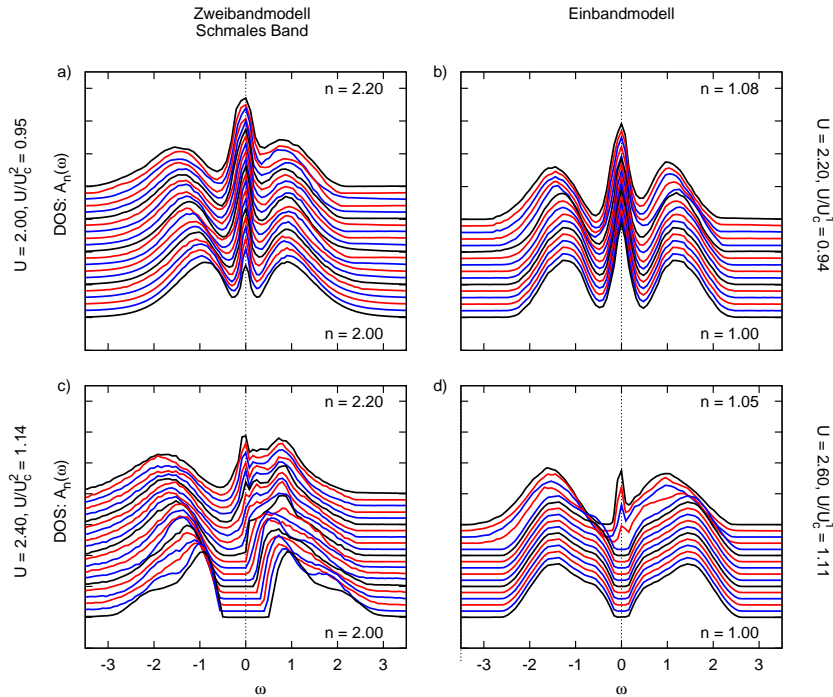


Abbildung 3.13: Spektralfunktionen für verschiedene Wechselwirkungsverhältnisse \tilde{U} für das schmale Band im Zweibandmodell (linke Spalte) und für ein Einbandmodell (rechte Spalte). Spektren in einer Zeile haben ungefähr die gleiche relative Wechselwirkung \tilde{U} . Im Zweibandfall (links) variiert die Gesamtteilchenzahl von $2 \leq n \leq 2.2$ in Schritten von $\Delta n = 0.01$. Die Spektralfunktionen sind gemäß ihrer Teilchenzahl vertikal verschoben. Im Einbandfall (rechte Spalte) variiert die Füllung ungleichmäßig und ist derart eingestellt, dass gegenüberliegende Spektren (links) exakt die gleiche (partielle) Füllung haben (d.h. n_n im Zweibandmodell ist gleich der Teilchenzahl n im Einbandmodell).

Die interorbitalen Wechselwirkungen führen zu zusätzlichen Streukanälen, was eine charakteristische Verbreiterung der Vielteilchenresonanz im Zweibandmodell im Vergleich zum Einbandmodell verursacht. Außerdem werden die ionischen Anregungsenergien des Einbandmodells bei ϵ und $\epsilon + U$ im Zweibandmodell durch die interorbitalen Wechselwirkungen weiter aufgespalten (siehe ionische Lösung in Tab. 3.1) und führen zu einer Verbreiterung der Zustandsdichten in den Hubbard-Bändern. Dieser Effekt wird für das schmale Band deutlicher, weil die Bandbreite des schmalen Bands relativ zu den Wechselwirkungen kleiner ist. In den Spektralfunktionen überlagern sich beide Effekte und sind gerade im Energiebereich zwischen oberem Hubbard-Band und Fermi-Kante nicht zu differenzieren.

Spektrales Gewicht an der Fermi-Kante

Anhand des spektralen Gewichts an der Fermi-Kante lässt sich ein metallischer von einem isolierenden Zustand unterscheiden. Insbesondere für die hier betrachtete Situation mit

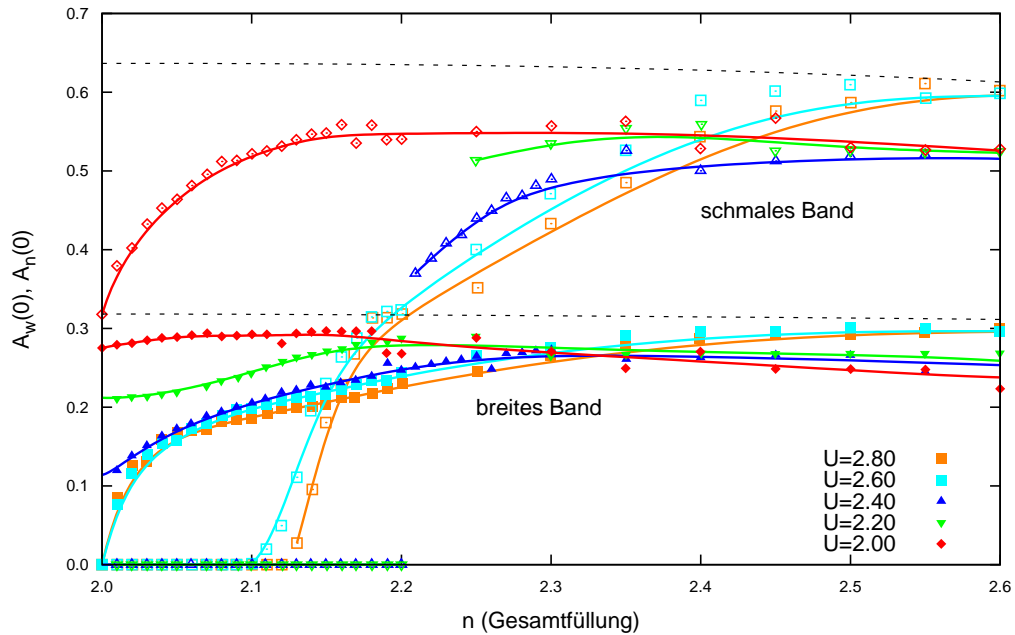


Abbildung 3.14: Spektrales Gewicht an der Fermi-Kante für das Zweibandmodell. Die gestrichelten Linien stellen das spektrale Gewicht gemäß Luttingers Theorem dar. Alle durchgezogenen Linien dienen nur der Orientierung.

gut separiertem unteren Hubbard-Band lässt sich dadurch die Mott-Phase identifizieren. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.14 für breites und schmales Band dargestellt. In der DMFT wird nach [Müller-Hartmann89] der Wert der Spektralfunktion an der Fermi-Kante im Grundzustand von Einbandmodellen auf Grund der Wechselwirkung nicht geändert. Dies ist eine direkte Konsequenz aus Luttingers Theorem. Der Beweis ist direkt anwendbar auf Hamiltonians, welche diagonal in orbitaler Quantenzahl und Spinquantenzahl sind, wie es auch das J_z -Modell (3.12) in dieser Arbeit ist. Daher lassen sich Luttingers Theorem und Müller-Hartmanns Beweis direkt auf das hier betrachtete Modell übertragen, sofern die Selbstenergie Fermi-Flüssigkeitseigenschaften hat: $\text{Im} \Sigma(\omega \pm i\delta) = \mp \mathcal{O}(\omega^2)$ ($\omega \rightarrow 0$). Vergleichbare Argumente lassen sich auch in [Held06] finden. Zum Vergleich ist daher in Abb. 3.14 auch das spektrale Gewicht gemäß Luttingers Theorem abgebildet (gestrichelte Linien).

In Abb. 3.14 wird klar, dass die Übereinstimmung zwischen den spektralen Gewichten $A_w(0)$ für das breite Band und für das schmale Band $A_n(0)$ (Spektralfunktion ausgewertet an der Fermi-Kante) mit den Werten auf Grund von Luttingers Theorem mit zunehmender Dotierung besser werden. Im Besonderen für schwaches Doping ($n \lesssim 2.1$) ist die Diskrepanz zwischen $A_w(0)$ und $A_n(0)$ zu deren jeweiligen Referenzkurven überdeutlich. Dafür gibt es mehrere Gründe: Zunächst ist das schmale Band im schwach dotierten Regime isolierend, daher keine Fermi-Flüssigkeit, und verletzt damit die Voraussetzungen. Außerdem sind die QMC-Rechnungen bei endlicher Temperatur durchgeführt, während die Werte, welche durch Luttingers Theorem gegeben sind, nur für $T = 0$ erreicht werden. Man erwartet, dass die Bänder, auch wenn sie metallisch sind, einen Rest an Nicht-Fermi-Flüssigkeitsverhalten behalten, welcher für den halbgefüllten Fall charakteristisch ist. Aus den Spektraldichten

an der Fermi-Kante $A_w(0)$ und $A_n(0)$ der Abb. 3.14 lässt sich schließen, dass der Metall-Isolator-Übergang für das breite (schmale) Band im Dotierungsbereich $2.0 \lesssim n \lesssim 2.1$ ($2.1 \lesssim n \lesssim 2.3$) stattfindet.

Das Quasiteilchengewicht

Das Quasiteilchengewicht hat nur in der Fermi-Flüssigkeitsphase eine physikalische Bedeutung. Es müssen also beide Bänder gleichzeitig Fermi-Flüssigkeitsverhalten aufzeigen, was unter anderem in der OSMP nicht der Fall ist. Dennoch ist es als Funktion der Selbstenergie eine wichtige Untersuchungsgröße. Im Kontext dieses Modells wird das Quasiteilchengewicht, wie in Gleichung (3.15) definiert, als Funktion der Wechselwirkung U und der Gesamtteilchenzahl n betrachtet. Wenn man nun das Verhalten des Quasiteilchengewichts im Zweiband-Hubbard-Modell abseits der Halbfüllung für Wechselwirkungsstärken jenseits des Fermi-Flüssigkeitsregimes untersucht, erwartet und findet man eine Anomalie: Das Quasiteilchengewicht des schmalen Bands hängt nicht monoton von der Gesamtfüllung ab (Abb. 3.15a), wie es in einer Fermi-Flüssigkeitsphase zu erwarten wäre, sondern ist im Bereich schwacher Dotierung $n \approx 2.1$ überhöht. Um sicherzustellen, dass das Verhalten kein numerisches Artefakt ist, wurden diese Ergebnisse mit einem anderen QMC-Programm geprüft und bestätigt.

Weil sich Z außerhalb des Fermi-Flüssigkeitsregimes anomal verhält, ist es interessant, mögliche weitere Anomalien in der Selbstenergie zu suchen. Die Selbstenergien verhalten sich für alle metallischen Lösungen glatt als Funktion der (diskreten) Matsubara-Frequenzen, bis hin zu ersten Matsubara-Frequenz. Aber schon für mittlere bis große Wechselwirkungsparameter $U = 2.4$ kann man eine Anomalie im Realteil der Selbstenergie (Abb. 3.15b) sehen: Im Dotierungsbereich zwischen $n = 2.0$ und $n = 2.4$ zeigen einige Lösungen ein divergentes Verhalten für $\omega_n \rightarrow 0$, was sich deutlich von den glatten Lösungen für die Gesamtteilchenzahlen $n = 2.0$ und $n = 2.4$ unterscheidet. Darüber hinaus zeigt $\Sigma(i\omega_n)$ ein nicht-monotones Verhalten in Abhängigkeit der Füllung für die ersten vier Matsubara-Frequenzen $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ und ω_4 . Das unterscheidet sich erheblich vom charakteristischen Verhalten im metallischen Regime. Folglich zeigen die Selbstenergien wie auch die Quasiteilchengewichte (siehe Gl. (3.15) oder Abb. 3.15a) ein kongruentes, anomales Verhalten. Man beachte, dass der Realteil der Selbstenergie auf der imaginären Achse wegen der Teilchen-Loch-Symmetrie bei Halbfüllung ($n = 2.00$) sogar in der isolierenden Phase verschwinden muss.

Nicht-Fermi-Flüssigkeitseigenschaften

Der Zusammenhang zwischen orbital-selektiver Mott-Phase und der Nicht-Fermi-Flüssigkeitseigenschaft des breiten Bands (im Modell anisotroper Hund'scher Kopplung) ist für den dotierten Fall bisher unklar. Für den halbgefüllten Fall ist das breite Band in der OSMP eine Nicht-Fermi-Flüssigkeit (NFL) [Knecht05]. Ein Indikator dafür ist im Einteilchenspektrum eine Vertiefung an der Fermi-Kante. Genau eine solche Vertiefung findet sich auch für das dotierte System (siehe Abb. 3.12), bis wenigstens zur Phasengrenze bei $n = 2.1$. Es ist aber an Hand des Spektrums nicht klar zu entscheiden, für welche Gesamtfüllung n diese Eigenschaft verschwindet, weil noch bis $n = 2.15$ Spuren einer Vertiefung erkennbar sind, die aber auch nicht gegen das unvermeidliche numerische Rauschen im Spektrum differenzierbar sind. An dieser Stelle ist daher unklar, inwiefern OSMP- und NFL-Phase identisch sind. Zur Klärung ist die Selbstenergie in Imaginärzeit das bessere

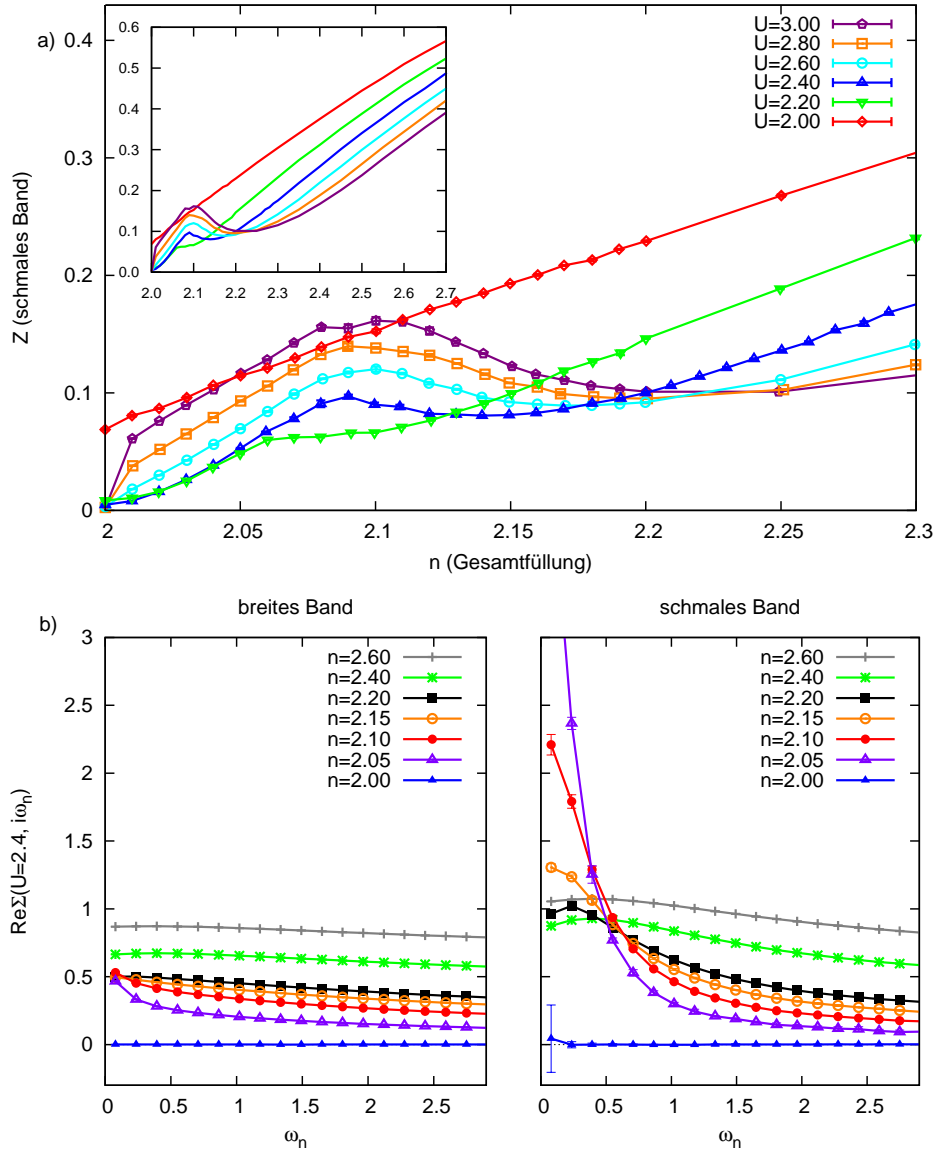


Abbildung 3.15: (a) Das Quasiteilchengewicht Z_n , wie in Gl. (3.15) definiert, für das schmale Band im Zweibandmodell. Z_n bildet ein lokales Maximum als Funktion der Gesamtfüllung im schwach dotierten Bereich $2.05 \lesssim n \lesssim 2.15$ aus, was mit zunehmender Wechselwirkung stärker wird. Es ergeben sich keine weiteren Anomalien bei stärkerer Dotierung (siehe kleines Bild). (b) Der Realteil der Selbstenergie für $U = 2.4$ an den diskreten Matsubara-Frequenzen für das Zweibandmodell. Die Selbstenergie zeigt ebenfalls eine Anomalie, nämlich eine Verstärkung bei kleinen Frequenzen im mittleren Dotierungsbereich ($2.05 \lesssim n \lesssim 2.2$). Die Linien dienen nur der Orientierung.

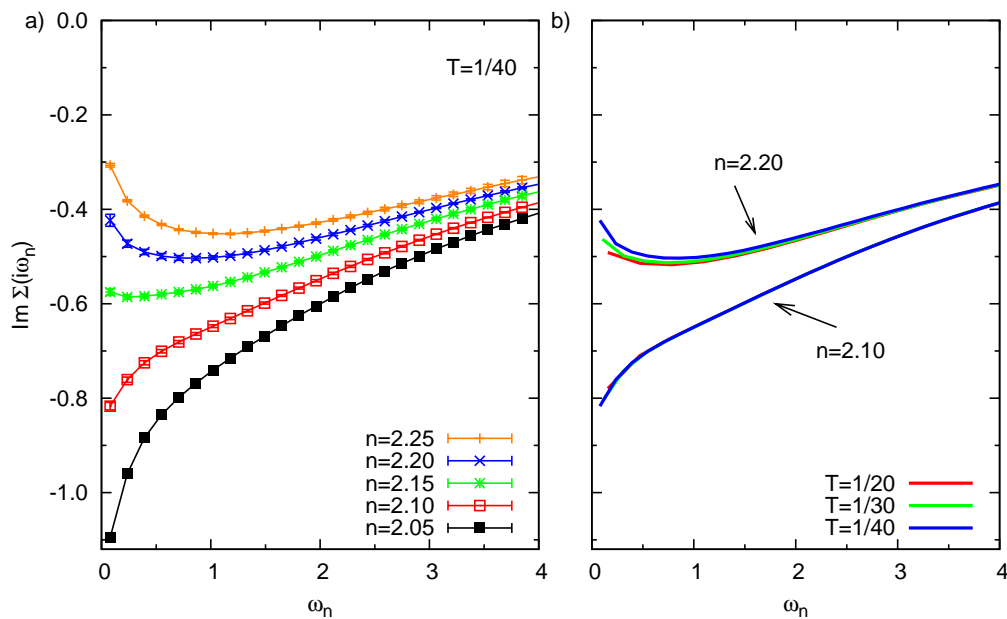


Abbildung 3.16: (a) Imaginärteil der Selbstenergie $\text{Im } \Sigma(i\omega_n)$ des breiten Bands für verschiedene Gesamtfüllungen n bei $U = 2.4$ und $T = 1/40$. Die zwischenliegenden Minima bei niedrigen Frequenzen sind nur für Gesamtfüllungen $n \geq 2.15$ erkennbar. (b) Ergebnisse für $\text{Im } \Sigma$ bei verschiedenen Temperaturen für ausgewählte Gesamtfüllungen (bei $U = 2.4$). Die Kurven für $n = 2.1$ sind kaum unterscheidbar. Für $n = 2.2$ wird das Minimum bei kleinen Frequenzen mit abnehmender Temperatur T deutlicher.

Maß, weil sie mit hoher Sicherheit bestimmt wird und letztlich das zentrale Resultat der QMC-Rechnung ist (Abb. 3.16).

In Abb. 3.16a ist die Selbstenergie $\text{Im } \Sigma(i\omega_n)$ des breiten Bands für $U = 2.4$, $T = 1/40$ für die gleichen Parameter wie in Abb. 3.12 über einen Bereich der Gesamtfüllung $2.05 \leq n \leq 2.25$ dargestellt. Für $n \leq 2.1$ ist $\text{Im } \Sigma(i\omega)$ eine monoton anwachsende Funktion der Frequenz ω , welche für $\omega \rightarrow 0$ klar gegen endliche Werte strebt. Dies ist als charakteristisches NFL-Verhalten zu identifizieren. Im Unterschied dazu fällt der Betrag von $\text{Im } \Sigma$ im stärker dotierten Bereich (und weit in der OSMP) für $n = 2.25$ ab, was konsistent mit dem Fermi-Flüssigkeitsszenario $\text{Im } \Sigma(i\omega) \propto \mathcal{O}(\omega) + \mathcal{O}(T^2)$ ist. Dazwischen ist die Situation weniger klar: Es ist unmöglich, allein von diesen Daten ausgehend, zu entscheiden, wie sich die Selbstenergie im Limit $\omega \rightarrow 0$ extrapoliert und welchen Anteil thermische und welchen Anteil Nicht-Fermi-Flüssigkeitseffekte haben.

Für zwei ausgewählte Füllungen wird die Temperaturabhängigkeit des Imaginärteils der Selbstenergie $\text{Im } \Sigma(i\omega)$ des schmalen Bands in Abb. 3.16b untersucht. Für $n = 2.1$ ist keine Temperaturabhängigkeit erkennbar, die Kurven liegen innerhalb der Strichstärke übereinander. Offensichtlich wird hier die Tieftemperaturphysik durch die Nicht-Fermi-Flüssigkeit bestimmt, und Temperatureffekte sind zu vernachlässigen. Im Unterschied dazu ist für die größere Füllung $n = 2.2$ ein klarer Trend in Richtung eines Fermi-Flüssigkeitsverhaltens erkennbar. Um diesen Trend zu untermauern und die Fermi-Flüssigkeitseigenschaft si-

cher nachzuweisen, wären Rechnungen bei deutlich tieferer Temperatur notwendig, die aber mit den hier verwendeten QMC-Methoden zu aufwändig sind (siehe auch Abschnitt 2.1.2). Gerade im Grenzbereich bei $n = 2.15$ ist das Minimum in der Selbstenergie bei kleinen Frequenzen nur schwach ausgeprägt und das Tieftemperaturverhalten nur schwer abzuschätzen.

Die Fermi-Flüssigkeitseigenschaft des breiten Bands wird für ausreichend große Gesamtfüllung restauriert. Allein auf Grund der vorhandenen Daten lässt sich aber nicht feststellen, ob die Phasengrenze der OSMP mit der Phasengrenze der Fermi-Flüssigkeit übereinstimmt. Es lässt sich aber klar feststellen, dass in der OSMP das breite Band in einem Nicht-Fermi-Flüssigkeitszustand ist. Hier stimmen die Betrachtung der spektralen Eigenschaften gut mit der Untersuchung der Selbstenergie überein.

3.3.4 Das J_z -Modell bei Kristallfeldaufspaltung

Das J_z -Modell (3.12) lässt sich durch Hinzunahme der Kristallfeldaufspaltung über den Kristallfeldparameter $\Delta \neq 0$ weiter an realistische Situationen anpassen. Beispielsweise können Jahn-Teller-Effekte die Kristallsymmetrie brechen, sodass die ionischen Niveaus der einzelnen Orbitale voneinander verschieden sind. Bei konstanter Gesamtfüllung ändert sich so die partielle Füllung der einzelnen Orbitale relativ zueinander. Dabei verändert sich der Schwerpunkt der Zustandsdichte des einen Bands nach unten und der des anderen nach oben (oder umgekehrt, je nach Vorzeichen von Δ).

Zur Veranschaulichung dieses einfachen Effekts sind in Abbildung 3.17 die Zustandsdichten des Zweibandmodells (3.12) für eine kleine Wechselwirkung $U = 1.80$ dargestellt. In diesem Bereich sind beide Bänder ganz sicher metallisch; die relativen Wechselwirkungen U/W_n und U/W_w für beide Bänder sind deutlich unterhalb der kritischen Wechselwirkung. In diesem Fall sind keine voneinander separierten Hubbard-Bänder zu erwarten, und daher liegt eine lückenlose Zustandsdichte vor.¹¹

Das Durchfahren des Kristallfeldparameters bei festgehaltener Gesamtfüllung verschiebt Elektronen vom einen in das andere Band, die Zustandsdichten verschieben ihren Schwerpunkt gegenläufig. Einsichtig ist dieses Verhalten sofort, wenn man den Kristallfeldparameter und das chemische Potential in einem artifiziellen bandspezifischen chemischen Potential absorbiert

$$\mu_w = \mu + \Delta/2 \quad \text{und} \quad \mu_n = \mu - \Delta/2 \quad . \quad (3.37)$$

In diesem Bild führt die Änderung des Kristallfeldparameters Δ zu einer Änderung des bandspezifischen chemischen Potentials und naturgemäß zu einer Veränderung der Teilchenzahlen für das jeweilige Band.

Lenkt man den Blick nun auf die Details der Spektren, so fällt auf, dass die Vielteilchen-Kondo-Resonanz des schmalen Bands am stärksten bei annähernder Halfüllung ausgeprägt ist (Abb. 3.17b). Vergrößert oder verkleinert sich die Füllung des schmalen Bands auf Grund des Kristallfelds, ist diese Vielteilchenresonanz nicht mehr klar erkennbar. Dies ist im Einklang mit den Beobachtungen für das kristallfeld-symmetrische Problem, bei dem die Kondo-Resonanz mit zunehmender Dotierung, d.h. auch mit zunehmender Fül-

¹¹Für annähernd leere oder volle Bänder funktioniert die Maximum-Entropie Methode schlechter, sodass die Resultate für betragsmäßig große Δ weniger überzeugend sind. Daher sind die Resultate nur für Kristallfeldparameter $-3.0 \leq \Delta \leq 3.0$ dargestellt.

lung, schwächer wird. Für das breite Band (Abb. 3.17b) ist eine Kondo-Resonanz an der Fermi-Kante für nahezu alle Kristallfeldparameter Δ erkennbar.

Band-selektive Füllungen bei Kristallfeldaufspaltung

Bei Halbfüllung $n = 2$ und bei großer Kristallfeldaufspaltung $|\Delta| \gg \max\{W_w, W_n, U, k_B T\}$ sind beide Bänder in einem bandisolierenden Zustand, d.h. alle Elektronen sind im breiten (schmalen) Band, und kein Elektron ist im schmalen (breiten) Band.

Abseits der Halbfüllung, im dotierten Bereich $n > 2$, können höchstens zwei Elektronen im tiefer liegenden der beiden Bänder platziert werden, sodass das zweite Band eine nicht-ganzzahlige Anzahl Elektronen enthalten muss. Die band-selektiven Füllungen sind in Abb. 3.18 in Abhängigkeit vom Kristallfeldparameter für eine konstante Gesamtfüllung $n = 2.1$ dargestellt. Im Bereich großer Kristallfeldparameter $|\Delta|$ ergeben sich damit Plateaus in den band-selektiven Füllungen für betragsmäßig große Kristallfeldparameter $|\Delta|$. In diesem Bereich ist das jeweils tiefliegendere Band in einem bandisolierenden Zustand.

Im Zwischenbereich des Kristallfeldparameters $-3 \lesssim \Delta \lesssim 3$ ergibt sich für schwache Wechselwirkung ($U = 1.80$) ein Übergangsverhalten, bei dem die band-selektiven Füllungen der Orbitale noch keine Plateaus in der Abhängigkeit vom Kristallfeldparameter Δ entwickeln. Mit zunehmender Wechselwirkung jedoch bilden sich Plateaus in den band-selektiven Füllungen auch im Bereich von mittleren Kristallfeldparametern Δ aus: Für $U = 2.4$ ist die Füllung des schmalen und des breiten Bands jeweils konstant für Kristallfeldparameter $0 \lesssim \Delta \lesssim 0.8$ (Abb. 3.18). Hierbei ist die Füllung des schmalen Bands ganzzahlig $n_n = 1.0$, und das breite Band stellt die Gesamtfüllung $n = n_n + n_w = 2.10$ her. Mit zunehmender Wechselwirkung $2.4 \lesssim U \lesssim 2.8$ verbreitert sich das Plateau. Für noch größere Wechselwirkung bildet sich auch bei negativem Kristallfeldparameter Δ ein Plateau in den band-selektiven Füllungen aus ($-1.2 \lesssim \Delta \lesssim -1.0$), welches sich mit weiter zunehmender Wechselwirkung ausdehnt. In Fall des zweiten Plateaus aber enthält das breite Band eine ganzzahlige Anzahl an Elektronen ($n_w = 1.0$).

Für den kristallfeldsymmetrischen Fall ist aus den vorangegangenen Betrachtungen klar, dass sich bei einem Kristallfeldparameter $\Delta = 0.0$ das System für eine Wechselwirkung $U_{c1} \lesssim U \lesssim U_{c2}$ und bei nicht allzugroßer Dotierung $n \sim 2.10$ in einer orbital-selektiven Mott-Phase (OSMP) befindet und in dieser das breite Band itinerante Elektronen und das schmale Band lokalisierte Elektronen enthält. Offensichtlich überlebt dieser Zustand die Verschiebung der ionischen Levels für kleine Kristallfelder.

Spektralfunktionen bei Kristallfeldaufspaltung

Die Indizien, die sich über den metallischen Charakter der Bänder aus den Füllungskurven ergeben, lassen sich mit Hilfe der Spektralfunktionen belegen. Für fixe Gesamtfüllung $n = 2.1$ werden die Spektralfunktionen für verschiedene Kristallfeldparameter Δ bei $U = 3.0$ in Abb. 3.19 dargestellt. Beide Bänder verschieben sich, wie es auch beim schwachwechselwirkenden Problem in Abb. 3.17 der Fall ist. Zwei besondere Charakteristika der orbital-selektiven Mott-Phase kommen hier hinzu: Im Bereich der Fermi-Kante findet sich für das breite Band eine typische Vertiefung für $-2.4 \lesssim \Delta \lesssim 2.4$ in der Zustandsdichte, wie es für Nicht-Fermi-Flüssigkeiten typisch ist. Diese verschiebt sich, abhängig vom Kristallfeld, leicht. Das schmale Band ist für $0.0 \lesssim \Delta \lesssim 1.2$ isolierend, da die Zustandsdichte an der Fermi-Kante verschwindet. Für die anderen Kristallfeldparameter $1.2 \lesssim \Delta$ oder $\Delta \lesssim 0.0$ ist das schmale Band metallisch.

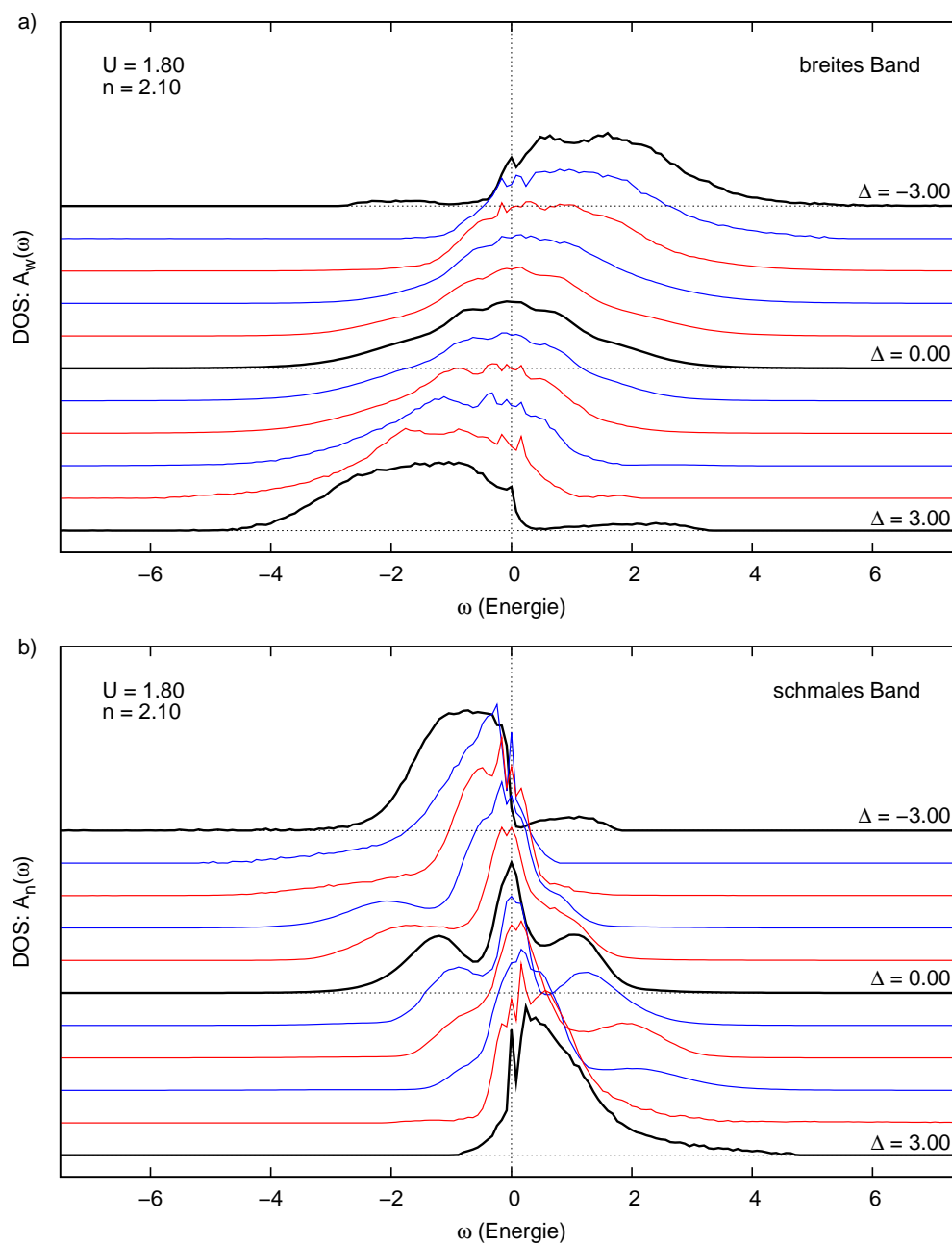


Abbildung 3.17: Spektralfunktionen für breites (a) und schmales Band (b) bei schwacher Wechselwirkung $U = 1.80$. Von hinten nach vorne wird hierbei der Kristallfeldparameter Δ vergrößert und damit die ionischen Niveaus relativ zueinander verschoben. Hierbei ist die Gesamtfüllung $n = n_w + n_n = 2.10$ konstant. Mit dem Kristallfeldparameter Δ (in Schritten von 0.6) verändert sich die partielle Füllung des breiten und des schmalen Bands. Die Kondo-Resonanz ist für das schmale Band bei $\Delta \sim 0$ deutlich erkennbar (b) und deutlich abgeschwächt für $|\Delta| \sim 3.0$.

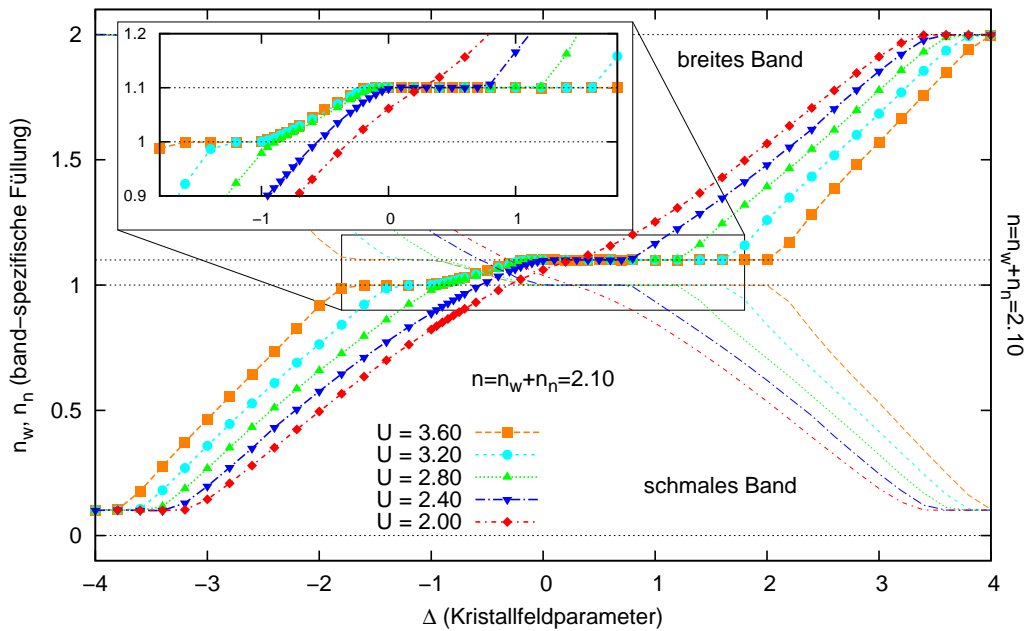


Abbildung 3.18: Band-selektive Füllung für schmales Band (feine Linien) und breites Band (geschlossene Symbole) für eine Gesamtfüllung $n = 2.10$. Mit zunehmender Wechselwirkung bilden sich Plateaus der Füllung als Funktion des Kristallfeldparameters aus. Im Inset ist jeweils das Verhalten des breiten Bands für $-1.80 \leq \Delta \leq 1.80$ gezeigt; das schmale Band ergibt sich gemäß $n_n = n - n_w$.

Wie in Abbildung 3.19 zu sehen ist, zeigt die analytische Näherungslösung des Modells eine recht gute qualitative Übereinstimmung mit dem QMC-Ergebnis. Jedoch ergeben sich in den Spektren der analytischen Lösung keine Verbreiterungen durch Lebensdauererfekte. Die Freie Theorie reproduziert die Aufspaltung in oberes und unteres Hubbard-Band, den führenden Effekt der Wechselwirkung, jedoch keine Vielteilchenresonanz an der Fermi-Kante. Die Verteilung des spektralen Gewichts ist, im Besonderen für das schmale Band, in Übereinstimmung mit der QMC-Lösung. Für nahezu alle Kristallfeldparameter Δ wird die Phase des schmalen Bands korrekt wiedergegeben, nur für $\Delta = 1.80$ ist das schmale Band in der QMC-Rechnung metallisch, während die analytische Näherungslösung einen Isolator ausweist. Für das breite Band ist die Diskrepanz deutlicher, hier wird die Tendenz der analytischen Näherung offenkundig, die kritische Wechselwirkung des Metall-Isolator-Übergangs zu unterschätzen. Folglich ist in der analytischen Näherungslösung die Phase für $\Delta = -1.80$, $\Delta = -1.20$ und $\Delta = -0.60$ isolierend, während das numerische Ergebnis erwartungsgemäß¹² eine metallische Phase auflöst.

Besonders offensichtlich treten die Übereinstimmungen, aber auch die Unterschiede der Zustandsdichten im Vergleich der integrierten Zustandsdichten auf (Abb. 3.20). Für große Kristallfeldparameter $\Delta = -3.0$ und $\Delta = 3.0$ ist die Übereinstimmung relativ gut. Hier löst die analytische Näherungslösung die Nähe zur bandisolierenden Phase gut auf. Im Bereich

¹²Die relative, intraorbitale Wechselwirkung des breiten Bands U/W_w ist unterhalb der kritischen relativen Wechselwirkung.

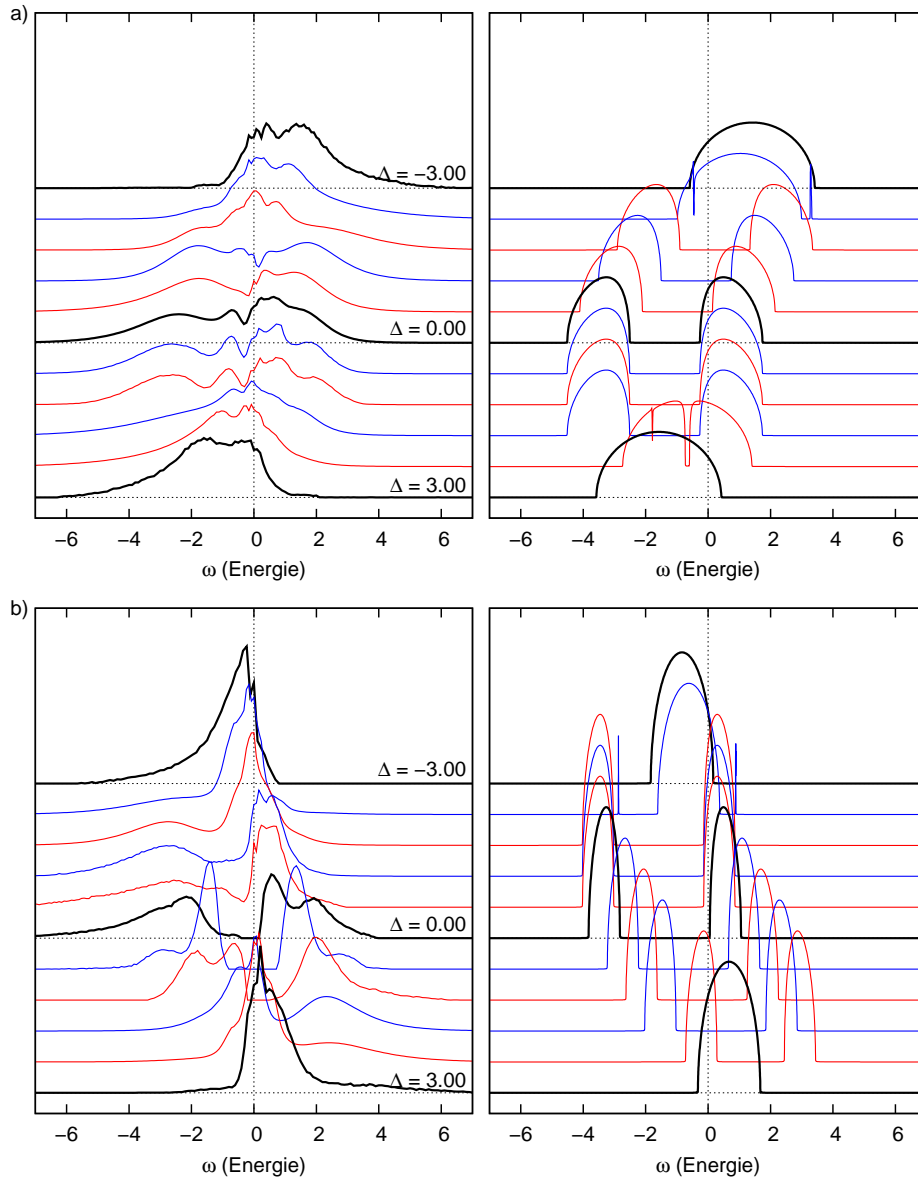


Abbildung 3.19: Spektralfunktionen für breites (a) und schmales Band (b) im Vergleich der numerischen QMC-Lösung (links) und der analytischen Näherung durch die Freie Theorie (rechts) für eine Wechselwirkung $U = 3.00$. Von hinten nach vorne wird hierbei der Kristallfeldparameter Δ vergrößert; damit werden die ionischen Niveaus relativ zueinander verschoben. Hierbei ist die Gesamtfüllung $n = n_w + n_n = 2.1$ konstant. Mit Δ (in Schritten von 0.6) verändert sich die partielle Füllung des breiten und des schmalen Bands. Die analytische Näherung löst keine Lebensdauerdefekte und auch keine Vielteilchenresonanzen auf (siehe Text). Folglich ist die Bandstruktur auch fernab der Fermi-Kante scharf aufgelöst und nicht ausgeschmiert, ebenso findet sich keine Vielteilchen-Kondo-Resonanz an der Fermi-Kante.

$\Delta = -1.8, -1.2, \dots$ und $\Delta = 1.8$ zeigen sich die Defizite der Näherung durch die Freie Theorie, weil hier Lebensdauerereffekte zu einer Verteilung des spektralen Gewichts führen und die Zustandsdichten ausschmieren. Das kann die analytische Näherungslösung durch die Freie Theorie nicht wiedergeben; dennoch stimmen die Lösungen aber für das schmale Band bei $\Delta = 0.0$ recht gut überein. Die gute Übereinstimmung lässt sich damit erklären, dass das schmale Band in einer isolierenden Phase ist. Dadurch sind die Vielteilcheneffekte, die in der Freien Theorie vernachlässigt werden und zur Vielteilchenresonanz führen, nicht allzu bedeutend.

Das Phasendiagramm bei Kristallfeldaufspaltung

Wie auch schon beim kristallfeldsymmetrischen Zweibandmodell finden sich im Modell mit Kristallfeldaufspaltung metallische Phasen, isolierende und orbital-selektive Mott-Phasen. Darüber hinaus sind bandisolierende Phasen bei betragsmäßig großem $|\Delta|$ möglich. Man erwartet auch eine Abhängigkeit der metallischen Phase, respektive der OSMPs, vom Kristallfeldparameter Δ .

Im Vergleich der Spektralfunktionen (siehe auch Abb. 3.19) mit den Füllungskurven wird deutlich, welche Bedeutung die Plateaus in den Füllungskurven (Abb. 3.18) haben. Für die Plateaus, die sich für jeweils das eine Band bei ganzzahliger Füllung ergeben, ist jenes Band in einem isolierenden Zustand. Der zu Grunde liegende Mechanismus ist, dass eine Verschiebung des ionischen Niveaus mit Hilfe des Kristallfeldparameters Δ zu einer Änderung des band-spezifischen (künstlichen) chemischen Potentials (3.37) führt. Wenn die Füllung des Bands sich dabei nicht ändert, besteht die Möglichkeit, in einem Band einen isolierenden Zustand zu haben. Wie schon bei der Untersuchung im kristallfeldsymmetrischen Fall in Abschnitt 3.3.3 nachgewiesen, lässt sich die metallische respektive isolierende Phase durch die Spektralfunktionen direkt bestätigen.

In Abbildung 3.21 ist das Phasendiagramm des Zweibandmodells in Abhängigkeit von U und Δ dargestellt. Für beide Bänder existiert eine orbital-selektive Mott-Phase im kristallfeldasymmetrischen Fall. Für den schon bekannten kristallfeldsymmetrischen Fall $\Delta = 0$ ist die einzig erreichbare Phase die OSMP des schmalen Bands, d.h. die Phase, bei der das schmale Band in einem isolierenden Zustand ist. Mit größerer Wechselwirkung separieren die Zustände auch im breiten Band, und eine Mott-Phase des breiten Bands wird für kleine $\Delta \lesssim -0.8$ zugänglich. Für betragsmäßig große Δ ($\Delta \gtrsim 3.4$ oder $\Delta \lesssim -3.0$) zeigen sich die erwarteten Bandisolatoren. Der metallische Bereich $-1.0 \lesssim \Delta \lesssim 0.0$ zwischen den zwei OSMPs zeigt auch in den Füllungskurven einen klar zwischenwertigen Bereich, wo beide Orbitale etwas stärker als halbgefüllt sind.

Mit zunehmender Dotierung verschieben sich die Phasengrenzlinien, wie eingezeichnet, für den Fall $n = 2.2$. Hierbei wird der zwischen den OSMPs liegende metallische Bereich größer, die Phasengrenzen verschieben sich hin zu größeren (kleineren) Δ für die OSMP des schmalen (breiten) Bands.

Der metallische Bereich ist im kristallfeldsymmetrischen Fall $\Delta = 0.0$ eine Nicht-Fermi-Flüssigkeit (siehe Abschnitt 3.3.3). Für den kristallfeldasymmetrischen Fall gilt das ebenfalls (siehe Abschnitt 3.3.4), wie es aus Stetigkeitsbetrachtungen leicht nachvollziehbar ist.

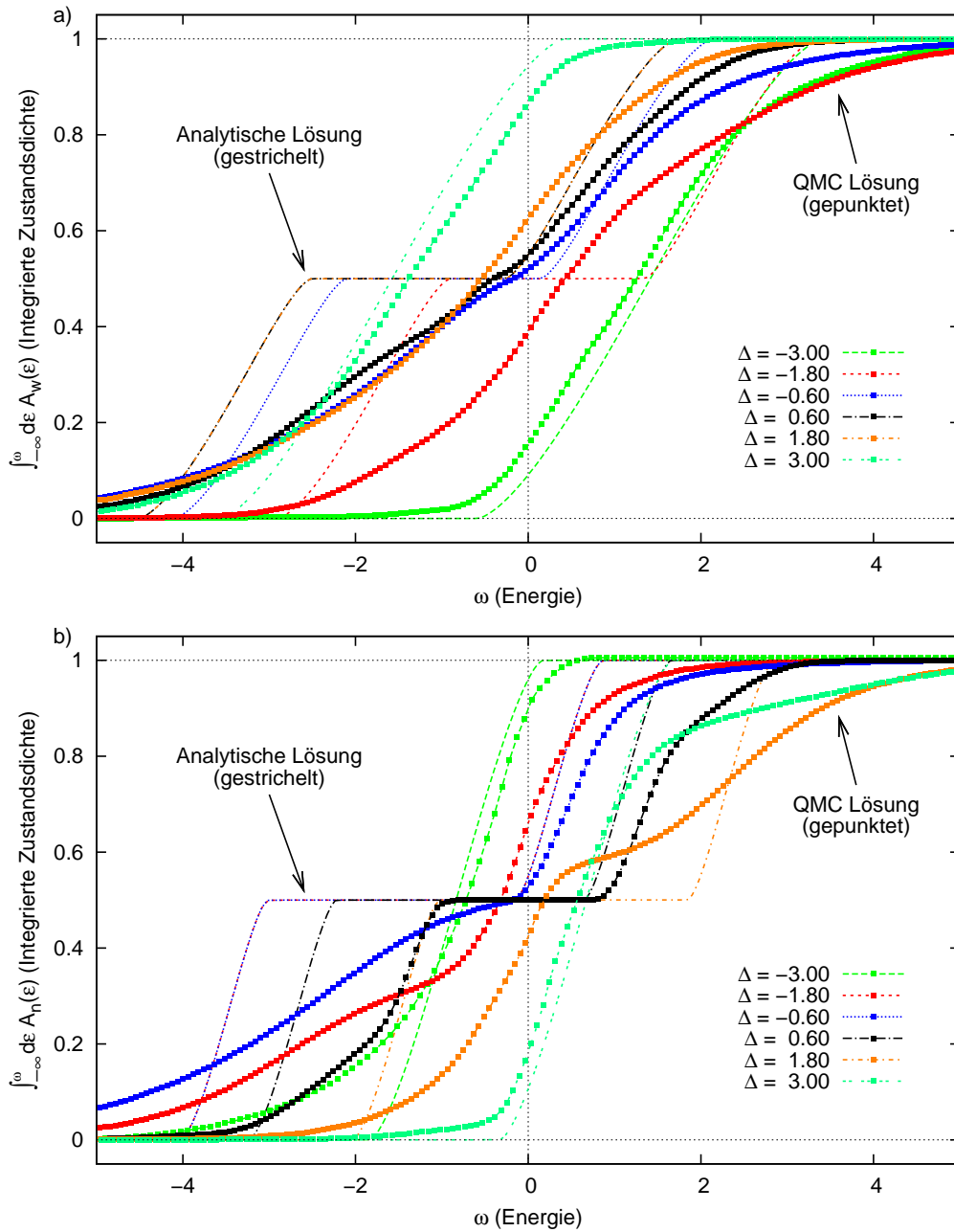


Abbildung 3.20: Vergleich von analytischer und numerischer Lösung für die integrierten Zustandsdichten für breites (a) und schmales Band (b). Für betragsmäßig große Δ ($\Delta = -3.0$ und $\Delta = 3.0$) ist die analytische Näherungslösung in guter Übereinstimmung mit den QMC-Resultaten. Im Zwischenbereich bestimmt die analytische Näherungslösung für das breite Band (a) isolierende Phasen, erkennbar an den Plateaus an der Fermi-Kante. Für das schmale Band ist die Übereinstimmung deutlich besser: Für $\Delta = 0.6$ wird die isolierende Phase übereinstimmend festgestellt, für $\Delta = -0.6$ liegen die Kurven nahe beieinander.

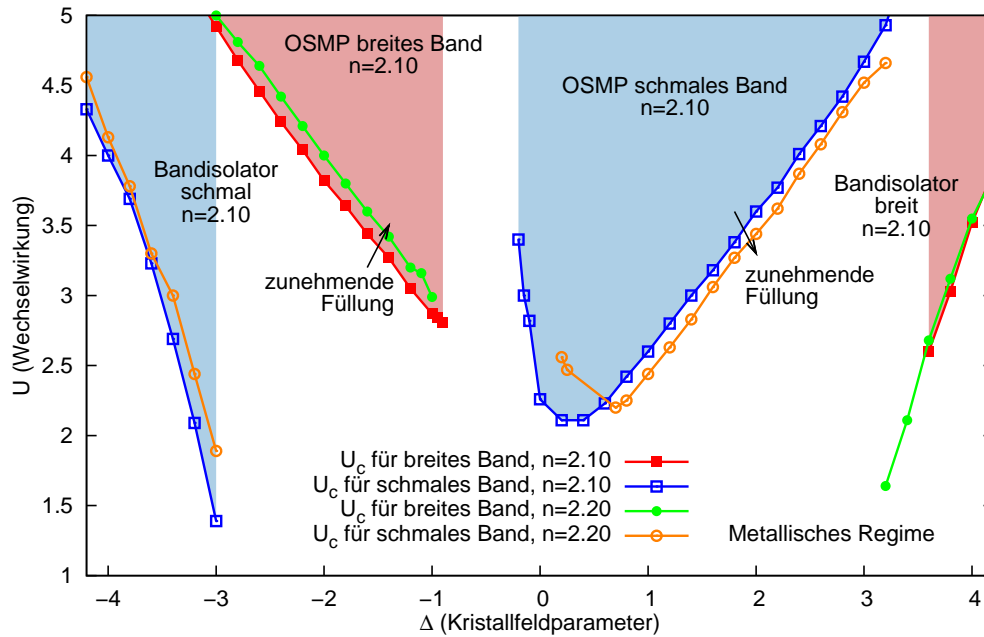


Abbildung 3.21: Phasendiagramm des Zweibandmodells in Abhängigkeit der Wechselwirkung U (vertikal) und des Kristallfeldparameters Δ (horizontal) für zwei verschiedene Gesamtfüllungen $n = 2.10$ und $n = 2.20$. Für betragsmäßig große Kristallfelder Δ ist jeweils eines der Bänder ein Bandisolator, in welchem das energetisch tief liegende Band voll gefüllt ist und das jeweils andere den fraktionellen Anteil oberhalb der Halfüllung enthält. Im Bereich dazwischen finden sich für ausreichend große Wechselwirkungen U die orbital-selektiven Mott-Phasen.

Nicht-Fermi-Flüssigkeitseigenschaften

Inwieweit das System für den kristallfeldasymmetrischen Fall eine Nicht-Fermi-Flüssigkeitseigenschaft der Bänder in der OSMP aufweist, wird hier analog zu Abschnitt 3.3.3 untersucht. Im Unterschied zum kristallfeldsymmetrischen Fall existiert hier auch für das breite Band eine isolierende Mott-Phase (siehe Abbildung 3.21). Man erwartet, dass diese orbital-selektiven Mott-Phasen sich ähnlich wie im kristallfeldsymmetrischen Fall (Abschnitt 3.3.3) charakterisieren lassen.

Die Ausbildung einer leichten Vertiefung in der Spektraldichte finden sich für das breite Band sowie für den kristallfeldasymmetrischen Fall (Abb. 3.19a), hier aber leicht verschoben und nicht exakt an der Fermi-Kante. Im kristallfeldsymmetrischen Fall ist diese Vertiefung Merkmal einer Nicht-Fermi-Flüssigkeit.

Der Imaginärteil der Selbstenergie ist für verschiedene Kristallfeldparameter Δ bei gleicher Wechselwirkung $U = 3.60$ in Abbildung 3.22 dargestellt. Die Selbstenergie wird genau dort betragsmäßig sehr groß, wo die jeweiligen Bänder gerade in einer OSMP sind. So ist für $\Delta = -1.80, -1.20$ das breite Band in einer isolierenden Phase und der Imaginärteil der Selbstenergie zeigt ein unterschiedliches Verhalten, verglichen mit der Selbstenergie für $\Delta = -2.40, -0.60, \dots 2.40$. So deutlich wie in Abschnitt 3.3.3 ist die Unterscheidung aber nicht, im Besonderen bei der Selbstenergie des schmalen Bands. Zwar ist auch hier

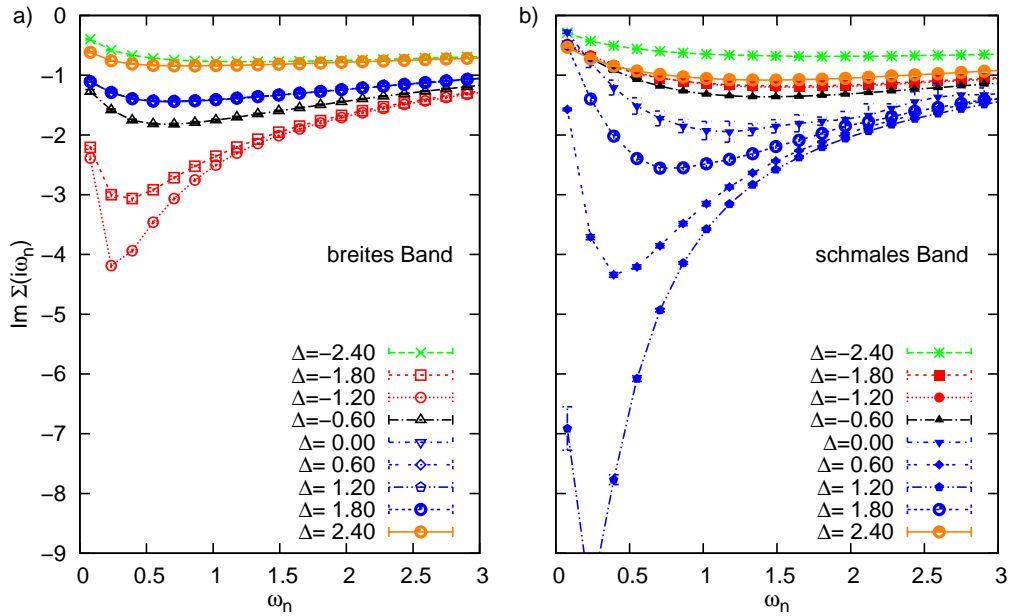


Abbildung 3.22: Der Imaginärteil der Selbstenergie ist für verschiedene, äquidistante Kristallfeldwerte Δ bei gleicher Wechselwirkung $U = 3.60$ für (a) breites Band und (b) schmales Band dargestellt. Die Farbkodierung ist dem Phasendiagramm in Abbildung 3.21 angepasst. Die Selbstenergie für die OSMP des breiten Bands ist in roter Farbe, die für die OSMP des schmalen Bands in blauer Farbe dargestellt. Die zwischenliegenden metallischen Phasen sind mit zunehmendem Δ in grüner, schwarzer und orangener Farbe dargestellt.

der Imaginärteil der Selbstenergie in der OSMP betragsmäßig groß, jedoch ist der Phasenübergang an keinem qualitativen Merkmal erkennbar. Gerade für $\Delta = 0.00$ und $\Delta = 1.80$, d.h. am Rand der OSMP, ist die Selbstenergie gar nicht von der in einer metallischen Phase zu unterscheiden, lediglich ihre Amplitude ist größer.

Diese mangelnde, qualitative Differenzierung der Phasen wird klar, wenn man das führende Verhalten der Selbstenergie beim Mott-Übergang betrachtet und teilchen-loch-symmetrische Situation und stark asymmetrische Situation (Dotierung $n \neq 2.00$ und Kristallfeld $\Delta \neq 0.00$) gegenüberstellt. Für den halbgefüllten, kristallfeldsymmetrischen Anteil führt der Mott-Übergang in der Selbstenergie zu einem führenden Pol an der Fermi-Kante

$$\Sigma_{\text{Mott, symm}}(z) \sim \frac{1}{z} \stackrel{z=i\omega_n}{=} \frac{1}{i\omega_n} \rightarrow \text{Im } \Sigma_{\text{Mott, symm}}(i\omega_n) \sim -\frac{1}{\omega_n} . \quad (3.38)$$

Abseits der kristallfeldsymmetrischen Situation verschiebt sich dieser Pol entlang der reellen Achse

$$\Sigma_{\text{Mott, nicht-symm}}(z) \sim \frac{1}{z - P} \rightarrow \text{Im } \Sigma_{\text{Mott, nicht-symm}}(i\omega_n) \sim -\frac{\omega_n}{P^2 + \omega_n^2} \quad (3.39)$$

mit der Polstelle P . Folglich lässt sich die Divergenz an Hand der numerischen Daten für die Selbstenergie nicht mehr klar identifizieren, wenn die führende Polstelle weit von der

Fermi-Kante entfernt ist ($|P| \gg 0$). Deshalb ist die Betrachtung der Selbstenergie ein mit zunehmender Asymmetrie schlechteres Maß für den Mott-Charakter des Bands, respektive Systems.

3.3.5 Das J_z -Modell im Überblick

Die Untersuchung des J_z -Modells (3.12) mit und ohne Kristallfeldaufspaltung liefert ein sehr umfassendes und kohärentes Bild der physikalischen Eigenschaften. Hier sei nochmals vermerkt, dass das J_z -Modell den generischen Fall anisotroper Hund'scher Kopplung darstellt. In den Ergebnissen lassen sich generische Vielteilchen- und Korrelationseffekte von typischen Mehrband- und Einteilcheneffekten differenzieren.

Die in DMFT(QMC) erhaltenen numerischen Ergebnisse werden mit analytischen Näherungslösungen (*rigid band*, Hartree-Fock und Freie Theorie) verglichen. Für das Zweiband-Modell mit und ohne Kristallfeldsymmetrie werden sowohl statische als auch dynamische Observablen bestimmt und untersucht. Bei den statischen Observablen werden bandspezifische Füllungen und Doppelbesetzungen als Funktion der Gesamtfüllung, der Wechselwirkung und des Kristallfeldparameters beschrieben und diskutiert. Für diese Größen ergibt sich ein Pinning in den orbital-selektiven Mott-Phasen für das schmale Band und im kristallfeldasymmetrischen Feld auch im breiten Band.

Diese Eigenschaften werden gut an Hand der betrachteten Spektraldichten veranschaulicht, wo sich die Mott-Phase durch Lücken in der entsprechenden Einteilchenzustandsdichte äußert. Für den kristallfeldsymmetrischen Fall werden der volle Dotierungsbereich $0 \leq n \leq 4$, für den kristallfeldasymmetrischen Fall nur ausgewählte Dotierungen $n = 2.10, 2.20$ betrachtet, wobei aber der Kristallfeldparameter über den vollen Bereich verändert wird $-5 \leq \Delta \leq 5$, sodass auch die Bandisolatoren in die Betrachtung einbezogen werden.

Für das kristallfeldsymmetrische Problem ($\Delta = 0$) werden zusätzliche Vergleiche mit Einbandmodellen vorgenommen, welche den Einfluss der interorbitalen Wechselwirkungen deutlich machen. Zentrale Resultate stellen die Phasendiagramme in den Abbildungen 3.11 und 3.21 dar. Im Vergleich zu Einbandmodellen kommen in Mehrbandmodellen zusätzliche Phasen hinzu, die abhängig von Wechselwirkung, Gesamtfüllung und Kristallfeldparameter einerseits metallische und andererseits isolierende Eigenschaften haben.

Die OSMP des breiten Bands wird hier erst zugänglich, wenn die ionischen Einteilchen-niveaus relativ zueinander verschoben werden. Gerade die analytische Näherungslösung durch die Freie Theorie macht hier deutlich, dass das Pinning der bandspezifischen Füllungen ohne dynamische Korrelationen verstanden werden kann und nur durch eine Aufspaltung in die Hubbard-Bänder bewirkt wird. Im Unterschied hierzu finden sich in den Spektralfunktionen der QMC-Lösung die Quasiteilchen- und Lebensdauer-effekte wieder, die einerseits zur typischen Vielteilchenresonanz an der Fermi-Kante und andererseits zur Verbreiterung der Hubbard-Bänder führen. Vergleicht man die Spektralfunktionen des numerisch behandelten Ein- und Zweibandmodells, so wird deutlich, wie das jeweils zweite Band zu einer zusätzlichen Streuung der Elektronen und damit zu einer reduzierten Lebensdauer der Zustände führt. Gerade die Vielteilchenresonanz an der Fermi-Kante wird deutlich ausgeschmiert.

Durch die hier dargestellten Ergebnisse ergibt sich ein kohärentes Bild des J_z -Modells bei niedriger Temperatur. Da aber im Besonderen die Vielteilcheneffekte in Form des Gitter-Kondo-Effektes stark temperaturabhängig sind, ist eine vergleichende Untersuchung des

J_z -Modells für verschiedene Temperaturen im Weiteren interessant. Man erwartet, dass die Kondo-Resonanz für höhere Temperaturen kollabiert und sich das spektrale Gewicht auf die Hubbard-Bänder verteilt. Im Vergleich mit dem Einband-Modell erwartet man zusätzliche Möglichkeiten, die generischen Vielteilcheneffekte von den typischen Mehrbandaspekten zu unterscheiden.

Neben den in der Arbeit betrachteten Observablen lässt sich die Untersuchung auch auf Transportgrößen, insbesondere der optischen Leitfähigkeit, erweitern.

In Bezug auf das Experiment ist die Untersuchung von Systemen mit drei Bändern interessant, welche die t_{2g} -Orbitale des Ruthenium vollständig beschreiben können.

3.4 Magneto-Optische Falle

In jüngster Zeit gelangt nach großen experimentellen Erfolgen bei der Erzeugung von Bose-Kondensaten in optischen Fallen immer stärker die magneto-optischen Falle (MOT)¹³ (siehe schematische Abbildung 3.23) in den Blick der Untersuchungen.

Magneto-optische Fallen erlauben die Erzeugung nahezu perfekter Realisierungen von Hubbard-Modellen. Mehrere sich in orthogonalen Richtungen kreuzende Laser erzeugen für kalte Atome eine fehlerfreies periodisches Potential. In diesem periodischen Potential werden kalte Fermionen gefangen. Wegen der Strahlform ergibt sich eine ortsabhängige Laserintensität, die weiter außen ein weniger tiefes Potential generiert, wodurch sich ein ortsabhängiges ionisches Niveau (oder chemisches Potential) ergibt. Man erhält so ein ideales Einband-Hubbard-Modell (siehe Abbildung 3.24).

Diese experimentellen Systeme stellen ein interessantes Testsystem zur Untersuchung von Vielteilchenphänomenen in bosonischen oder fermionischen Hubbard-Modellen dar. Tatsächlich konnten mikroskopische Quantenphänomene, wie sie durch die Theorie vorhergesagt werden, wie korreliertes Tunneln [Fölling07], Superaustausch [Trotzky08] oder auch makroskopische Quantenphänomene wie der Mott-Übergang [Greiner02, Jördens08] experimentell überprüft werden.

Die experimentelle Herausforderung der näheren Zukunft ist die Realisierung eines Néel-Zustands in ultrakalten Fermion-Mischungen. Derartige Mischungen lassen sich mit neutralen Fermionen unterschiedlicher Hyperfeinzustände herstellen, deren Quantisierungsachse parallel zum magnetischen Feld im Experiment ist [Zwierlein06]. Diese lassen sich sowohl mit *in situ*-Bildgebung wie auch mit *time of flight*-Messungen detektieren. Die Arbeit wird sich daher auf die Untersuchung des Néel-Zustands und dessen räumlicher Struktur konzentrieren.

Darüber hinaus sind auch sogenannte *multiflavor*-Mischungen möglich, weil die Hyperfeinzustände mehr als zwei Einstellungen erlauben. Untersuchungen in DMFT für den paramagnetischen Grenzfall lösen dabei mehrere konsekutive Mott-Übergänge auf [Gorelik09].

Die Ergebnisse diesen Kapitels entstanden teilweise als Diplomarbeitprojekt von Cand.-Phys. Pfister in Zusammenarbeit mit Dipl.-Phys. Gottwald. Auf Basis des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Mehrband-Codes wird das in Hartree-Fock-Näherung von Dipl.-Phys. Gottwald untersuchte MOT-System mit einer störungstheoretischen Methode weiterführend untersucht. Der wesentliche Aspekt ist hierbei, dass die Hartree-Fock-Näherung keine Vielteilcheneffekte beschreiben kann, der Mehrband-Code diese aber (wenigstens

¹³ engl. *Magneto-optical trap* (MOT) : magneto-optische Falle.

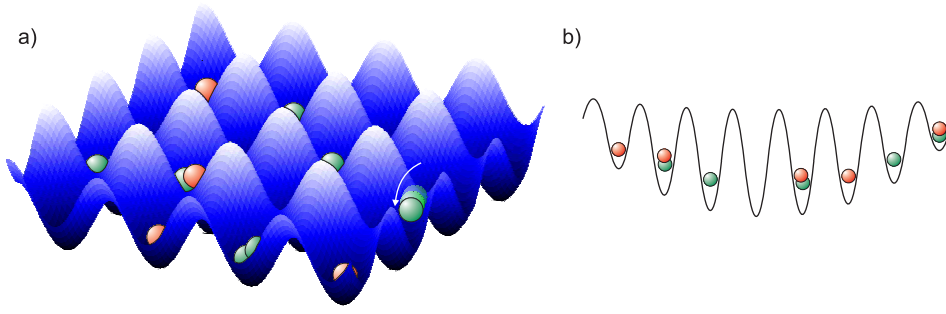


Abbildung 3.23: Darstellung eines optischen, zweidimensionalen Gitters (blau) mit angeordneten Teilchen zweier Spezies in Schrägsicht (a) und im Schnitt (b). Es lassen sich einfache Transfers von Elektronen identifizieren (Pfeile) und Doppelbesetzungen.

qualitativ korrekt) auflöst. Für die hier betrachteten Parameter stellt die Schwachkoppelungsstörungsentwicklung aber auch quantitativ eine gute Näherung dar.

Auf Grund der Zusammenarbeit konzentriert sich die folgende Darstellung auf die Ableitung und Diskussion der technischen Aspekte und untersucht die Physik des Systems nur auszugsweise.

Der Hamilton-Operator für die in dieser Arbeit betrachtete magneto-optische Falle ist

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{MOT}} = & -t \sum_{\langle x,x' \rangle \wedge \langle y,y' \rangle, \sigma} \left(\hat{c}_{xy,\sigma}^\dagger \hat{c}_{x'y',\sigma} + \text{h.c.} \right) + V_0 \sum_{xy,\sigma} [(x - x_m)^2 + (y - y_m)^2] \hat{n}_{xy,\sigma} \\ & + \sum_{xy} (\sigma B - \mu) \hat{n}_{xy,\sigma} + U \sum_{xy} \hat{n}_{xy,\uparrow} \hat{n}_{xy,\downarrow} . \end{aligned} \quad (3.40)$$

Spin- und Ortsquantenzahl werden mit σ und ganzzahligen x, y indiziert. Hierbei sind x und y räumliche Angaben (vergleiche Abb. 3.24). Der erste Term in der ersten Zeile implementiert das Hüpfen der Atome zwischen den verschiedenen Gitterplätzen. Die Transferamplitude t zwischen zwei benachbarten Gitterplätzen wird in der gesamten Falle näherungsweise gleich angenommen, obwohl das schwächere Feld am Rand dort zu einem stärkeren Hüpfen führt. Der zweite Summand der ersten Zeile verschiebt die ionischen Niveaus in Abhängigkeit vom Gitterplatz, und zwar so, dass sich ein parabolisches Profil um den gewählten Mittelpunkt (x_m, y_m) der Falle ergibt. Die Amplitude wird über V_0 kontrolliert. Die erste Summe der zweiten Zeile stellt die Füllung spinselektiv ein und realisiert das Ungleichgewicht in der Füllung für die Spinspezies, wie es durch das Experiment vorgegeben wird. Die Hubbard-Wechselwirkung geht über den letzten Term der zweiten Zeile ein und verknüpft zwei Konstituenten am selben Gitterplatz (x, y) über die Wechselwirkungsamplitude U . Die Teilchenzahl wird hier großkanonisch über das chemische Potential μ bestimmt. Zwar ist das Experiment kanonisch (die Zahl der injizierten Teilchen ist bekannt), aus technischen Gründen wird aber die großkanonische Beschreibung vorgezogen.

Die Beschränkung des Systems auf nur zwei Dimensionen stellte keine Einschränkung des Phasen-Übergangsverhaltens im Rahmen von Mermin-Wagner [Mermin66] dar, da es sich hier um explizit endliche Systeme handelt. In diesem Sinn ist die Beschreibung von langreichweitiger Ordnung nicht zutreffend.

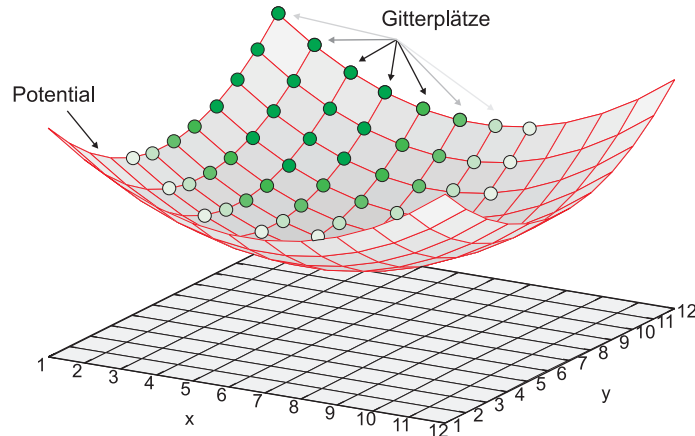


Abbildung 3.24: Schematische Darstellung eines 12×12 -Hubbard-Modells in einem parabolischen Potential. Die Gitterpositionen sind mit grünen Kreisen dargestellt, aus Gründen der Übersichtlichkeit wird auf eine vollständige Darstellung aller Gitterpositionen verzichtet. Das ionische Energieniveau der jeweiligen Gitterposition variiert mit einem Minimum in der Mitte der Falle und dem Maximum an den Ecken.

3.4.1 Nicht-lokale Prozesse

Vergleicht man den Hamilton-Operator (3.40) mit dem Hamilton-Operator des allgemeinen Mehrstörstellen-Anderson-Modells (MIAM) (2.39), so erkennt man, dass sich \hat{H}_{MOT} mit den Inhalten des MIAM formulieren lässt, wenn man die Ortsraumindizes (x, y) in einen Multiindex i (respektive (x', y') in j) übersetzt, sich auf die intraorbitale Wechselwirkung U beschränkt und die Hybridisierung an die Bänder aufhebt ($V_{\mathbf{k}} \rightarrow 0$). In diesem Fall wird das räumlich veränderliche Fallenpotential in den ionischen Einteilchenniveaus des MIAM $\epsilon_{i,\sigma}$ absorbiert. In diesem Sinne lässt sich die Falle als abgekoppelte Superstörstelle interpretieren. Mit dem in Abschnitt 2.1.1 vorgestellten diagrammatischen Störstellenlöser lassen sich wegen dessen numerischer Effizienz auch sehr große Störstellen mit mehreren Hundert Quantenzahlen i (respektive Gitterpositionen (x, y) im Fall der MOT) lösen.

Der hier gewählte Ansatz unterscheidet sich von denen in der Literatur verwendeten *Real-Space*-DMFT-Methoden. Typische *Real-Space*-DMFT-Methoden lösen den einzelnen Gitterplatz als isolierte Störstelle in einem durch die Weiss-Funktion modellierten Bad auf. Dieses Bad wird dann selbstkonsistent angepasst, sodass es den Einfluss der umgebenden Gitterplätze widerspiegelt. Dies resultiert damit in einer rein diagonalen Selbstenergie in Bezug auf die räumlichen Quantenzahlen. Für niedrigdimensionale Systeme ist die DMFT aber kein geeigneter Ausgangspunkt. Die DMFT wird erst im Grenzfall verschwindender inverser Koordinationszahl $1/Z$ exakt. Für den Fall der zweidimensionalen magneto-optischen Falle ist für jeden Gitterpunkt $Z \leq 4$, an den Rändern und Ecken gilt $Z = 3$, respektive $Z = 2$. Damit ist die Voraussetzung der DMFT nur leidlich erfüllt.

Auch ignoriert die DMFT sogenannte nicht-lokale Prozesse. Eine Möglichkeit, diese systematisch zu integrieren, ist die Formulierung in selbstkonsistenter Näherung. Für translationsinvariante Hubbard-Modelle stellen diese in symmetriegebrochener Phase einen geeigneten Ausgangspunkt dar [van Dongen94b]. Als Spezialfall einer selbstkonsistenten Lösung

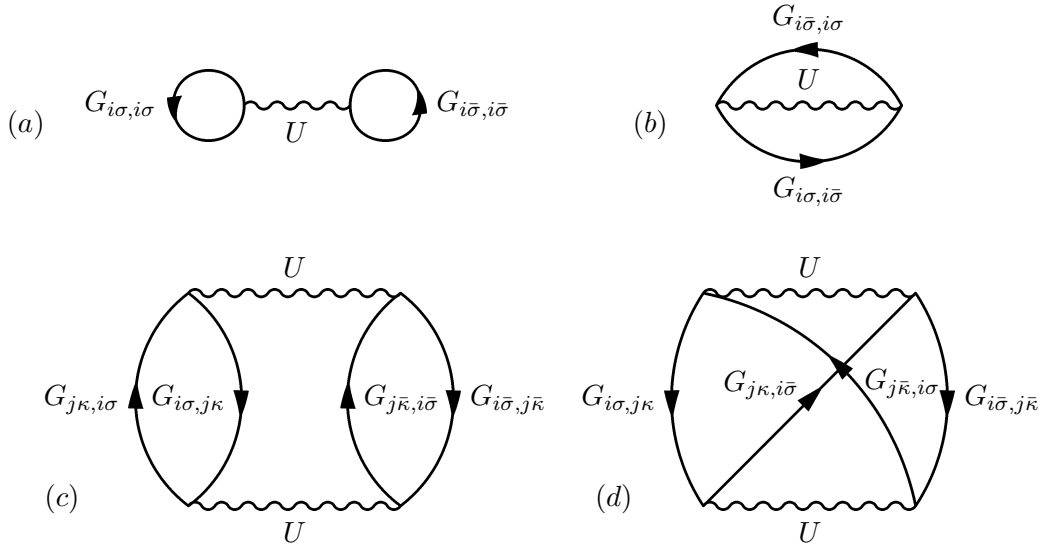


Abbildung 3.25: Diagramme 1. und 2. Ordnung, die zum Luttinger-Funktional des Systems der optischen Falle beitragen. i, j ($i \neq j$) sind Gitterplatz- und $\sigma, \bar{\sigma}$ Spinquantenzahlen. Bemerkenswert ist hier, dass die Wechselwirkung hubbard-artig ist, d.h. die Vertizes im Ortsraum sind rein lokal. Zur Verdeutlichung der Darstellung sind die eingehenden Propagatoren mit Quantenzahlen an den fermionischen Linien angegeben.

werden hier selbst-konsistente Näherungen im Sinne von Baym-Kadanoff betrachtet. Das Luttinger-Ward-Funktional lautet mit dem freien Elektronenpropagator $\underline{\underline{G}}_0$

$$F[\underline{\underline{G}}] = -\text{Tr} \ln \left(\underline{\underline{G}}_0^{-1} - \underline{\underline{\Sigma}} \right) - \text{Tr} \left(\underline{\underline{G}} \underline{\underline{\Sigma}} \right) + \Phi [\underline{\underline{G}}] \quad (3.41)$$

mit dem erzeugenden Luttinger-Funktional $\Phi [\underline{\underline{G}}]$, was als Summe aller irreduziblen, geschlossenen Diagramme aus dem wechselwirkungsbehafteten Propagator $\underline{\underline{G}}$ generiert werden kann. Das Luttinger-Ward-Funktional ist stationär in $\underline{\underline{G}}$ und der Selbstenergie $\underline{\underline{\Sigma}}$, sofern die Dyson-Gleichung $\underline{\underline{G}}^{-1} = \underline{\underline{G}}_0^{-1} - \underline{\underline{\Sigma}}$ erfüllt wird.

Die Selbstenergie $\underline{\underline{\Sigma}}$ ergibt sich dann als Variationsableitung des Funktionals nach den Propagatoren

$$\Sigma_{\alpha\beta} = \frac{\delta\Phi}{\delta G_{\beta\alpha}} \quad (3.42)$$

Für die in dieser Arbeit betrachtete magneto-optische Falle werden Beiträge bis zur 2. Ordnung in U mitgenommen (siehe Abbildung 3.25), sodass der Ansatz im schwachwechselwirkenden Fall gerechtfertigt ist. Mit diesem Ansatz werden irreduzible Selbstenergie-Diagramme generiert, die auszugsweise in Abbildung 3.26 dargestellt sind.

Hieraus ergeben sich alle notwendigen irreduziblen Selbstenergiediagramme, um eine selbst-konsistente Näherung bis zur 2. Ordnung in Schwachkopplungstörungstheorie für die Einteilchen-Green-Funktionen zu bestimmen. In Abbildung 3.26 sind beispielhaft verschiedene der generierten Diagramme aufgeführt. Unter anderem werden in 2. Ordnung auch nicht-lokale Diagramme generiert, d.h. solche, die über die lokale DMFT-Näherung

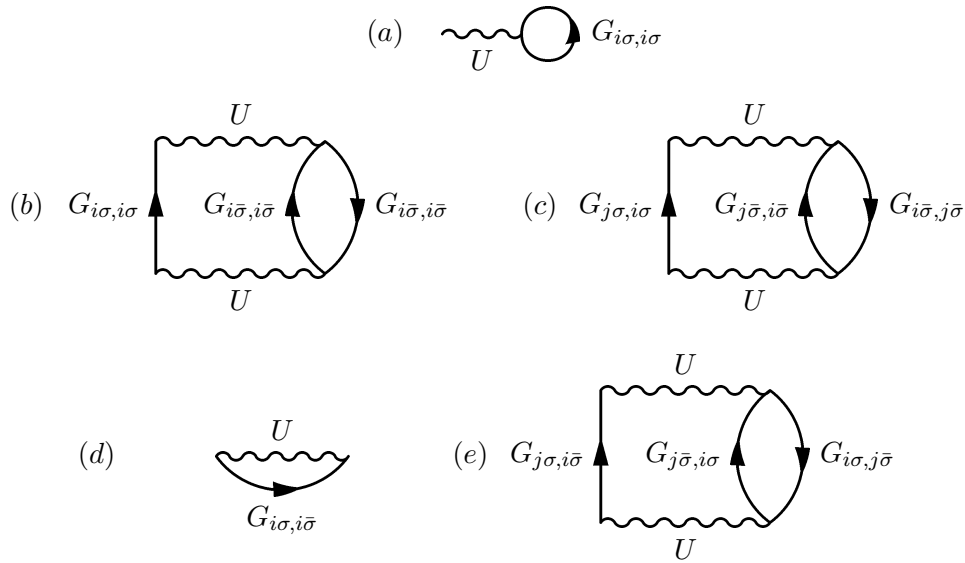


Abbildung 3.26: Beispiele für die durch den Ansatz generierten Diagramme (i, j ($i \neq j$) sind Gitterplatz- und $\sigma, \bar{\sigma}, \kappa, \bar{\kappa}$ Spinquantenzahlen): (a) Hartree-Diagramm, (b) lokales Diagramm 2. Ordnung, (c) nicht-lokales Diagramm 2. Ordnung, (d) lokales, spin-nichtdiagonales Fockdiagramm und (e) nicht-lokales, nicht-spindiagonales Diagramm 2. Ordnung. Zur Verdeutlichung der Darstellung sind die eingehenden Propagatoren mit Quantenzahlen an den fermionischen Linien angegeben.

hinausgehen (Abb. 3.26c, 3.26e). Durch die Verwendung des vorgestellten diagrammatischen Störstellenlösers (Abschnitt 2.1.1) werden alle diese Diagramme, einschließlich der nicht-lokalen, generiert und bilden damit die selbst-konsistente Näherung 2. Ordnung. In diesem Sinn ist es berechtigt, bei der Beschreibung der Methode von einer *Real-Space-Baym-Kadanoff-Approximation* [Baym62] zu sprechen. Durch die Beschränkung auf eine kleinere Auswahl von Diagrammen lässt sich auch mit diesem Ansatz die DMFT-Näherung rekonstruieren. Dies wurde beim aktuellen Stand des Projektes aber noch nicht gemacht.

3.4.2 Der z -Antiferromagnet

Die Resultate werden hier mit Hilfe des auch in den Abschnitten 2.2 und 4.2 verwendeten Programmcodes erzielt. Technisch wird eine Superstörstelle erzeugt, wobei die Gitterplätze in der MOT auf Orbitale der Störstelle abgebildet werden. Durch die sehr allgemeine Konzeption des Programms mussten hier nur spezifische Module ergänzt werden. Die Hybridisierung der einzelnen Gitterplätze musste neu implementiert werden, um der räumlichen Struktur der Gitterplätze (respektive Orbitale) Rechnung zu tragen. Das Hybridisierungsmodul wurde von Cand.-Phys. Pfister konzipiert und in Zusammenarbeit mit dem Autor in das Programm eingearbeitet. Die Wechselwirkung behält ihre einfache Struktur, sie bleibt für die MOT hubbard-artig ($U_{ijkl} \equiv \delta_{ij}\delta_{jk}\delta_{kl}U \equiv U$).

Die allgemeine Konstruktion des Störstellenlösers erlaubt die differenzierte Mitnahme der verschiedenen Ordnungen der diagrammatischen Entwicklung und so auch die Bestim-

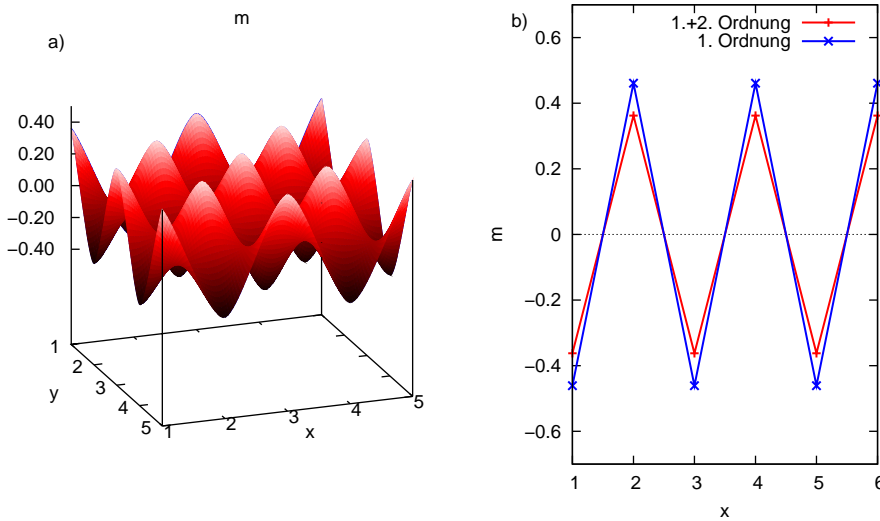


Abbildung 3.27: Magnetisierung für ein periodisches Gitter der Größe 8×8 auf einem kleinen Ausschnitt mit einer Wechselwirkung $U = 2.25$ für eine Rechnung (a) in 1. + 2. Ordnung Störungstheorie (Temperatur $T = 1/50$) bei Half-füllung. Die Werte existieren nur an Gitterpositionen, d.h. für diskrete Paare (x, y) ; die zwischenliegenden Bereiche sind geglättet dargestellt und verdeutlichen nur die Struktur. In (b) ist die Magnetisierung für festgehaltenes y im Vergleich dargestellt. Der Einfluss der 2. Ordnung führt zu einer Abschwächung der Magnetisierung. Der Ordnungsparameter ist für identische Wechselwirkung reduziert.

mung von Ergebnissen mit ausschließlich 1. Ordnung oder 1. und 2. Ordnung. Das erlaubt es, die Ergebnisse in 1. Ordnung mit Resultaten in exakter Diagonalisierung [Gottwald09] zu vergleichen. Die numerischen Ergebnisse für die MOT wurden durch Cand.-Phys. Pfister bestimmt und sind noch unveröffentlicht.

Die Untersuchungen des Modells werden systematisch durchgeführt und gehen vom einfachen Fall aus, bei abgeschalteter Falle ($V_0 = 0$) mit periodischen Randbedingungen hin zum vollen Modell mit Fallenpotential $V_0 > 0$ und Symmetriebrechung. Gesucht wird hier die Beschreibung eines z - und eines x -Antiferromagneten [Gottwald09, Andersen07, Snoek08]. Erwartet werden deutliche Korrekturen in 2. Ordnung, wie sie für unendlich ausgedehnte Systeme bekannt sind [van Dongen94b], und klar erkennbare Lebensdauer-effekte, welche in einem Hartree-Fock-Ansatz (\equiv Ansatz 1. Ordnung Schwachkopplungsstörungstheorie) nicht enthalten sind.

Sofern im Text nicht anders angegeben, wird die Hybridisierungsamplitude $t = 1$ gewählt, die Bandbreite ist somit $W = 8$. In DMFT ergibt sich für schwache Wechselwirkung eine niedrige Néel-Temperatur von etwa $T_N = 1/15$ [Werner05]. Obwohl die hier verwendete Näherung über die DMFT hinausgeht, ist die im Folgenden verwendete Temperatur mit $T = 1/50$ geeignet, um den magnetischen Zustand bei niedriger Temperatur zu betrachten, wie es sich in den Ergebnissen zeigt.

Bricht man die Spinsymmetrie des Systems, lassen sich z -antiferromagnetische Phasen erreichen. In Abbildung 3.27 ist ein Ausschnitt für ein periodisches, optisches 8×8 -Gitter

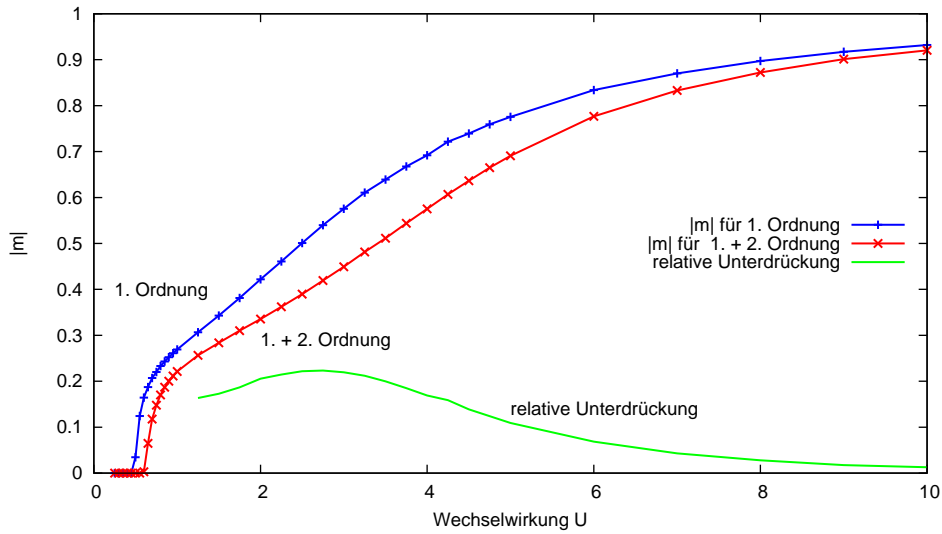


Abbildung 3.28: Ordnungsparameter $|m|$ für ein periodisches Gitter der Größe 8×8 in Abhängigkeit von der Wechselwirkung U (Temperatur $T = 1/50$). Im Vergleich ist das Ergebnis für eine Rechnung mit ausschließlich Diagrammen 1. Ordnung in Schwachkopplungsstörungstheorie zu Ergebnissen mit zusätzlich 2. Ordnung Störungstheorie zu sehen. Die Hinzunahme der 2. Ordnung führt zu einer Abschwächung des Ordnungsparameters für alle betrachteten U . Details siehe Text.

zu sehen, für welches die Magnetisierung

$$m_{xy} = \frac{1}{2}(n_{xy,\uparrow} - n_{xy,\downarrow}) \quad (3.43)$$

dargestellt ist, mit den Ortsraumquantenzahlen x, y . In Abbildung 3.27a findet sich die Magnetisierung für ein periodisches Gitter mit selbstkonsistenter Berücksichtigung der 1. und der 2. Ordnung der diagrammatischen Störungstheorie. Um den Einfluss der 2. Ordnung zu untersuchen, ist in Abbildung 3.27b die Lösung im Vergleich zur selbstkonsistenten Berücksichtigung ausschließlich der 1. Ordnung der Störungstheorie dargestellt. Gegenüber dieser kommt in 2. Ordnung das Diagramm 3.25c hinzu. Bricht man zusätzlich die $SU(2)$ -Symmetrie, kommen die Diagramme in Abbildung 3.25b,d hinzu. Wie sich zeigt, führt die Hinzunahme der 2. Ordnung in der Störungstheorie zu einer Abschwächung der Magnetisierung. Diese Abschwächung der Magnetisierung $|m|$ in Abhängigkeit von der Wechselwirkung, in Abbildung 3.28 dargestellt, ist systematisch und für das periodische Problem für einen breiten Bereich in U dargestellt. Für kleine Wechselwirkungen sind beide Näherungsstufen gleichermaßen paramagnetisch. Mit größer werdendem U durchläuft das System mit beiden Zugängen einen Phasenübergang.

Nimmt man zur 1. Ordnung die 2. Ordnung der Störungstheorie hinzu, führt dies zu einer Verzögerung des Übergangs, d.h. zu einer Verschiebung der kritischen Wechselwirkung U_c hin zu größeren Werten ($U_c^{1.0} < U_c^{1.+2.0}$). Der Ordnungsparameter nimmt mit zunehmender Wechselwirkung monoton zu und ist schon für $U = 10$ sehr nahe bei seinem Maximum $\max |m| = 1$. Hier verliert sich auch der Unterschied beider Ansätze, die Abschwächung auf Grund der 2. Ordnung ist weniger ausgeprägt. Das lässt sich leicht ein-

sehen, weil die Quantenfluktuationen bei großem Ordnungsparameter deutlich abnehmen und damit auch die ersten Korrekturen zur Fluktuation durch die 2. Ordnung weniger bedeutend sind. Aus der Betrachtung des Starkkopplungslimes ist bekannt, dass das resultierende Heisenberg-Modell mit der Kopplung $J \propto t^2/U$ nur schwach magnetisch bei zunehmender Wechselwirkung U ist [Harris67]. Insofern ist die große Magnetisierung bei großer Wechselwirkung ein methodisches Artefakt der Schwachkopplungsentwicklung.

Im Bereich $2.5 \lesssim U \lesssim 6$ ist die Abschwächung durch die 2. Ordnung für eine magnetische Phase am deutlichsten; das relative Maximum wird für $U \approx 2.3$ mit 22% erreicht.

Das Einschalten einer Falle $V_0 > 0$ bricht die Translationsinvarianz des Systems. Am Rand der Falle ist das Potential höher, die Teilchenzahlen sind dort kleiner; im Zentrum ist das Potential tiefer, die Teilchenzahl

$$n_{xy} = n_{xy,\uparrow} + n_{xy,\downarrow} \quad (3.44)$$

folglich größer. In Abbildung 3.29a-d sind die Dichteverteilung und Magnetisierung für eine Falle mit 12×12 Gitterplätzen dargestellt: bei $V_0 = 0.2$, $\mu = 2.0$ (Teilchenzahl $N \approx 48$) und $U = 3.0$ bei Berücksichtigung der 1. Ordnung Störungstheorie (O1) und zusätzlich der 2. Ordnung (O1+O2). In der Mitte ist die Teilchenzahl maximal, am Rand der Falle ist die Besetzung verschwindend klein.

Zum Zwecke der Validierung werden nahezu alle Ergebnisse mit dem Multiband-Code für die 1. Ordnung mit denen einer selbstkonsistenten Hartree-Fock-Lösung (gelöst mittels exakter Diagonalisierung) verglichen [Gottwald09]. In der Näherung der 1. Ordnung Störungstheorie erwartet man, dass Multiband-Code und exakte Diagonalisierung zum gleichen Ergebnis kommen. Exemplarisch findet sich die Magnetisierung für ausgewählte Schnitte (fixes y) in Abb. 3.29e wieder. Die farbigen Kurven ergeben sich durch die Behandlung mit dem Multiband-Code; die feingezogenen, schwarzen Linien werden durch exakte Diagonalisierung erhalten. Die Unterschiede sind kaum auszumachen, der absolute Unterschied ist über die ganze Falle gesehen klein ($\Delta m \lesssim 0.02$). Die Ursache für die Differenz ist in der numerischen Behandlung der Resolventen im Multiband-Code zu suchen. Die Green-Funktion (Resolvente) $G_{\alpha\beta}(z)$ ist auszuwerten für $z = \omega + i\delta$ mit $\delta > 0$ (siehe Abschnitt A.1).

Während die Lösung in 1. Ordnung hervorragend mit der exakten Diagonalisierung übereinstimmt, liefert die zusätzliche Berücksichtigung der 2. Ordnung in der Störungstheorie quantitativ wesentliche Korrekturen. Neben einer Verkleinerung der magnetischen Domäne (vergleiche Abb. 3.29b mit Abb. 3.29d) nimmt auch die maximale Amplitude der Magnetisierung m_{xy} deutlich ab (Abb. 3.29e). Gerade am Rand der magnetischen Domäne verschwindet das magnetische Moment nahezu, in der Mitte kommt es zu einer Abschwächung auf $m_{xy}^{O1+O2}/m_{xy}^{O1} \approx 43\%$.

Gemäß ihrer Definition hat die Green-Funktion, für eine Rechnung in 1. Ordnung Störungstheorie, diskrete Pole an den diskreten, reellen Energieeigenwerten des Hamilton-Operators. Für jedes endliche δ wird die Green-Funktion leicht abseits dieser Pole in der komplexen Halbebene ausgewertet. Deshalb sind im Spektrum der Green-Funktion keine Dirac-Funktionen an den Positionen der Energieeigenwerte zu sehen, sondern Breit-Wigner-Verteilungen mit einer Halbwertsbreite $\propto \delta$. In Abbildung 3.30 sind das Eigenwertspektrum, wie es sich aus der exakten Diagonalisierung ergibt, und die Zustandsdichte des Gesamtsystems, wie sie sich aus der Resolventenbehandlung ergibt, für das beschriebene 12×12 -System dargestellt. Der wesentliche Fehler entsteht nun bei der Bestimmung der

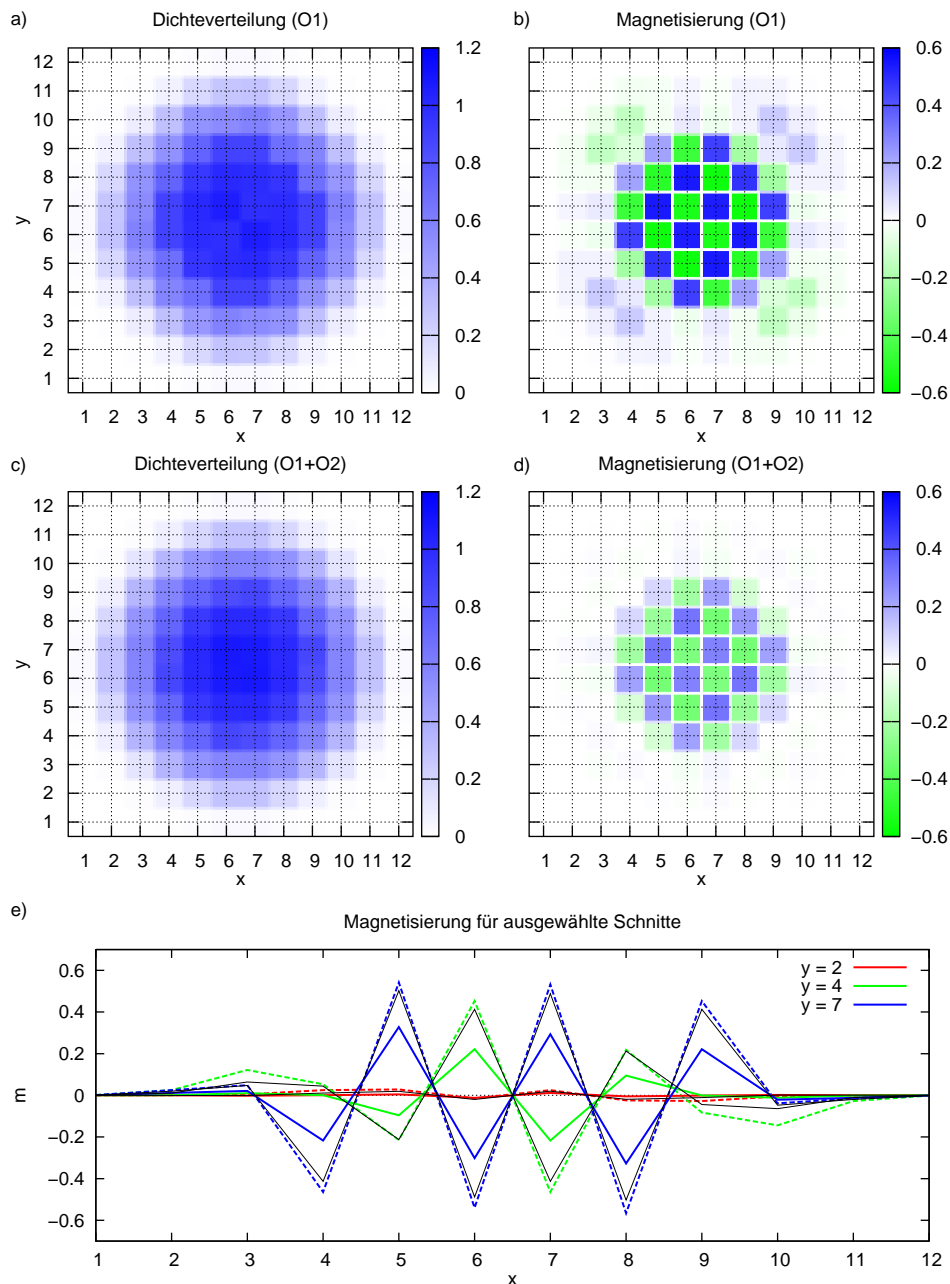


Abbildung 3.29: Dichteverteilung n_{xy} und Ordnungsparameter m_{xy} für eine MOT der Größe 12×12 mit Fallenpotential $V_0 = 0.2$, Wechselwirkung $U = 3.0$ (Temperatur $T = 1/50$). In (a) ist n_{xy} farbkodiert für die gesamte Falle dargestellt (berücksichtigt wird nur die 1. Ordnung in Störungstheorie). Die weißen sind Bereiche nahezu unbesetzt, die tiefblauen mit bis zu 1.2 Teilchen pro Gitterplatz. In (b) ist m_{xy} dargestellt (1. Ordnung Störungstheorie, O1). Weiße Bereiche sind unmagnetisch. Blau und grün indizieren jeweils eine Magnetisierungsrichtung; die Stärke der Magnetisierung ist größer, je intensiver die Farbe. Nimmt man die 2. Ordnung Störungstheorie hinzu (O1+O2) und berücksichtigt so nicht-lokale Korrelationen, ergeben sich in (c) n_{xy} kaum Korrekturen; die (d) Magnetisierung jedoch wird reduziert. In (e) sind ausgewählte Schnitte (fixes y) dargestellt (farbig) für O1 (gestrichelt) und für O1+O2 (durchgezogen). Das Ergebnis O1 stimmt hervorragend mit den Resultaten in exakten Diagonalisierung (feine schwarze Linie) überein.

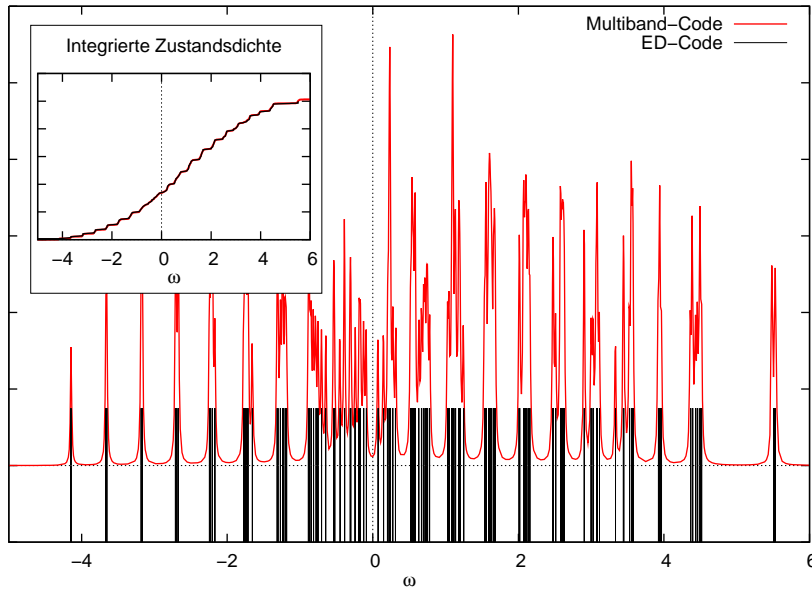


Abbildung 3.30: Eigenwertspektrum im Vergleich zur Zustandsdichte des Gesamtsystems für ein magneto-optisches Gitter der Größe 12×12 ($V_0 = 0.1$, $\mu = 2.25$, entsprechend einer Teilchenzahl $N = 98$ für eine Wechselwirkung $U = 2.5$). Die Verbreiterung der Zustandsdichte für den Multiband-Code ist auf ein $\delta = 0.005$ zurückzuführen. Im Vergleich beider Methoden stimmt die Verteilung der Eigenwerte und deren Position hervorragend überein, wie sich an Hand der integrierten Zustandsdichte einwandfrei ersehen lässt (siehe Inset).

Teilchenzahlen zur Auswertung von Hartree- und Fock-Diagramm für die einzelnen Gitterplätze. Während bei der Eigenwertlösung die spektralen Gewichte der Eigenzustände praktisch exakt summiert werden können, werden bei der Lösung durch den Multiband-Code die Teilchenzahlen durch Integration bestimmt (siehe Gleichung (A.18)). Dabei verursachen die Ausläufer der Breit-Wigner-Verteilungen Fehlzählungen gegenüber der exakten Lösung, welche größer sind, je näher der jeweilige Energieeigenwert an der Fermi-Kante ist. Dann gehen im Besonderen die Wechselwirkungsanteile 1. Ordnung in der Störungstheorie, Hartree- (A.31) und Fock-Diagramm (A.33) ungenau ein. Je kleiner der Parameter δ jedoch ist, desto schärfer werden die Strukturen in den Spektralfunktionen (die Resonanzen werden schärfer), und desto aufwändiger ist es, die Spektralfunktionen numerisch ausreichend genau abzutasten. Um nun eine ausreichende Genauigkeit bei minimalem Rechenaufwand zu erhalten, ist ein geeignetes δ , in Abstimmung mit der Abtastrate und im Vergleich mit den Resultaten der exakten Diagonalisierung, empirisch festzulegen.

3.4.3 Die magneto-optische Falle im Überblick

Der im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Multiband-Code wurde für die Beschreibung einer magneto-optischen Falle adaptiert. Der wesentliche Fortschritt gegenüber den häufig in der Literatur verwendeten *Real-Space*-DMFT-Methoden ist hier die explizite Mitnahme

nicht-lokaler Prozesse, wie sie durch einen orts aufgelösten DMFT-Ansatz ausgeschlossen werden. Die DMFT-Näherung ist im Besonderen für niedrigdimensionale Systeme wie das hier betrachtete zweidimensionale Hubbard-Modell keine geeignete Näherungsstufe.

Im Ergebnis zeigt sich für das optische Gitter bei abgeschalteter magnetischer Falle wie erwartet eine Abschwächung des Ordnungsparameters bei Hinzunahme der 2. Ordnung der Störungstheorie. Für die 1. Ordnung kann auch bei eingeschalteter Falle und für die z -antiferromagnetische Situation eine hervorragende Übereinstimmung mit den Ergebnissen der exakten Diagonalisierung festgestellt werden [Gottwald09]. Die Berücksichtigung der ersten nicht-lokalen Korrekturen mit Hilfe der 2. Ordnung Störungstheorie führen erwartungsgemäß zu einer Abschwächung oder sogar Unterdrückung der Magnetisierung auch in der magneto-optischen Falle. So ergeben sich bedeutende quantitative Korrekturen.

In diesem Sinn handelt es sich um einen erfolgreichen Ansatz, welcher die Ergebnisse für den z -Antiferromagneten verfeinert hat und in der Fortentwicklung auch die Resultate für den xy -Antiferromagneten quantitativ verbessern kann.

4 Halbmetallische Ferromagnete

Der gegenwärtige Fortschritt der sogenannten Magnetoelektronik geht einher mit der Entwicklung neuer magnetischer Materialien, magnetischer Halbleiter und halbmetallischer Ferromagnete. Aus der Halbmetallizität ergeben sich weitere technische Anwendungen wie der Magnetwiderstand oder der Riesenmagnetwiderstand, für dessen Entdeckung in jüngster Zeit ein Nobelpreis vergeben wurde¹.

Die Materialklasse der halbmetallischen Ferromagnete ist für die technische Anwendung von großem Interesse. Die technisch definierende Eigenschaft, die sie dabei so interessant macht, ist, dass diese Substanzen für die eine Spinsorte metallisch und für die jeweils andere Spinsorte halbleitenden oder sogar isolierenden Charakter haben. In einem Einteilchenspektrum lässt sich das als Bandlücke in einem von zwei Spinkanälen identifizieren². Dies erlaubt, Verarbeitungsgeschwindigkeit, Energieverbrauch und Integrationsdichten gegenüber herkömmlichen elektronischen Bauteilen deutlich zu verbessern [Wolf01]. So lässt sich konventionelle, auf Ladungsträgern basierende Halbleiterelektronik in Bezug auf Leistungsfähigkeit und Geschwindigkeit maßgeblich verbessern. Die Vorteile liegen in der Nicht-Flüchtigkeit, verbesserter Prozessgeschwindigkeit, reduziertem Energieverbrauch und erhöhter Integrationsdichte.

Durch Anlegen eines externen magnetischen Felds kann in geschichteten halbmetallischen Verbunden der elektrische Widerstand um Größenordnungen verändert werden. Des Weiteren lassen sich Leiter auf der Basis von Spinströmen (alternativ zu Ladungsströmen) konstruieren. Der Grundgedanke dieser Technologie ist leicht zu fassen: Ein regulärer Ladungsstrom in herkömmlicher Elektronik kann durch einen Spinstrom in der Magnetoelektronik ersetzt werden. Umfassende Überblicke zu den technischen Anwendungen finden sich in der Literatur [Žutić04, Felser07].

Die Halbmetallizität als elektrische Eigenschaft ergibt sich einerseits aus der Kristallstruktur und andererseits aus der Valenzstruktur der beteiligten Elemente. So unterscheidet man zwischen Halb- und Voll-Heuslern, Zinkblenden, Doppelperovskiten, Manganiten etc. Zusätzlich spielt auch die chemische Zusammensetzung eine wesentliche Rolle, sodass innerhalb einer Strukturklasse durch die Substitution einzelner Elemente (respektive Dotierung) die magnetischen Eigenschaften eingestellt werden können. Für Ferromagnete unterscheidet man den Minoritäts- vom Majoritätsspin durch die Besetzung $n_{\text{Minor}} < n_{\text{Major}}$. Für Heusler-Materialien [Heusler03] und Zinkblenden³ findet sich die Bandlücke im Minoritätsspinkanal, bei Doppel-Perovskiten und Manganiten im Majoritätsspinkanal.

Für Heusler-Materialien ergibt sich eine bemerkenswert hohe Spinpolarisation und,

¹Grünberg et al. [Binasch89] und Fert et al. [Baibich88] entdeckten 1988 unabhängig voneinander den Riesenmagnetwiderstand. Für diese Entdeckung wurde an beide der Nobelpreis für Physik 2007 (http://nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/2007) vergeben.

²Inwiefern allein das Einteilchenspektrum eine Aussage über die Leitfähigkeit eines Materials macht, wird zu Beginn des Abschnitt 3.3 diskutiert. Im Allgemeinen liefert dieses keine verbindliche Aussage, für die meisten Situationen ist es jedoch ein sehr guter Indikator für die Metallizität eines Systems.

³Derzeitig werden häufig die binären Halbmetalle in der Forschung untersucht, ein aktueller Überblick findet sich in [Mavropoulos07].

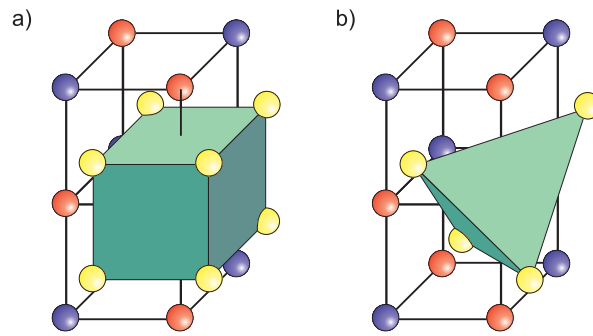


Abbildung 4.1: In (a) ist das $L2_1$ -Kristallgitter eines Voll-Heusler-Materials mit der Strukturformel X_2YZ schematisch abgebildet. In der Raumgruppe $Fm - 3m$ (225) werden an den Wyckoff-Positionen $(1/4, 1/4, 1/4)$, $(0, 0, 0)$ und $(1/2, 1/2, 1/2)$ die Elemente X , Y und Z platziert. Wegen der Symmetrie der Raumgruppe ergibt sich für das Element X eine Doppelzähligkeit: Es kommt die Wyckoff-Position $(3/4, 3/4, 3/4)$ hinzu. Für das Halb-Heusler-Material (b) ist die Raumgruppe $F - 43m$ (216) wesentlich und die Wyckoff-Positionen sind mit $(0, 0, 0)$, $(1/4, 1/4, 1/4)$ und $(3/4, 3/4, 3/4)$ für die Elemente X , Y und Z gegeben.

gemessen an den technisch relevanten Temperaturen, eine sehr hohe Curie-Temperatur (für bestimmte halbmetallische Ferromagnete über 1000 K [Felser07, Wurmehl05]). Eine volle Spinpolarisation der Ladungssträger im halbmetallischen Ferromagneten stellt aber eine hypothetische Situation dar [Katsnelson08] und wird in der Praxis durch Temperatur, Verunreinigungen oder Spinbahnkopplung verhindert. Gerade die Verunreinigungen beziehungsweise Fehlstellen im Kristall [Ebert91] und die schwierige Realisierung von perfekten Oberflächen und Grenzschichten erzeugen Streuzustände in der Bandlücke, welche die Spinpolarisation in den halbmetallischen Ferromagneten stark reduzieren [Wijs01, Galanakis02a]. Weitere Depolarisationseffekte, wie beispielsweise durch phononische Anregungen [Skomski02] oder Spinordnung [MacDonald98], werden in der Literatur diskutiert.

4.1 Dichte-Funktional Theorie

Das elektrische Problem, beschrieben durch realistische Hamilton-Operatoren der Art (1.2), stellt ein kompliziertes Vielteilchenproblem dar, welches derzeit für realistische Materialbeschreibungen in voller Allgemeinheit unlösbar ist. In vielen Situationen ist es jedoch erfolgreich möglich, das Vielteilchenproblem vereinfacht zu modellieren oder nur in Teilaspekten zu berücksichtigen und vereinfacht in die Lösungsmethode zu implementieren. In einer solchen Situation gelingt es nun, Materialien, wie sie auf Grund von einfachen stöchiometrischen oder kristallographischen Untersuchungen bekannt sind, elektronisch sehr genau zu beschreiben. Die Klasse dieser Methoden bezeichnet man gemeinhin als *ab initio*-Methoden⁴, da der Ausgangspunkt nur durch die Kristallstruktur definiert ist und man von dort ausgehend eine Beschreibung der Elektronenstruktur des Materials im Grundzustand

⁴ab initio, lat.: von Anfang an.

erhält. Die Dichte-Funktional-Theorie (DFT) hat sich als *ab initio*-Methode etabliert, weil sie einerseits eine hervorragende Beschreibung einer großen Klasse von Materialien liefert und andererseits ausgesprochen effizient implementiert werden kann.

In der Born-Oppenheimer-Näherung stellt sie einen geeigneten Ausgangspunkt zur Beschreibung des Problems (1.2) dar. Die Dichte-Funktional-Methode basiert darauf, dass ein allgemeines Funktional $F[n(\underline{r})]$ existiert, wobei $n(\underline{r})$ die räumlich aufgelöste Elektronendichte ist, sodass der Ausdruck

$$E = \int d\underline{r} [v(\underline{r})n(\underline{r}) + F[n(\underline{r})]] \quad (4.1)$$

genau für den physikalisch korrekten Grundzustand minimiert wird, abhängig von einem äußeren Potential $v(\underline{r})$ [Hohenberg64]. Diese Aussage wurde kurz nach ihrer Veröffentlichung auf endliche Temperaturen erweitert [Mermin65]. Eine systematische Bestimmung des Funktionals wird durch einen mächtigen Ansatz von Kohn und Sham [Kohn65] ermöglicht und bedingt den enormen Erfolg der Methode.

Der Kohn-Sham-Ansatz⁵ basiert auf der Annahme, dass die physikalische Teilchendichte eines wechselwirkenden Elektronensystems $n(\underline{r})$ durch ein System nicht-wechselwirkender Elektronen $n_0(\underline{r}) = \sum_{i,\sigma} |\psi_{i,\sigma}(\underline{r})|^2$ in einem effektiven lokalen Potential dargestellt werden kann. Für dieses Einteilchenproblem ergibt sich die Kohn-Sham-Wellenfunktion als einfache Slater-Determinante. Die Einteilchen-Wellenfunktionen $\psi_{i,\sigma}(\underline{r})$ im Hilfsfeld genügen der Schrödinger-Gleichung für das effektive Potential. Das Grundzustandsenergiefunktional lautet für diese Elektronendichte

$$E_{KS} = T_S[n_0] + \int d\underline{r} V_{\text{ext}}(\underline{r})n_0(\underline{r}) + E_{\text{Hartree}}[n_0] + E_{\text{xc}}[n_0] \quad (4.2)$$

mit der kinetischen Energie $T_S[n_0]$, dem externen Potential V_{ext} , welches die Elektronen erfahren, dem klassischen Dichte-Dichte-Anteil E_{Hartree} und dem unbekanntem Austausch-Korrelations-Funktional $E_{\text{xc}}[n_0]$. Wäre letzteres Austausch-Korrelations-Funktional exakt bekannt, so würde das Kohn-Sham-Funktional E_{KS} minimal für die Elektronendichte im Grundzustand $n_0(\underline{r}) = n(\underline{r})$. Der Vorzug dieser Formulierung ist, dass die langreichweitigen, dominanten Anteile des elektronischen Problems über einfache Funktionale der Einteilchenwellenfunktionen (T_S , V_{ext} und E_{Hartree}) beschrieben werden und das unbekanntem Austausch-Korrelations-Funktional $E_{\text{xc}}[n_0]$ in vielen Situationen vernünftig lokal approximiert werden kann, d.h. die Effekte von Austausch und Korrelation relativ kurzreichweitig sind. Für eine gegebene Näherung des Austausch-Korrelations-Funktional $E_{\text{xc}}[n_0]$ liefert dann

$$\frac{\delta E_{KS}}{\delta \psi_{i,\sigma}(\underline{r})} = 0 \quad (4.3)$$

eine Näherung für den Grundzustand.

Es zeigt sich, dass diese Annahme bei Festkörpern gerechtfertigt ist, bei denen die Elektronenverteilung sehr homogen ist, die Elektronen nahezu frei und stark itinerant sind, die

⁵Im Weiteren wird die Kohn-Sham-Methode für den Grundzustand betrachtet. Es gibt Erweiterungen für angeregte Zustände, wie sie sich auf Grund des Hohenberg- und Kohn-Theorems ergeben. Diese werden hier aber nicht betrachtet.

Lösung also in Nähe des freien Elektronengases ist. In der Praxis hat sich die *Local (Spin) Density Approximation* (LDA, LSDA) bewährt, manchmal wird auch die *Generalized Gradient Approximations* (GGA) verwendet. Die genaue Form des Austausch-Korrelations-Funktional kann und wird im Ansatz von einfacheren Modellen parametrisiert, wie beispielsweise dem homogenen Elektronengas [Barth72, Gunnarsson76], oder kann durch numerische Lösungen, beispielsweise mit Hilfe von QMC [Ceperley80, Vosko80], approximiert werden. Siehe hierzu auch den Übersichtsartikel [Jones89].

Die verschiedenen bekannten DFT-Programme unterscheiden sich in erster Linie durch die Wahl des Funktionensystems $\{\psi_{i,\sigma}(\underline{r})\}$. Sehr einfach gestalten sich Ansätze mit fixer Basis, wie beispielsweise ebene Wellen, Gauß'sche Orbitale oder Linearkombinationen atomarer Orbitale. Deren Nachteil aber ist, dass die Zahl der Basisfunktionen sehr groß werden kann. Alternativ dazu finden sich die sogenannten *Partial-Wave-Methods*, welche die Wellenfunktionen in energie- und potentialabhängige Partialwellen zerlegen. Das Basissystem ist dann deutlich kleiner und die Genauigkeit sehr viel höher. Man unterscheidet grundlegend zwischen *Full-Potential*- und *Pseudo-Potential*-Ansätzen, welche die stark lokalisierten Kernelektronen mehr oder weniger berücksichtigen. Die Beschreibung der relevanten itineranten Elektronen profitiert bei *Full-Potential*-Ansätzen von der besseren Darstellung der Kernabschirmung, bei *Pseudo-Potential*-Ansätzen reduziert sich der Aufwand deutlich. Für die Lösung des elektronischen Problems im Festkörper hat sich die *Atomic Sphere Approximation* bewährt. Hier wird der Nahbereich der Ionenrümpfe (die *Atomic Sphere*) durch stark lokalisierte Wellenfunktionen beschrieben und der Zwischenbereich mit recht flachen Wellenfunktionen interpoliert.

In dieser Arbeit werden der *Linear Muffin Tin Orbital*-Code (LMTO) und dessen Nachfolger der *n*th Order Muffin Tin Orbital-Code (NMTO) aus Stuttgart [Andersen75, Andersen98] verwendet. Dieser Ansatz platziert sogenannte Muffin-Tins⁶ an den Gitterpositionen der Ionenrümpfe und bestimmt deren Radius so, dass das Volumen der Muffin-Tins gleich dem Volumen der Wigner-Seitz-Zelle des jeweiligen Atoms ist. Das führt zu überlappenden, atomaren Sphären. Innerhalb dieser Kugeln wird das Potential, welches die Elektronen erfahren, isotrop angenommen ($v_R \equiv v_R(r_R)$). Die Wellenfunktionen der einzelnen Hilfselektronen $\Psi_i(\underline{r})$ werden im Muffin-Tin R (am Ort \underline{r}_R) aus den Lösungen der radial-symmetrischen Schrödingergleichung superponiert

$$\Psi_i(\underline{r}) = \sum_{R,lm} c_{R,lm,i} \phi_{R,lm}(\epsilon_i, \underline{r} - \underline{r}_R) \quad (4.4)$$

$$\text{mit} \quad \phi_{R,lm}(\epsilon_i, \underline{r}_R) \equiv \varphi_{R,l}(\epsilon_i) Y_{lm} \quad (4.5)$$

$$\text{und} \quad \frac{\partial^2}{\partial r^2} r \varphi_{R,l}(\epsilon, r) = - \left[\epsilon - v_R(r) - \frac{l(l+1)}{r^2} \right] r \varphi_{R,l}(\epsilon, r) \quad (4.6)$$

mit der orbitalen und der magnetischen Quantenzahl l bzw. m . Die Ansatzfunktionen $\varphi_{R,l}(\epsilon, r)$ werden hierbei am Rand der atomaren Sphäre trunziert. Der große Vorteil dieses Ansatzes ist, dass die Wellenfunktionen stark um die Kernpositionen lokalisiert und damit sehr nahe an der Idee des Hubbard-Modells (3.2), (3.3) sind (siehe Abschnitt 3.1).

Die Ansatzfunktionen der beschriebene LMTO hängen linear von der Energie ab. Für den NMTO-Ansatz werden statt der linearisierten Ansatzfunktionen Lagrange-Polynome höherer Ordnung auf einem Satz verschiedener Stützstellen konstruiert. In erster Ordnung

⁶ *muffin-tin* engl. : Eine Backform für Muffins. Muffins sind kleine Butterküchlein.

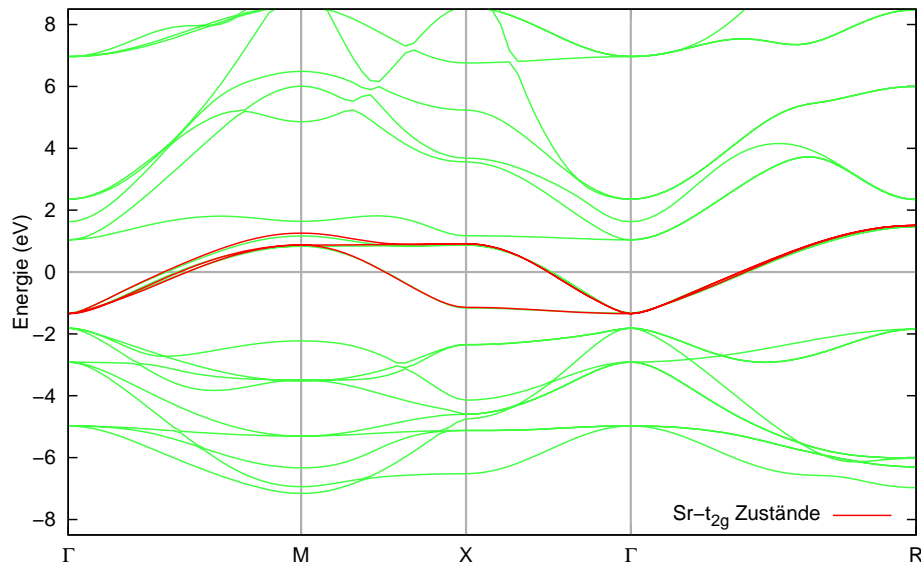


Abbildung 4.2: Down-folding für SrVO_3 auf die drei t_{2g} -Bänder des Strontium. In der Abbildung sind die Energieeigenwerte des Hamiltonians als Funktion linear interpolierter \underline{k} -Vektoren zwischen den Symmetriepunkten Γ , M , X und R wiedergegeben. Sie bilden die Bandstruktur ab. Die Bandstrukturen an der Fermi-Kante werden offensichtlich durch die Elektronen in den t_{2g} -Orbitalen der Strontiumatome generiert und sind energetisch gut von den anderen Zuständen separiert.

ist NMTO äquivalent zur LMTO-Methode. Dank des Variationsprinzips ist der Fehler für die Einteilchenenergien proportional zu $(\epsilon - \epsilon_0)^2 \dots (\epsilon - \epsilon_N)^2$ und liefert damit ein sehr akkurates Ergebnis im Energiebereich der Stützstellen $\{\epsilon_m\}$.

Die NMTO-Rechnung führt auf verbesserte Ergebnisse gegenüber der LMTO-Rechnung. Darüber hinaus erlaubt der Code neben der Bestimmung von Bandstrukturen und Spektralfunktionen (Zustandsdichten) auch die Ausgabe der Hamilton-Matrix in der Basis der orbitalen Ansatzfunktionen. Diese Basis lässt sich außerdem auf einen Satz gewählter Orbitale reduzieren, sodass man einen bestimmten Energiesektor mit einer minimalen Zahl an Zuständen beschreiben kann. Dieser Schritt wird in der Literatur als *Down-folding* bezeichnet. In Abbildung 4.2 ist das gelungene Down-folding auf die drei t_{2g} -Bänder des Strontium für SrVO_3 an der Fermi-Kante abgebildet. Interessiert man sich für die Niederenergieeigenschaften (~ 1 eV in der Nähe Fermi-Kante) von SrVO_3 , genügt die Kenntnis der rot markierten Zustände, um eine adäquate Beschreibung des Festkörpers in diesem Energiesektor zu erhalten. Günstig ist in diesem Schulbeispiel, dass die t_{2g} -Zustände gut von den anderen Zuständen separiert liegen, sodass sich eine eindeutige und einfache Zuordnung der Orbitale und der Bänder ergibt. Die LDA+DMFT Untersuchung von SrVO_3 ist auf Basis einer NMTO-Rechnung in [Nekrasov06] veröffentlicht.

4.2 Lokale-Dichte-Approximation+X

Die Dichtefunktionaltheorie (DFT) in Näherung durch die Lokale-Dichte-Approximation liefert eine quantitativ gute Beschreibung einer Vielzahl von Materialien, deren Elektronen stärker itineranten als lokalisierten Charakter haben. Für Elektronensysteme mit stärker lokalisierten Elektronen ergeben sich jedoch Defizite. Es gibt verschiedene Ansätze, die den lokalisierten Charakter besser in die Lösungen der LDA einbinden. Der $LDA+U$ Ansatz ergänzt das in der LDA gelöste Energiefunktional um explizit lokalisierte, molekularfeldartige Anteile [Anisimov91]

$$E_{\text{LDA}+U} = E_{\text{LDA}} + \frac{1}{2} \sum_{m\sigma \neq m'\sigma'} (U - J\delta_{\sigma\sigma'}) (n_{m\sigma} - \bar{n})(n_{m'\sigma'} - \bar{n}) \quad (4.7)$$

mit orbitalen und Spinquantenzahlen m, m' und σ, σ' , Wechselwirkungsintegralen U, J sowie der mittleren Teilchenzahl $\bar{n} = \frac{1}{2M} \sum_{m,\sigma}^{M,2} n_{m\sigma}$. Im unpolarisierten Fall ist $E_{\text{LDA}+U} = E_{\text{LDA}}$. Eine orbitale oder Spinordnung führt generisch zu negativen Beiträgen durch den lokalisierten Wechselwirkungsterm, der eine gleichzeitige Zunahme der Energie in der LDA E_{LDA} wettmachen kann. Insofern stabilisiert LDA+U geordnete Phasen. Der Beitrag der mittleren Teilchenzahl \bar{n} verhindert das Überzählen von Wechselwirkungstermen, allgemein als *double-counting* benannt: Die Wechselwirkungsenergien zwischen den Elektronen sind bereits in der LDA berücksichtigt, werden aber, weil ihre Berücksichtigung nicht adäquat ist, in der beschriebenen, lokalisierten Form erneut gezählt. Folglich muss die überzählte Wechselwirkungsenergie abgezogen werden. Dies geschieht mit Hilfe der mittleren Teilchenzahl \bar{n} in Gleichung (4.7).

Einen Schritt weiter gehen die Arbeiten von Steiner [Steiner92, Steiner94], welche eine paramagnetische LDA-Lösung (LMTO, siehe Abschnitt 4.1) zum Ausgangspunkt nehmen und auf dieser Basis eine Selbstenergie störungstheoretisch konstruieren, die dann eine erste Korrektur zur LDA-Lösung liefert (in diesem Fall für die $3d$ -Elektronen eines Ferromagneten)

$$\Sigma_{\underline{k},\sigma}^{dd}(\omega) = \Sigma_{\sigma}^{(1)} + \Sigma_{\underline{k},\sigma}^{(2) dd}(\omega) - \Sigma_c^{DC} \quad . \quad (4.8)$$

Der erste Term entspricht der LDA+U-Korrektur und erlaubt dem im Ausgangspunkt paramagnetischen System die Polarisation; der zweite Summand liefert die ersten (nicht-lokalen) Korrekturen, welche Korrelationen berücksichtigen. Der letzte Term Σ_c^{DC} korrigiert die schon berücksichtigten Korrelationseffekte in der Austausch-Korrelations-Energie (4.2) der LDA-Rechnung. Sie werden in der Arbeit [Steiner92] als klein identifiziert und zu Null gesetzt. Vernachlässigt man die zweite Ordnung in diesem Ansatz, ist er voll äquivalent zur oben beschriebenen LDA+U. Schon in ihrer Arbeit äußern die Autoren, dass die Selbstenergie gerade im Mehrbandfall nur schwach von \underline{k} abhängt, eine Vernachlässigung dieser Abhängigkeit aber den numerischen Aufwand dramatisch reduziert. Folglich berücksichtigen sie in der Folgearbeit [Steiner94] nur die lokalen Anteile in der Selbstenergie und formulieren die selbstkonsistente Dysongleichung

$$G_{\underline{k},\sigma}(\omega) = G_{\underline{k},\sigma}^{\text{LDA}}(\omega) + G_{\underline{k},\sigma}^{\text{LDA}}(\omega) \tilde{\Sigma}^{(2)}(\omega) G_{\underline{k},\sigma}(\omega) \quad , \quad (4.9)$$

wobei die Einteilcheneffekte, wie Hybridisierung und Energiesplitting, in der Green-Funktion $G_{\underline{k},\sigma}^{\text{LDA}}(\omega)$ auf Basis der LDA/LMTO-Lösung enthalten sind und die Korrelationseffekte in der energieabhängigen Selbstenergie reflektiert werden.

Verallgemeinert man diese Idee, so wird die Lösung eines Hamilton-Operators bestimmt, der auf der einen Seite die numerischen Ergebnisse der Bandstrukturrechnung und auf der anderen Seite den modellhaften, vom Hubbard-Modell bekannten Wechselwirkungsanteil (siehe Gleichung 3.3) enthält und dadurch die Wechselwirkungseffekte verbessert implementiert

$$\hat{H}_{\text{LDA+X}} = \hat{H}_{\text{LDA}} + \frac{1}{2} \sum_{mnop, \sigma\sigma'} \hat{c}_{m\sigma}^\dagger \hat{c}_{n\sigma'}^\dagger \hat{c}_{o\sigma'} \hat{c}_{p\sigma} U_{mnop} - \hat{H}_{\text{DC}} \quad (4.10)$$

Die LDA-Lösung liefert eine Einteilchenlösung und wird somit durch einen bilinearen Hamiltonian \hat{H}_{LDA} beschrieben. Vergleicht man den Hamilton-Operator (4.10) mit dem Mehrband-Hubbard-Hamilton-Operator (3.3), so fällt auf, dass der bilineare Hybridisierungsanteil durch die LDA-Lösung ersetzt wird. Der letzte Summand \hat{H}_{DC} in (4.10) verhindert approximativ das oben beschriebene *double-counting*. Die Wechselwirkungsintegrale erzeugen natürlich molekularfeldartige Dichte-Dichte-Wechselwirkungen, die aber schon in der LDA berücksichtigt wurden, sodass diese nur korrigiert werden müssen. Der Operator \hat{H}_{DC} stellt genau dies sicher.

Unglücklicherweise gibt es keinen direkten Zusammenhang zwischen LDA und Hubbard-Modell, weil die LDA auf dem Modell eines homogenen Elektronengases beruht und Energiebeiträge summiert, während das Hubbard-Modell auf einer lokalisierten atom-artigen Orbitaldarstellung basiert. Weil es keine mikroskopische Verknüpfung zwischen LDA und Hubbard-Modell gibt, bleibt unklar, welcher Anteil der Hubbard-Wechselwirkung schon in der LDA-Energie enthalten ist. Daher ist es unmöglich, die in der LDA berücksichtigten Wechselwirkungsbeiträge rigoros durch einen Coulomb-Parameter U auszudrücken [Held06].

In diesem Sinne lautet die verallgemeinerte Green-Funktion des Gitters bei expliziter Berücksichtigung von Korrelationen

$$\underline{\underline{G}}(\underline{k}, z) = \left((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{H}}_{\text{LDA}}(\underline{k}) - \underline{\underline{\Sigma}}(\underline{k}, z) \right)^{-1}, \quad (4.11)$$

wobei die Quantenzahlen, die Spin-, orbitale und atomare Quantenzahlen in der Einheitszelle definieren, in der Matrixstruktur kodiert sind. $\underline{\underline{H}}_{\text{LDA}}(\underline{k})$ ist die Hamilton-Matrix $H_{\text{LDA}, \gamma\delta} = \langle \gamma | \hat{H}_{\text{LDA}}(\underline{k}) | \delta \rangle$. Hierbei ist die LMTO/NMTO Methode ein adäquater Startpunkt, weil sie die Hamilton-Matrix auf Grund der MTO-Näherung (siehe Abschnitt 4.1) direkt in Spin und orbitalen Quantenzahlen auflöst.⁷ Die Vielteilcheneffekte sind in der Selbstenergie enthalten. Mit der Bestimmung einer Selbstenergie $\underline{\underline{\Sigma}}(\underline{k}, z)$ ist man also mit Hilfe von (4.11) sofort in der Lage, eine Verbesserung der zu Grunde liegenden LDA-Lösung zu konstruieren. In diesem Sinne stellt Gleichung (4.11) den LDA+X-Ansatz dar.

Für viele elektronische Systeme wird der wesentliche Teil der Korrelationseffekte mit einer lokalen Selbstenergie beschrieben $\underline{\underline{\Sigma}}(\underline{k}, z) \approx \underline{\underline{\Sigma}}(z)$: Die DMFT (siehe Abschnitt 3.2), vernachlässigt nicht-lokale Korrelationen und überführt das Gitterproblem auf das numerisch einfacher behandelbare Störstellen-Anderson-Modell (siehe Kapitel 2 und im besonderen Abschnitt 2.2). Die DMFT vereinfacht damit die Problemstellung (4.11) und führt zur bekannten *LDA+DMFT*-Formulierung in Form einer Green-Funktion für das Gitter

$$\underline{\underline{G}}(z) = \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} \left((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{H}}_{\text{LDA}}(\underline{k}) - \underline{\underline{\Sigma}}(z) \right)^{-1}. \quad (4.12)$$

⁷Im Vergleich dazu wäre mit einem Ansatz ebener Wellen eine aufwändige Projektion auf die lokalisierten atomaren Orbitale notwendig.

An dieser Stelle fällt sofort die formale Übereinstimmung der Gitter-Green-Funktion für LDA+DMFT (4.12) und der für das Mehrband-Hubbard-Modell (3.7), (3.8) auf. Die LDA+DMFT geht aus der gewöhnlichen DMFT-Betrachtung des Hubbard-Modells über die Einführung einer mittels LDA numerisch bestimmten Dispersion hervor. Wichtig ist aber, dass das Überzählen von Wechselwirkungseffekten (*double-counting*, \hat{H}_{DC}) vermieden wird. Dies muss bei der Bestimmung der Selbstenergie berücksichtigt werden. Die Parameter für die LDA+DMFT Lösung werden dann komplettiert durch die Auswahl eines Störstellenlösers und der Wechselwirkungsmatrixelemente. Ab diesem Punkt verfährt man wie bei einer gewöhnlichen DMFT (siehe Abbildung 3.1) und bestimmt neben der Selbstenergie $\underline{\Sigma}(z)$, der Green-Funktion (4.12) auch das Weiss-Feld (3.10).

Für besonders einfache Fälle, wie das in Abschnitt 4.1 erwähnte Beispiel für SrVO₃ (Abb. 4.2), verschwinden die nicht-diagonalen Propagatoren, sodass $G_{\alpha\beta}(z) \equiv G_{\alpha\beta}(z)\delta_{\alpha\beta}$ gilt (für verallgemeinerte Quantenzahlen α und β). In diesem Fall ist die Matrixinversion in (4.12) trivial und reduziert sich auf eine skalare Form

$$G_{\alpha\alpha}(z) = \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} \frac{1}{(z + \mu) - H_{\text{LDA},\alpha\alpha}(\underline{k}) - \Sigma_{\alpha\alpha}(z)} . \quad (4.13)$$

In einer derartigen Situation lässt sich die \underline{k} -Raum Summation auch auf eine Hilbert-Transformation (A.39) mit der Zustandsdichte des Bandes α zurückführen (siehe Abschnitt A.4). Eine derartige LDA+DMFT-Behandlung ist auch mit dem HF-QMC-Code, welcher in dieser Arbeit für das Zweiband-Modell (Abschnitt 3.3) verwendet wird, möglich.

Für die in Abschnitt 4 untersuchten Heusler-Materialien sind aber gerade die nicht-diagonalen Propagatoren deutlich von Null verschieden, sodass eine Vereinfachung des Problems auf ein in Quantenzahlen diagonales Problem (4.13) nicht möglich ist. In diesem Fall ist es notwendig, die deutlich aufwändigere Form (4.12) auszuwerten. An dieser Stelle wird auch der qualitative Unterschied deutlich, weil im allgemeinen Fall eine Matrix invertiert und über den \underline{k} -Raum summiert werden muss, während in (4.13) nur mehrere Quotienten gebildet werden müssen.

Die ersten Resultate für die LDA+DMFT-Methode wurden in iterierter Störungstheorie (IPT) [Anisimov97], *Non-Crossing-Approximation* (NCA) [Zölf00] oder mit Quanten-Monte-Carlo (QMC) [Katsnelson00] für die Lösung des Störstellenproblems erhalten. In dieser Arbeit wird die Störstellenlösung in LDA+DMFT mit dem in Abschnitt 2.1.1 diskutierten Schwachkopplungsansatz für allgemeine Mehrorbital- und Mehrstörstellenmodelle bestimmt. Die Vorteile diesen Ansatzes liegen in der einfachen Struktur und der numerischen Effizienz. Die numerischen Parameter lassen sich sehr gut kontrollieren, sodass das Ergebnis weitestgehend frei von numerischen Fehlern ist. Mit diesen Voraussetzungen lassen sich ohne größere Schwierigkeiten auch sehr komplizierte Mehrorbital- und Mehrstörstellensysteme mit nicht-diagonalen Green-Funktionen bei tiefen Temperaturen untersuchen. Diese Methode wird im Weiteren als LDA+DMFT(PT)⁸ bezeichnet. Die Nachteile liegen auf der Hand: Als Schwachkopplungsansatz ist die Methode streng genommen nur bei sehr kleiner Wechselwirkung gültig. Für das untersuchte Heusler-Material ist die kinetische Energie der Elektronen größer als deren Wechselwirkung untereinander. In diesem Sinn stellt eine Schwachkopplungsentwicklung einen möglichen Ausgangspunkt dar.

⁸PT \equiv *Perturbation Theory*

4.3 LDA+DMFT für ein Voll-Heusler-Material

Die halbmimetallischen Heusler-Materialien kristallisieren typisch in zwei Strukturen: den sogenannten *Voll-Heusler-Materialien* in der $L2_1$ -Struktur, die durch vier sich durchdringende *fcc*-Gitter generiert werden, und die sogenannten *Halb-Heusler-Materialien* in der $C1_b$ -Struktur, bei der eines der vier Untergitter unbesetzt bleibt (siehe Abbildung 4.1). Experimentell erregten diese Materialien auf Grund ihrer speziellen magnetischen Eigenschaften lange erhöhtes Aufsehen. Durch eine *ab initio*-Rechnung durch de Groot [Groot83] konnte die Halbmetallizität als Ursache identifiziert werden⁹. Es gibt kein direktes Experiment, welches die Halbmetallizität eines Materials zweifelsfrei beweist oder widerlegt¹⁰ [Katsnelson08]. An dieser Stelle helfen numerische Strukturanalysen (mit Hilfe der Dichtefunktionaltheorie (DFT)) weiter, welche die Eigenschaften für viele Materialien auflösen können. Diese haben aber Schwächen bei der Beschreibung des lokalisierten Charakters von Elektronensystemen, sodass sich gerade bei den Halbmetallen mit itineranten und lokalisierten Elektronen Defizite bei der Analyse ergeben. So wird etwa die Bandlücke typischerweise um etwa 30 % unterschätzt.

Die Voll-Heusler-Materialien in der $L2_1$ -Struktur bilden eine ausgezeichnete Klasse unter den halbmimetallischen Ferromagneten auf Grund ihrer hohen Curie-Temperatur (diese liegt bei etwa $\sim 800 - 1100$ K), die sie für technische Anwendungen ungemein interessant macht. Besonders bemerkenswert ist hier Co_2FeSi mit einer Curie-Temperatur von $T_C = 1100$ K und einem gemessenen magnetischen Moment von $(5.97 \pm 0.05) \mu_B$ [Wurmehl05]. Für die Co_2 -basierten Heusler-Materialien lässt sich empirisch ein linearer Zusammenhang zwischen magnetischem Moment und Curie-Temperatur feststellen [Fecher06]. Das magnetische Moment selbst folgt für Heusler-Materialien der Slater-Pauling-Regel [Kübler84, Galanakis02b], die einen sehr einfachen Zusammenhang für die $L2_1$ -Voll-Heusler-Materialien liefert

$$M_{L2_1} = (N_V - 24) \mu_B \quad . \quad (4.14)$$

Hier ist N_V die Valenzelektronenzahl, die für stöchiometrische Heusler-Materialien der Strukturformel X_2YZ immer ganzzahlig ist. In Abbildung 4.3 ist die sogenannte Slater-Pauling-Kurve für $3d$ -Übergangsmetalle dargestellt.

Für viele dieser Materialien liefern die numerische Untersuchungen mit der DFT eine sehr gute Beschreibung des Experiments [Gillesen09]. Gerade aber für das technologisch relevante Co_2FeSi funktioniert die Beschreibung mit Lokaler-Dichte-Approximation (LDA, siehe Abschnitt 4.1) eher schlecht, und das magnetische Moment wird je nach Ansatz unterschiedlich ausgewertet. In Tabelle 4.1 sind die magnetischen Momente verschiedener Methoden aufgeführt, wie sie in [Wurmehl05, Kandpal06] aufgelistet sind.

⁹Historisch wurde die Untersuchung der Heusler-Materialien angeregt, weil sich bei ihnen die Möglichkeit ergab, aus nicht-magnetischen Konstituenten ein magnetische Verbindung herzustellen [Heusler03]. Die Ursache für die ungewöhnlichen Leitungseigenschaften blieben lange im Dunkeln, bis Kübler et al. [Kübler83] einen Zusammenhang zwischen der Minoritätszustandsdichte, für unter anderem Co_2MnAl und Co_2MnSn , und den Transporteigenschaften der Materialien vermuteten.

¹⁰Am besten leistet dies eine spin-aufgelöste Positronvernichtung [Hanssen86].

¹¹Abkürzungen:

MT \equiv *Muffin-Tin*

VWN \equiv Vosko, Wilk und Nussair [Vosko80]

GGA \equiv *Generalized-Gradient-Approximation* [Perdew92]

FLAPW \equiv *Full potential linear augmented plane wave* (wie im DFT-Code Wien2k)

	Methode	$\mu_{\text{total}} (\mu_B)$	$\mu_{\text{Co}} (\mu_B)$	$\mu_{\text{Fe}} (\mu_B)$
a)	LDA, MT ¹¹	4.99	1.18	2.68
	E_{xc} nach VWN			
	LDA, MT	5.22	1.22	2.85
	E_{xc} mit GGA			
	LDA, FLAPW	5.59	1.40	2.87
	E_{xc} nach VWN			
	LDA+U	6.00	1.54	3.30
b)	LDA/NMTO	5.31	1.18	2.76
	E_{xc} mit GGA			
c)	SQUID [Wurmehl05]	5.97 ± 0.05		
	$T = 5 K$, weit im Festkörper			
	XMCD [Schneider06]	4.80 ± 0.10 (SQUID)	1.36 ± 0.10	2.50 ± 0.10
	$T = 300 K$, dünner Film			

Tabelle 4.1: Magnetisches Gesamtmoment und atomare magnetische Momente für Co_2FeSi unter Verwendung (a) verschiedener numerischer Methoden [Wurmehl05], (b) Berechnung mittels Dichtefunktionaltheorie (NMTO) durch den Autor und (c) verschiedener Experimente [Wurmehl05, Schneider06]. Die Abkürzungen werden in Fussnote [11] erläutert.

Der berechnete Wert hängt sehr empfindlich von der verwendeten Methode ab. Das beste Ergebnis in diesem Vergleich liefert LDA+U (siehe dazu Abschnitt 4.1), welches das experimentell bestimmte und durch die Slater-Pauling-Regel erwartete magnetische Moment von $M_{L2_1} = 6 \mu_B$ für Co_2FeSi bestätigt. In Erweiterung der DFT-Methoden beschreibt es das lokalisierte magnetische Moment einzelner Störstellen genauer.

Die Berechnung des Halb-Heusler-Materials NiMnSb war die erste erfolgreiche Anwendung der kombinierten LDA+DMFT-Technik auf ein Heusler-Material [Chioncel03]. In Abbildung 4.4 sind die zwei wesentlichen Effekte dieser Kombination für NiMnSb in der zentralen Einteilchen-Observable (dem Spektrum) sichtbar: In der Zustandsdichte verschieben sich spektrale Gewichte, und Lebensdauereffekte verschmieren die Spektren, die Peaks verflachen deutlich.

Im Weiteren wird das Voll-Heusler-Material Co_2FeSi mit dem im Rahmen der Arbeit entwickelten LDA+DMFT(PT)-Programm untersucht. Neben seiner technischen Relevanz ist es in der theoretischen Betrachtung besonders interessant, weil die DFT-Rechnungen die experimentellen Daten nicht hinreichend bestätigen. Im Besonderen wird das magnetische Moment von $M_{L2_1} = 6 \mu_B$, wie es auf Grund der Slater-Pauling-Regel (4.14) zu erwarten wäre und im Experiment durch SQUID-Messung nachgewiesen wurde [Wurmehl05], durch die DFT-Rechnung nicht reproduziert.

SQUID \equiv *Superconducting Quantum Interference Device*, eine supraleitende Schleife, mit welcher hochpräzise Magnetfeld-Messungen möglich sind.

XMCD \equiv *X-ray Magnetic Circular Dichroism* Anregung von p -Elektronen mit zirkulär polarisiertem Licht auf d -Zustände.

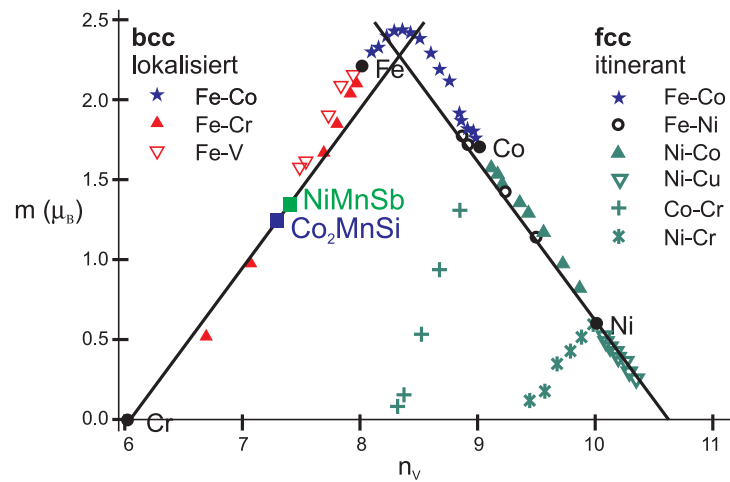


Abbildung 4.3: Slater-Pauling-Kurve für 3d-Übergangsmetalle und verschiedene Legierungen [Felser07]. Das Halb-Heusler-Material NiMnSb und das Voll-Heusler-Material Co_2MnSi sind zum Vergleich eingezeichnet. Zu beachten ist, dass das magnetische Moment pro Atom m in der Einheitszelle als Funktion der Valenzelektronen pro Atom n_V eingetragen ist. Abhängig von der Magnetisierung lässt sich die Slater-Pauling-Kurve in zwei Bereiche einteilen. In der Region des itineranten Magnetismus ($n_V \geq 8$) ist die Valenzelektronenkonzentration hoch. Hier findet man meist Systeme mit dichten Kugelpackungen *fcc*, *hcp*. Der zweite Bereich ($n_V < 8$) ist der des lokalisierten Magnetismus (meist *bcc* oder abgeleitete Kristallstrukturen). Im Grenzbereich zum lokalisierten Magnetismus ist Fe zu finden. Die Heusler-Materialien sind zum Vergleich eingezeichnet.

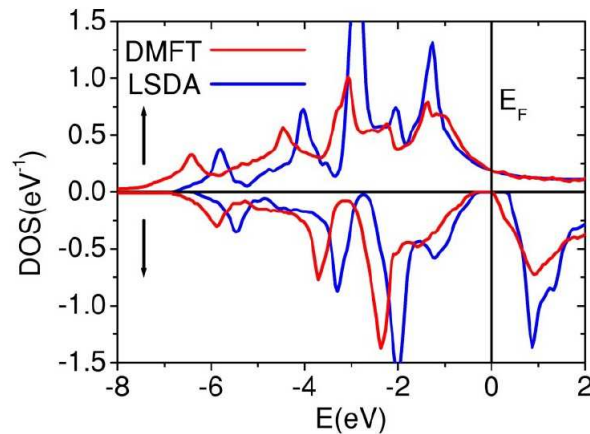


Abbildung 4.4: Zustandsdichten für das Halb-Heusler-Material NiMnSb im Vergleich der LDA-Rechnung zum DMFT-Resultat. Für letztere wird eine effektive Wechselwirkung $U = 3$ eV und $J = 0.9$ eV bei $T = 300$ K angenommen. In der DMFT kommt es ganz offensichtlich zu Verschiebungen im Spektrum, Lebensdauerereffekte schmierern zudem die Spektren im Besonderen abseits der Fermi-Kante im Majoritätskanal stark aus. Die Lücke in der Zustandsdichte im Minoritätskanal wird kleiner; die Verschiebungen und Lebensdauerereffekte führen zu Zuständen sehr nahe an der Fermi-Kante. Die Abbildung wurde [Chioncel03] entnommen.

4.3.1 Projektion auf Niederenergiesektor

Um mit LDA+DMFT (siehe Abschnitt 4.2) die Spektralfunktionen an der Fermi-Kante aufzulösen, ist man an einer möglichst kleinen Zahl zu betrachtender Zustände interessiert, da man dann das Vielteilchenproblem effizienter lösen kann. Hierbei ist es notwendig, den orbitalen Charakter der Bänder zu identifizieren und festzustellen, mit welchem Beitrag die einzelnen atomaren Orbitale zu einem Band beitragen. Die orbitalen Charaktere der Majoritätsbänder sind in einer *Fatbands*-Darstellung in Abbildung 4.5 für die verschiedenen Orbitale dargestellt. Die der Fermi-Kante nahen Bereiche werden von allen betrachteten orbitalen Charakteren erzeugt. Damit ist zu erwarten, dass eine adäquate Projektion auf eine kleinere Basis (*Down-Folding* der Bänder, siehe Abschnitt 4.1), nur gelingt, wenn man die Co-*d*-, die Fe-*d*- und die Si-*p*-Zustände berücksichtigt. Für die Minoritätsbänder ergibt sich ein analoges Ergebnis. Daher ist die Situation bei Co₂FeSi klar verschieden von der Situation des einfachen Beispiels SrVO₃, wie es in Abschnitt 4.2 beschrieben wird. Dort werden die Bandstrukturen an der Fermi-Kante nur durch wenige Zustände, den Sr-*t_{2g}*-Zuständen (Abb. 4.2), generiert. Das Ergebnis des *Down-Folding* auf die *d*-Schalenzustände des Co und des Fe sowie die *p*-Zustände des Si ist in Abbildung 4.6 für beide Spins dargestellt. Schematisch sind die berücksichtigten und unberücksichtigten Zustände in Tabelle 4.2 aufgeführt. Die berücksichtigten Zustände stellen die minimale atomare Basis dar, mit welcher der Bereich um die Fermi-Kante dargestellt werden kann. Die Nichtberücksichtigung weiterer Zustände, beispielsweise der Si-*p*-Zustände, wie es sich auf Grund von Abbildung 4.5e vermuten ließe, führt zu einer erheblichen Diskrepanz der vollen Bandstrukturen und der Bandstruktur nach dem *Down-Folding*. Für die in Abbildung 4.6a,b dargestellten Bänder lägen die durchgezogenen blaugefärbten und die gestrichelten grügefärbten Linien nicht

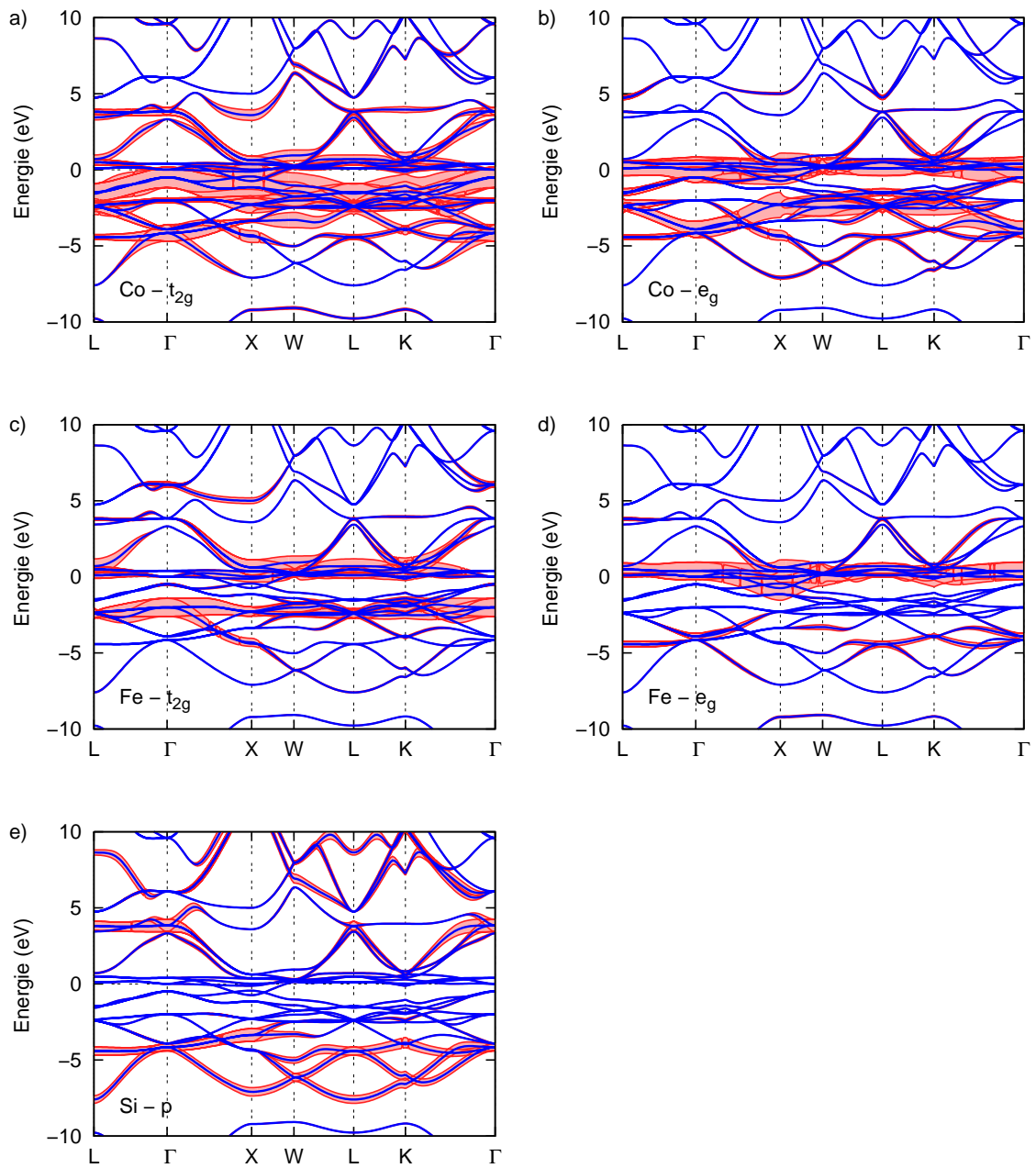


Abbildung 4.5: *Fatbands*-Darstellung für den Majoritätsspin der (a) $\text{Co-}t_{2g}$, (b) $\text{Co-}e_g$, (c) $\text{Fe-}t_{2g}$, (d) $\text{Fe-}e_g$ und (e) Si-p -Orbitale. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die Bandstruktur, ausgewertet an einer Polylinie im k -Raum ($L \rightarrow \Gamma \rightarrow X \rightarrow W \rightarrow L \rightarrow K \rightarrow \Gamma$). Je dicker die umgebenden rotgefärbten Bereiche um das Band herum ausfallen, desto stärker ist der Beitrag des ausgewählten Orbitals am entsprechenden Band.

Element	<i>s</i>	<i>p</i>	<i>d</i>
Co	(4 <i>s</i>)	(4 <i>p</i>)	3 <i>d</i>
Fe	(4 <i>s</i>)	(4 <i>p</i>)	3 <i>d</i>
Si	(3 <i>s</i>)	3 <i>p</i>	(3 <i>d</i>)

Tabelle 4.2: Berücksichtigte Zustände in der LMTO/NMTO-Rechnung. Die geklammerten Zustände werden in der vollen Rechnung berücksichtigt, das *Down-folding* projiziert das Problem auf die ungeklammerten Zustände. Im Vergleich mit Abbildung 4.6 werden die grüngefärbten Bänder durch alle in der Tabelle dokumentierten Zustände erzeugt, während die blaugefärbten nur durch die in der Tabelle ungeklammerten Zustände erzeugt werden.

mehr übereinander, es käme zu sogenannten Geisterbändern (*ghost-bands*). Projiziert man nun das volle Problem per *Down-folding* auf die in Tabelle 4.2 hervorgehobenen Zustände, so erhält man eine quantitativ richtige Beschreibung des Niederenergiesektors für Co_2FeSi im Rahmen der DFT, im Speziellen der LMTO/NMTO-DFT.

Für eine weiterführende Betrachtung der Heusler-Materialien wird der in der Arbeit entwickelte LDA+DMFT(PT)-Code verwendet (siehe Abschnitt 4.2). Für den wechselwirkungsfreien Fall $\underline{\Sigma} \rightarrow 0$ sollte sich damit dann gerade die DFT-Lösung ergeben. In Abbildung 4.7 werden die Zustandsdichten des wechselwirkungsfreien Problems mit denen der LMTO-Lösung verglichen. Die Übereinstimmung ist gut, die Verteilung des spektralen Gewichts ist für LMTO-Rechnung und wechselwirkungsfreie LDA+DMFT(PT)-Rechnung nahezu gleich. Im Detail löst die LDA+DMFT(PT)-Rechnung die scharfen Peaks im Spektrum schlechter auf, die Kurven sind etwas glatter. Besonders für niedrige Energien, fernab der Fermi-Kante, ergeben sich für Si deutliche Unterschiede.¹² Neben den Zustandsdichten, wie sie sich aus den in den atomar, orbital und Spinquantenzahl diagonalen Propagatoren $G_{\alpha\alpha}(z)$ ¹³ ergeben, sind beim Co_2FeSi auch die Nicht-Diagonalpropagatoren $G_{\alpha\beta}(z)$ ($\alpha \neq \beta$) deutlich von Null verschieden. In Abbildung 4.8 sind exemplarisch die Spektralfunktionen ausgewählter Green-Funktionen dargestellt, im Vergleich zur Zustandsdichte (Spektralfunktion) des Fe- d_{xy} -Orbitals (Fe- d_{xy} -Propagators) in schwarzer Farbe. Der Nicht-Diagonalpropagator, welcher zwischen zwei Fe-Orbitalen vermittelt, verschwindet, weil diese Zustände orthogonal zueinander sind. Die anderen Spektralfunktionen sind von der gleichen Größenordnung wie die des dargestellten Diagonalpropagators. Folglich müssen diese Propagatoren berücksichtigt werden und dürfen gegenüber den Diagonalpropagatoren nicht vernachlässigt werden. Diese nicht-diagonalen Propagatoren führen im

¹²Es ist aber nicht klar festzustellen, ob sich diese Unterschiede durch die numerische Behandlung mit der NMTO-Methode - welche den Ausgangspunkt der LDA+DMFT(PT)-Behandlung darstellt - oder durch die LDA+DMFT(PT)-Rechnung selbst ergeben. Schematisch enthält die LDA+DMFT(PT)-Rechnung nämlich folgende Schritte

$$\text{LMTO} \longrightarrow \text{NMTO} \longrightarrow \text{NMTO-DF} \longrightarrow \text{LDA+DMFT(PT)}$$

mit LMTO, Verbesserung der Resultate durch NMTO, dem *Down-folding* NMTO-DF und letztlich der LDA+DMFT(PT)-Rechnung. Der NMTO-Code selbst kann aber keine Zustandsdichten extrahieren (wobei das kein konzeptionelles Problem ist, sondern ein technisches), sodass kein Vergleich mit Zwischenergebnissen möglich ist.

¹³Die Darstellung erfolgt mit verallgemeinerten Quantenzahlen α , β , etc. welche Spin-, orbitale und atomare Quantenzahlen in der Einheitszelle definieren (siehe auch Abschnitt 4.2).

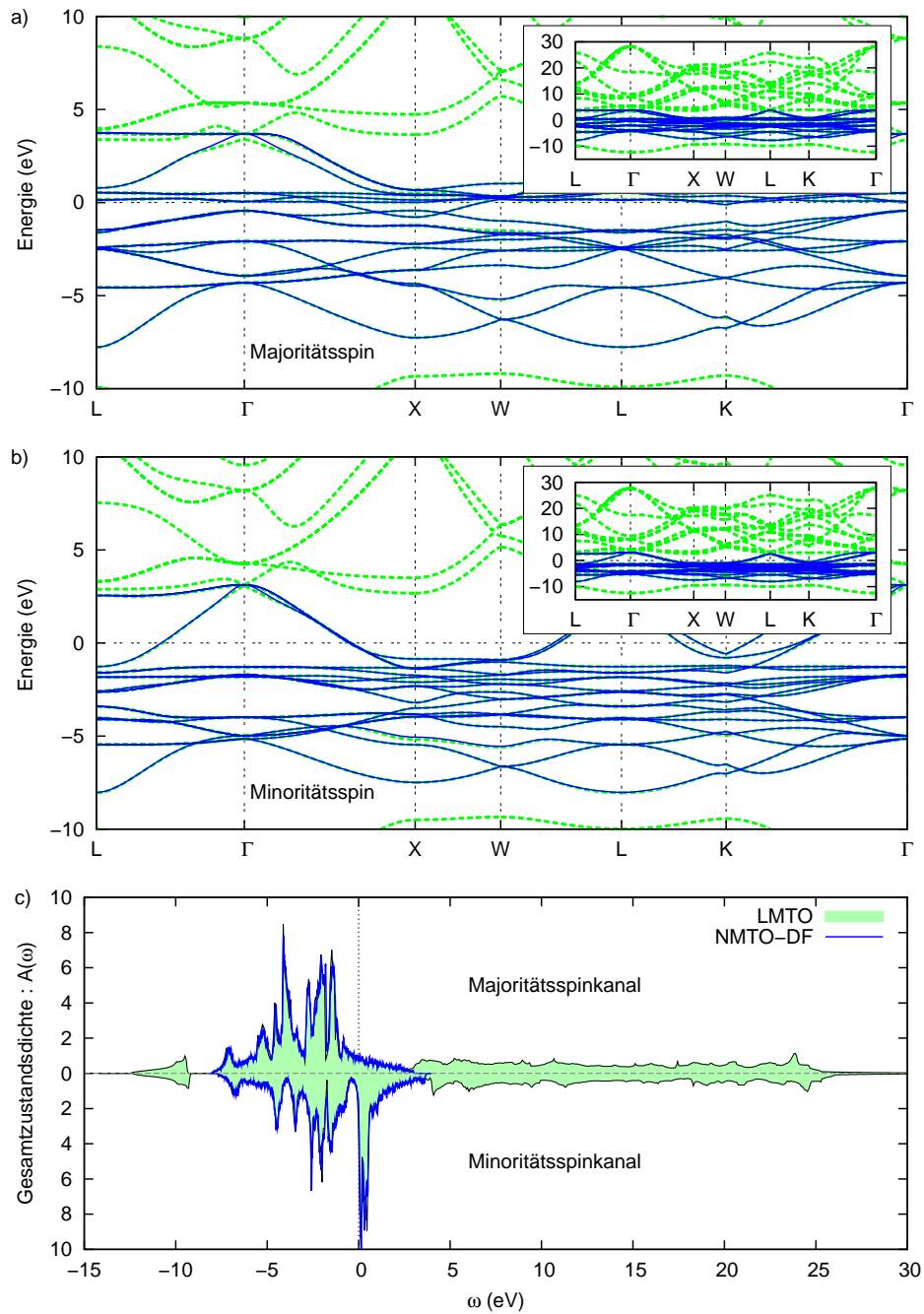


Abbildung 4.6: Vergleich der vollen Bandstruktur (gestrichelte grüne Linien) mit der auf die Co- d -, die Fe- d - und die Si- p -Zustände projizierten Bandstruktur (durchgezogene blaue Linien) für (a) Majoritäts- und (b) Minoritätsspin. Im Inset ist jeweils der Fortschritt des *Down-Folding* noch deutlicher zu sehen. Hier zeigt sich, dass mit den gewählten Zuständen der Bereich um die Fermi-Kante herum gut aufgelöst wird und energetisch weit entfernte Zustände unberücksichtigt bleiben. In (c) sind die über die Brillouin-Zone (respektive k -Raum) summierten Zustandsdichten dargestellt; die Gesamt-Zustandsdichte (LMTO) wird von der projizierten Zustandsdichte (NMTO-DF) unterschieden (siehe auch Tabelle 4.2).

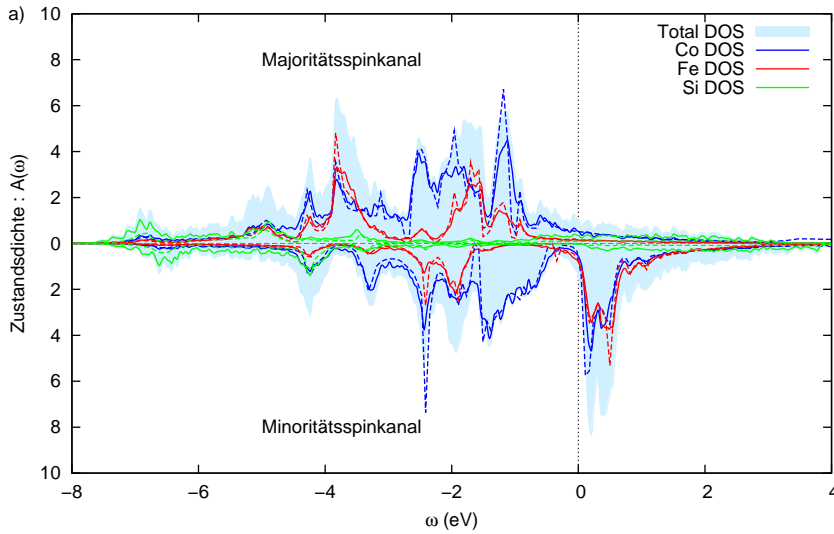


Abbildung 4.7: Atomar aufgelöste Zustandsdichten für Co_2FeSi für die Elemente Co, Fe und Si im Vergleich der LMTO-Rechnung (gestrichelt) und der wechselwirkungsfreien LDA+DMFT(PT)-Rechnung (durchgezogen). Die Übereinstimmung ist gut, die LDA+DMFT(PT)-Ergebnisse sind glatter und zeigen weniger hervorstechende Peaks.

diagrammatischen Störstellenlöser, wie er in Abschnitt 2.1.1 dokumentiert ist, zu zusätzlichen Diagrammen, die zur Selbstenergie abseits ihrer Diagonalen beitragen. Genau diese nicht-diagonalen Propagatoren verbieten die Verwendung des Hirsch-Fye-QMC-Codes, wie er bei der Lösung des Zweiband-Modells (Abschnitt 3.3) verwendet wird. Dieser ist durch seine Konstruktion auf ein in orbitaler (und atomarer) Quantenzahl diagonales Problem fixiert. D.h. Green-Funktion, Selbstenergie und Weiss-Funktion sind diagonale Matrizen in orbitaler sowie atomarer Quantenzahl. Eine derartige Einschränkung vereinfacht die Lösung erheblich.

4.3.2 Relevante Wechselwirkungsmatrixelemente

In den Hamiltonian (4.10) gehen neben der Dispersion auch chemisches Potential und Wechselwirkungsintegrale ein. Das chemische Potential wird so bestimmt, dass die Gesamtfüllung genau der Valenzelektronenzahl der DFT-Rechnung entspricht: Für Co_2FeSi sind das 28 Elektronen in der Einheitszelle. Die Wechselwirkungsintegrale ergeben sich aus Überlappintegralen der elektronischen Wellenfunktionen f_m, \dots, f_p (1.4) [Jakobi05]

$$U_{mnop} = \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{r}' \frac{f_m^*(\mathbf{r}) f_n^*(\mathbf{r}') f_o(\mathbf{r}') f_p(\mathbf{r})}{\|\mathbf{r} - \mathbf{r}'\|} . \quad (4.15)$$

Sie entstehen aus der Entwicklung der elektronischen Feldoperatoren in die lokalisierte Wannierbasis, welcher orbitale und atomare Quantenzahlen zugeordnet werden können. Um die Bestimmung der Integrale (4.15) zu umgehen, gehen sie als Parameter in die Rechnung ein.

Zunächst werden die Wechselwirkungen in der Einheitszelle auf intraatomare Wechselwirkungen beschränkt. Diese Näherung basiert auf der Annahme, dass die Orbitale

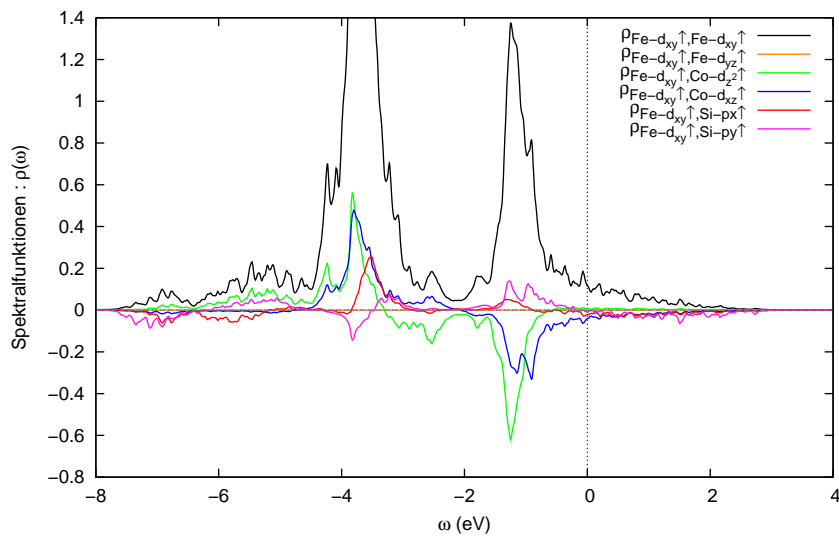


Abbildung 4.8: Ausgewählte Elemente der Green-Funktion für Co_2FeSi in wechselwirkungsfreier LDA+DMFT(PT)-Rechnung. Ganz offensichtlich sind die Nicht-Diagonalpropagatoren von der gleichen Größenordnung des Diagonalpropagators (schwarz). Lediglich die Spektralfunktion des Propagators zwischen den zwei Fe-Orbitalen (orange) ist exakt null, weil die Zustände orthogonal zueinander sind.

verschiedener Atome nur schwach überlappen und der Wert des Integrals (4.15) dafür vernachlässigbar ist. Darüber hinaus werden nur für die d -Schalen von Co und Fe Wechselwirkungen berücksichtigt, weil die p -Elektronen des Si stark itinerant sind¹⁴. Für die d -Schalen ergeben sich aus der Gittersymmetrie weitere Symmetrien der Wechselwirkungsintegrale U_{mnop} . In sphärischer Symmetrie sind die fünf Orbitale wegen der Rotationsinvarianz fünffach entartet, es ergeben sich Wellenfunktionen der Art

$$\varphi_\nu(r, \phi, \theta) = R(r) Y_{2,\nu}(\phi, \theta) \quad (4.16)$$

mit der magnetischen Quantenzahl ν und den Kugelflächenfunktionen $Y_{\lambda,\nu}$ und der Radiallösung $R(r)$. Diese Symmetrie führt zu weiteren Symmetrien in den Wechselwirkungsintegralen, sodass sich diese über die ersten drei Slater-Condon-Parameter $F^{(0)}$, $F^{(2)}$ und $F^{(4)}$ darstellen lassen. In einer kubischen Umgebung, wie es für die Voll-Heusler-Materialien der Fall ist, wird die Entartung der fünf d -Zustände aufgehoben; und die Eigenzustände separieren in die drei sogenannten t_{2g} - und die zwei e_g -Zustände. Aus diesen Symmetrien ergeben sich entsprechende Symmetrien auch für die Wechselwirkungsintegrale, sodass genau zehn Parameter genügen, um die Wechselwirkung in kubischer Symmetrie zu parametrisieren [Sugano70, Bünnemann09]. Die nicht-verschwindenden, abhängigen Wechselwirkungsintegrale sind in Tabelle 4.3 aufgeführt. Für Fe und Co zusammen ergeben sich so 20 freie Parameter, welche die Wechselwirkungsintegrale (4.15) eindeutig definieren.

¹⁴Das lässt sich leicht einsehen, wenn man in den atomar aufgelösten Spektralfunktionen (Abb. 4.7) die Bandbreite der Si- p -Zustände betrachtet. Im Unterschied zu diesen sind die Spektralfunktionen von Co und Fe deutlich stärker um bestimmte Energiebereiche konzentriert.

Weil aber auch hierfür eine systematische Untersuchung zu aufwändig ist, beschränkt sich diese Arbeit auf einen Modellfall (Abschnitt 4.3.3) und die Untersuchung der Situation in sphärischer Symmetrie der Wechselwirkungsintegrale in Bezug auf das einzelne Atom (Abschnitt 4.3.4).

Die Slater-Condon-Parameter lassen sich mit intraorbitaler Dichte-Dichte-Wechselwirkung U und Austauschkopplung verknüpfen [Katsnelson08]

$$U = F^{(0)} \quad J = \frac{1}{14} \left(F^{(2)} + F^{(4)} \right) \quad , \quad (4.17)$$

wobei das Verhältnis $F^{(2)}/F^{(4)}$ in guter Näherung eine Konstante ist. Für die $3d$ -Elemente ist $F^{(2)}/F^{(4)} \approx 0.625$ typisch [Groot90, Anisimov93]. In der sphärischen Näherung verbleiben dann für die Untersuchung des Voll-Heusler-Materials vier freie Parameter zur Bestimmung der Wechselwirkungsintegrale, nämlich U und J jeweils für die Elemente Fe und Co.

Neben den gut bekannten Wechselwirkungsmatrixelementen, wie Dichte-Dichte- oder Austauschwechselwirkung, werden durch die Beziehungen in Tabelle 4.3 auch Matrixelemente generiert, die Prozesse höherer Ordnung reflektieren ($U_{\eta\nu\omega\eta}, \dots$). Um sich dem Problem zu nähern, wird aber zunächst ein einfacheres Modell mit überschaubaren Wechselwirkungsmatrixelementen untersucht, im Besonderen weil Wechselwirkungsmatrixelemente, wie die Austauschwechselwirkung, zu nicht-diagonalen Beiträgen in der Selbstenergie führen, was eine Diskussion erschwert.

Im Folgenden werden verschiedene Wechselwirkungsmodelle diskutiert. Der erste Fall (Abschnitt 4.3.3) ist sehr einfach und nicht mit den Beziehungen in Tabelle 4.3 zu begründen. Im Weiteren werden dann unter Berücksichtigung sphärischer Symmetrie der Wechselwirkungsintegrale U und J für Fe und Co durchgestimmt (Abschnitt 4.3.4). Hierbei werden die beiden Elemente gleichwertig behandelt, d.h. die Wechselwirkungsintegrale werden für Fe und Co als gleich angenommen. Eine Unterscheidung der Elemente, was durch Reduktion der Wechselwirkungsintegrale auf 80% des einen Elements im Vergleich zu denen des anderen Elements umgesetzt wird, zeigte keine qualitativen Änderungen in den Einteilchengrößen, sodass diese Ergebnisse hier nicht dargestellt werden.

Die betrachteten Wechselwirkungen werden in dieser Arbeit von $0 \leq U \leq 4 \text{ eV}$ variiert. Dies ist im Einklang mit typischen Werten, die in der Literatur für LDA+DMFT verwendet werden. So wird für Übergangsmetalle wie Fe die Wechselwirkung mit $U = 2.3 \text{ eV}$ gewählt [Lichtenstein01] oder für Hartree-Fock-Methoden variiert $1.9 \text{ eV} \leq U \leq 2.3 \text{ eV}$ [Oles84]. Für LDA+U werden typischerweise etwas größere Werte für die Wechselwirkung angenommen $2.5 \text{ eV} \leq U \leq 5.0 \text{ eV}$ [Wurmehl05]. Ganz allgemein werden für $3d$ -Übergangsmetalle Coulomb-Wechselwirkungsintegrale in der Literatur mit $1 \leq U \leq 7 \text{ eV}$ abgeschätzt [Hewson93]. Für stärker gefüllte $3d$ -Schalen wird der Wert eher kleiner sein, weil die stärkere Kernabschirmung zu stärker delokalisierten Wellenfunktionen führt, was die Wechselwirkung zwischen den Elektronen reduziert. Für Co_2FeSi sind Fe und Co eher stark gefüllt ($n_{\text{Fe}}/n_{\text{max}} = 70\%$ und $n_{\text{Co}}/n_{\text{max}} = 84\%$).

Integral	Typ	sphärisch	kubisch
U_{uvvu}	U'	$= A - 4B + C$	frei
$U_{\zeta\zeta\zeta\zeta} = U_{\xi\xi\xi\xi} = U_{\eta\eta\eta\eta}$	U	$= A + 4B + C$	frei
$U_{\xi\eta\eta\xi}$	U'	$= A - 2B + C$	frei
$U_{\zeta uu\zeta}$	U'	$= A - 4B + C$	frei
$U_{\zeta vv\zeta}$	U'	$= A + 4B + C$	frei
U_{uvuv}	J	$= 4B + C$	frei
$U_{\xi\eta\xi\eta}$	J	$= 3B + C$	frei
$U_{\zeta u\zeta u}$	J	$= 4B + C$	frei
$U_{\zeta v\zeta v}$	J	$= C$	frei
$U_{\eta\xi\zeta u}$	H	$= -\sqrt{3}B$	frei
U_{uuuu}	U	$= U_{vvvv} = U_{uvvu} + 2J_{uvuv}$	
$U_{\xi uu\xi}$	U'	$= U_{\eta uu\eta} = (U_{\zeta uu\zeta} + 3U_{\zeta vv\zeta})/4$	
$U_{\xi vv\xi}$	U'	$= U_{\eta vv\eta} = (3U_{\zeta uu\zeta} + U_{\zeta vv\zeta})/4$	
$U_{\xi u\xi u}$	J	$= U_{\eta uu\eta} = (U_{\zeta uu\zeta} + 3U_{\zeta vv\zeta})/4$	
$U_{\xi v\xi v}$	J	$= U_{\zeta vv\zeta} = (3U_{\zeta uu\zeta} + U_{\zeta vv\zeta})/4$	
$U_{\eta uv\eta}$	H	$= \frac{\sqrt{3}}{4}(U_{\zeta uu\zeta} - U_{\zeta vv\zeta}) = -U_{\xi uv\xi}$	
$U_{\eta\eta uv}$	H	$= \frac{\sqrt{3}}{4}(U_{\zeta uu\zeta} - U_{\zeta vv\zeta}) = -U_{\xi uv\xi}$	
$U_{\xi\eta\zeta u}$	H	$= U_{\eta\xi\zeta u}$	
$U_{\zeta\xi\eta u}$	H	$= -2U_{\eta\xi\zeta u}$	
$U_{\xi\eta\zeta v}$	H	$= -\sqrt{3}U_{\eta\xi\zeta u}$	
$U_{\eta\xi\zeta v}$	H	$= \sqrt{3}U_{\eta\xi\zeta u}$	

mit $A = F^{(0)} - \frac{1}{9}F^{(4)}$ $B = \frac{1}{49}(F^{(2)} - \frac{5}{9}F^{(4)})$ $C = \frac{5}{63}F^{(4)}$

Tabelle 4.3: Nicht-verschwindende Wechselwirkungsintegrale in sphärischer und kubischer Kristallsymmetrie für d -Schalen-Atome. Differenziert werden hier e_g - ($e_{g,v} \equiv v$ und $e_{g,u} \equiv u$) sowie t_{2g} -Orbitale ($d_{xy} \equiv \eta$, $d_{xz} \equiv \xi$ und $d_{yz} \equiv \eta$). In der zweiten Spalte ist der Charakter der Wechselwirkung angegeben, so sind intraorbitale (U) und interorbitale (U') Dichte-Dichte-Wechselwirkung, Austauschwechselwirkung (J) und Terme höherer Ordnung (H) unterschieden. In Spalte drei und vier sind die Einschränkungen der Parameter aufgrund der Symmetrie in sphärischer und kubischer Kristallsymmetrie eingetragen.

4.3.3 *s*-Schalennäherung

Zunächst soll eine einfache, hubbard-artige Wechselwirkung innerhalb der Orbitale angenommen werden. Dabei sollen interorbitale Wechselwirkungen ignoriert werden

$$U_{mnop} = \begin{cases} U & \text{falls } m = n = o = p \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} .$$

Offenkundig lässt sich eine solche Wechselwirkung mit den Beziehungen in Tab. 4.3 nicht erzeugen. Daher stellt diese Annahme einen künstlichen Ausgangspunkt dar. Für diesen Fall treten einzelne Elektronen direkt nur mit Elektronen des entgegengesetzten Spins und derselben orbitalen und atomaren Quantenzahl in Wechselwirkung. In diesem Sinn ist die Näherung aber, in Kenntnis der Einbandphysik, ein leicht zugänglicher Ausgangspunkt für eine weiterführende Betrachtung dar. In Abbildung 4.9a ist die Entwicklung der Gesamtzustandsdichte mit zunehmender Wechselwirkung dargestellt. Erwartungsgemäß führt die Berücksichtigung von Korrelationseffekten zur Verbreiterung der Zustände und deshalb zu einem Ausschmieren der Zustandsdichten gegenüber der LDA-Lösung. Mit zunehmender Wechselwirkung schmieren die Spektralfunktionen in bestimmten Bereichen aus: Für den Majoritätsspinkanal ist das für Energien unterhalb der Fermi-Kante deutlich erkennbar, für den Minoritätsspinkanal nur schwach. Gerade im Bereich der Fermi-Kante ist nahezu kein Ausschmieren zu identifizieren, auch oberhalb der Fermi-Kante sind nur schwache Lebensdauerereffekte erkennbar. Neben den typischen Lebensdauerereffekten ist eine Verschiebung des spektralen Gewichts für den Majoritätskanal auffällig. Je näher die Zustände des Majoritätskanals der Fermi-Kante sind, desto stärker verschieben sich diese mit zunehmender Wechselwirkung. Diese Beobachtung ist für beide Elemente richtig. Es finden sich die genannten charakteristischen Merkmale wie das Ausschmieren und das Verschieben der Majoritätszustände an der Fermi-Kante gleichermaßen für Fe und Co (Abb. 4.9b,c).

Wie die Rechnung zeigt, erfahren nur die Elektronen des Majoritätskanals erhebliche Lebensdauerereffekte, während die des Minoritätskanals nur schwach gestreut werden. Dies ist leicht erklärbar, da die Zustände des Majoritätsspins nahezu komplett gefüllt sind (für $U = 3$ gilt beispielsweise: $n_{\text{Fe}\uparrow}/5 = 97.6\%$, $n_{\text{Co}\uparrow}/5 = 95.7\%$). Damit muss der Majoritätszustand nahezu ständig besetzt sein. Die Ladungsfluktuationen des Majoritätsbands verschwinden nahezu. Für die Elektronen im Minoritätskanal bilden die mit ihnen wechselwirkenden Majoritätselektronen folglich nur einen statischen Ladungshintergrund.

Die Füllung im Minoritätskanal ist deutlich näher an der Halbfüllung (für $U = 3$ eV gilt beispielsweise $n_{\text{Fe}\downarrow}/5 = 41.8\%$, $n_{\text{Co}\downarrow}/5 = 72.7\%$), die Ladungsfluktuationen sind erheblich. Diese Elektronen bilden keinen nahezu statischen Ladungshintergrund für ihre Wechselwirkungspartner im Majoritätskanal, ihre Dynamik führt zu den schon beschriebenen Lebensdauerereffekten und dem Ausschmieren der Zustandsdichte im Majoritätskanal. Die Diagonalelemente der Selbstenergie reflektieren genau diesen Umstand (Abb. 4.10 für $U = 3$ eV). Für den Majoritätskanal ist der Imaginärteil der Selbstenergie (Abb. 4.10a) signifikant, für den Minoritätskanal nahezu verschwindend. Jedoch ist auch die maximale Höhe der Selbstenergiefunktion klein (~ 1 eV), gemessen an den typischen Skalen (Bandbreite $W \sim 10$ eV, Wechselwirkung $U \sim 3$ eV). Dies aber ist leicht einzusehen, da die im Schwachkopplungsansatz beitragenden Diagramme 2. Ordnung Beiträge proportional zu U^2/W erzeugen. Daher erfährt der Schwachkopplungsansatz hier seine Rechtfertigung. Im Bereich der Fermi-Kante wird der Imaginärteil der Selbstenergie klein, was langlebige Ladungsträger indiziert.

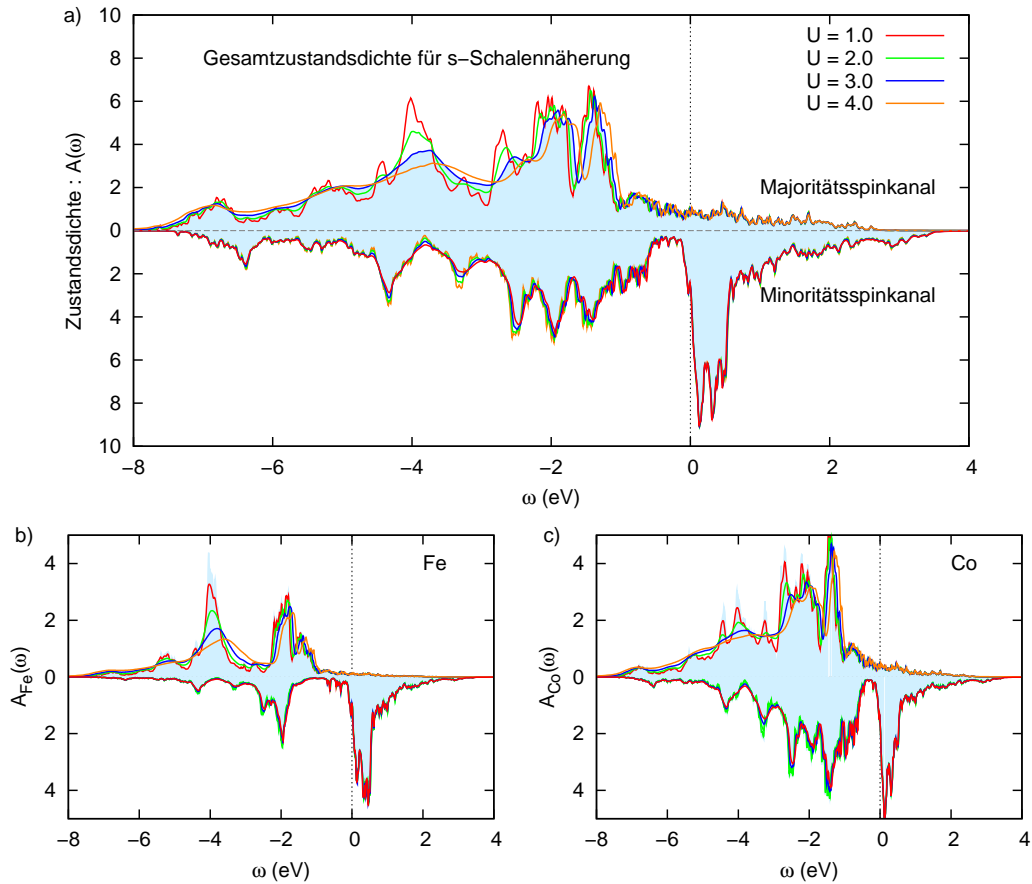


Abbildung 4.9: Ergebnis für eine LDA+DMFT-Rechnung bei ausschließlicher Berücksichtigung der intraorbitalen Wechselwirkungen für die Elemente Fe und Co (s -Schalennäherung, Abschnitt 4.3.3). Dargestellt sind (a) die Gesamtzustandsdichten für verschiedene Wechselwirkungen U und die elementspezifischen Zustandsdichten für (b) Fe und (c) Co. Gut erkennbar sind die Lebensdauerereffekte, die mit zunehmender Wechselwirkung zu einem Ausschmieren der Spektralfunktionen führen. Charakteristisch ist hierbei, dass der Majoritätsspinkanal stärker ausgeschmiert wird als der Minoritätskanal, welcher im Besonderen in der Nähe der Fermi-Kante nahezu unverändert bleibt. Die Diskussion hierzu findet sich im Text. Des Weiteren führt die zunehmende Wechselwirkung zu einer charakteristischen Verschiebung von Zustandsdichte im Majoritätskanal in Richtung der Fermi-Kante, sowohl für die (b) Fe- als auch für die (c) Co-Zustände.

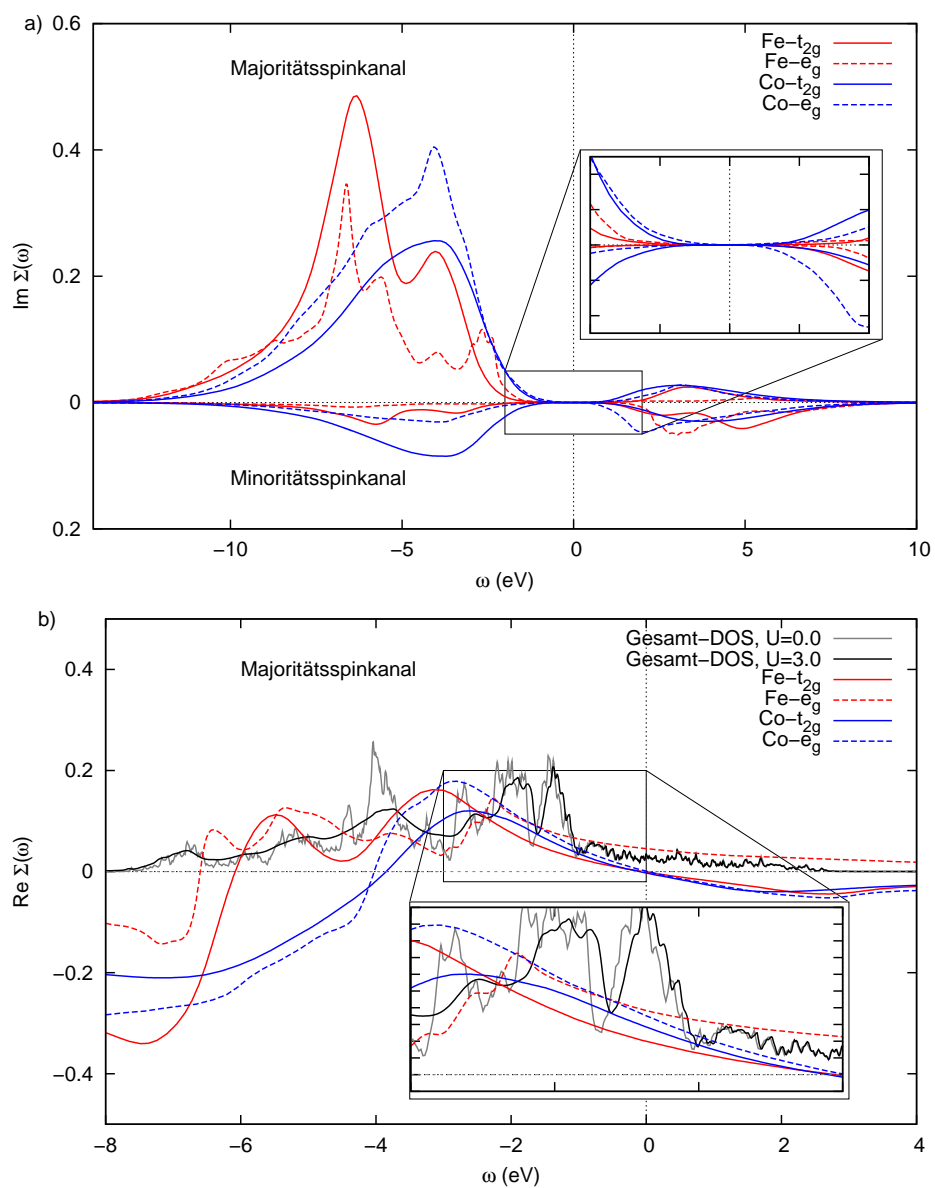


Abbildung 4.10: Diagonalanteile der Selbstenergie für Fe- als auch Co-Zustände, aufgeschlüsselt nach t_{2g} - und e_g -Zuständen, für eine intraorbitale Wechselwirkung $U = 3\text{ eV}$. In (a) ist der Imaginäranteil, in (b) der Realteil dargestellt. Im jeweiligen Inset ist eine Vergrößerung von im Text diskutierten Merkmalen dargestellt. Absolut gesehen sind die Beiträge klein ($\sim 1\text{ eV}$), gemessen an den typischen Energieskalen des Problems (Bandbreite $W \sim 10\text{ eV}$, $U \sim 3\text{ eV}$). Weitere Diskussion siehe Text.

Majoritätskanal		Minoritätskanal	
Fe- t_{2g}	0.979	Fe- t_{2g}	0.995
Fe- e_g	0.986	Fe- e_g	0.996
Co- t_{2g}	0.972	Co- t_{2g}	0.988
Co- e_g	0.968	Co- e_g	0.988

Tabelle 4.4: Quasiteilchengewichte für Fe- als auch Co-Zustände (aufgeschlüsselt nach t_{2g} - und e_g -Zuständen) für eine intraorbitale Wechselwirkung $U = 3\text{ eV}$ gemäß (4.18). Diskussion siehe Text.

Neben der Verbreiterung auf Grund der reduzierten Lebensdauer der Zustände kommt es für die einfache, intraorbitale Wechselwirkung zu einer Verschiebung der Fe- und Co-Majoritätszustände unterhalb der Fermi-Kante hin zu höheren Energien. Der Vergleich mit dem Realteil der Selbstenergiadiagonalen (Abb. 4.10b) liefert die Erklärung: In der Nähe der Fermi-Kante werden im Besonderen die Zustände des Majoritätskanals energetisch verschoben, weil der Realteil der Selbstenergie im Bereich $-3\text{ eV} \lesssim \omega \lesssim 0\text{ eV}$ für eine Verschiebung von 0 eV (Zustände nahe der Fermi-Kante) bis 0.2 eV (Zustände fern der Fermi-Kante) sorgt. Für den Minoritätskanal (hier nicht dargestellt) sind die Korrekturen charakteristisch ähnlich, aber schwächer ($\sim 0.03\text{ eV}$). Der lineare Verlauf des Realteils der Selbstenergie im Bereich der Fermi-Kante liefert darüber hinaus eine Aussage über die Massenrenormierung der Quasiteilchen (vergleiche Gl. 3.15)

$$Z = \frac{m}{m^*} \equiv \left(1 - \left. \frac{d\text{Re} \Sigma_{\alpha\alpha}}{d\omega} \right|_{\omega=0} \right)^{-1}. \quad (4.18)$$

So ergeben sich für den diskutierten Fall intraorbitaler Wechselwirkung nur schwache Renormierungen im einstelligen Prozentbereich (siehe Tabelle 4.4). Für ein Einband-Modell (Bethe-Gitter, mit IPT-Störstellenlösung) ergibt sich für vergleichbare Bedingungen (Verhältnis Wechselwirkung zur Bandbreite $U/W \approx 0.25$, Füllung $\sim 80\%$) eine Quasiteilchenrenormierung von $Z_{\text{Einband-Modell}} \approx 0.931$ und damit eine vergleichbare Größenordnung.

Ganz allgemein führt hier der lineare Anteil der diagonalen Selbstenergie

$$\left. \frac{d\text{Re} \Sigma_{\alpha\alpha}}{d\omega} \right|_{\omega=0} < 0 \quad (4.19)$$

zu einer Verschiebung der Zustandsdichte in Richtung der Fermi-Kante [Mavropoulos07]. Für den in der Literatur diskutierten Fall VAs [Mavropoulos07] ergibt sich, im Vergleich von LDA und LDA+DMFT, ein Schließen der Bandlücke, sodass die LDA-Rechnung für VAs einen Halbleiter und für die LDA+DMFT-Rechnung ein Halbmetall ausweist. Zu beachten ist, dass diese Argumentation streng genommen nur für den Fall diagonalen Quantenzahlen gültig ist und für den allgemeinen nicht-diagonalen Fall (4.11) höchstens näherungsweise anwendbar ist. In diesem Fall führen nicht-diagonale Elemente in der Dispersion oder der Selbstenergie zu Durchmischung bei der Invertierung in (4.11). Für den in diesem Abschnitt untersuchten Fall der s -Schalennäherung hat aber die Selbstenergie Diagonalstruktur, sodass die Argumentation näherungsweise anwendbar ist.

Charakteristisch zeigen sich die gleichen Merkmale in der Selbstenergie der hier betrachteten s -Schalennäherung wie für die Selbstenergie eines einfachen metallischen Einband-

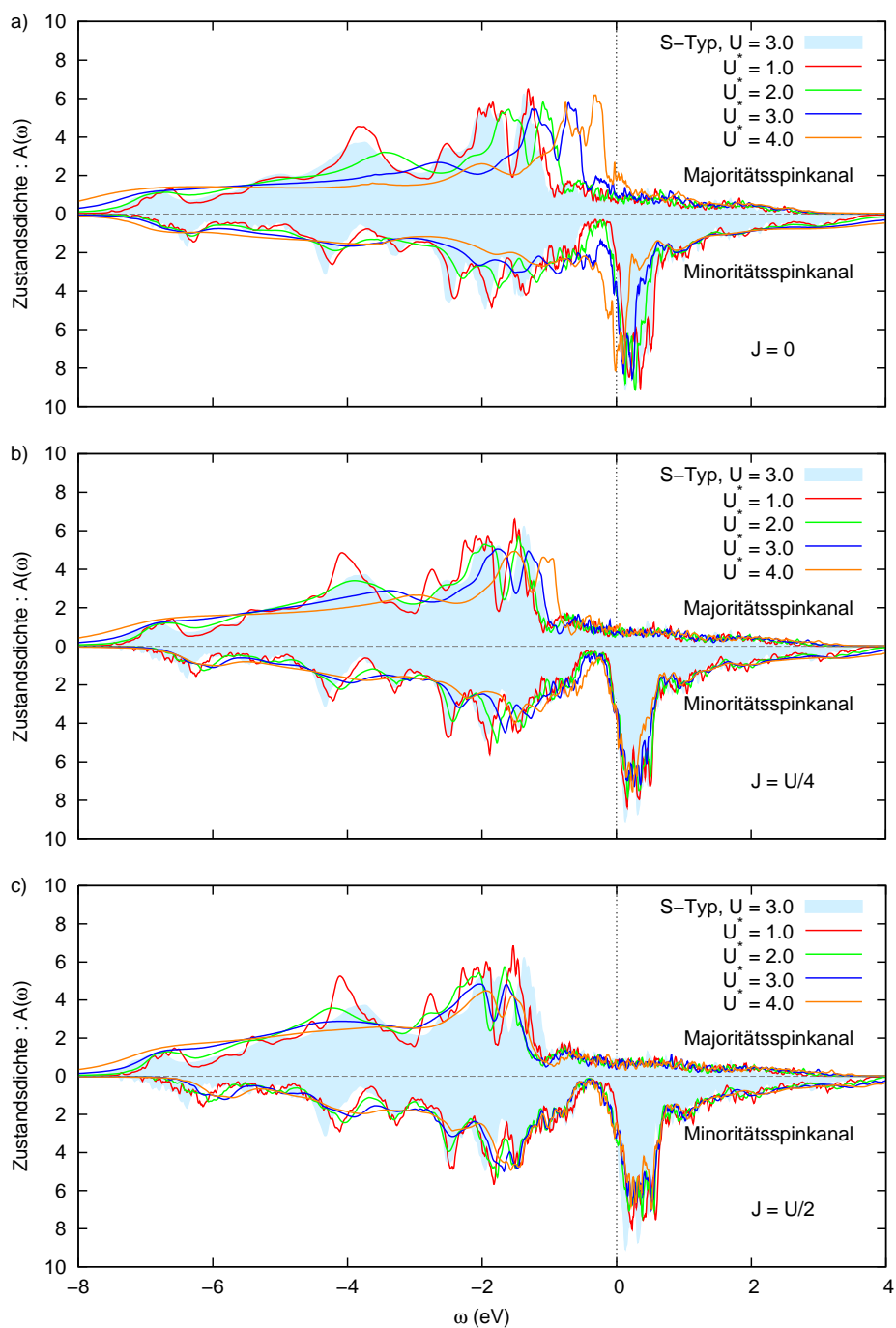


Abbildung 4.11: Zustandsdichten für Co_2FeSi für verschiedene Wechselwirkungen für die $3d$ -Elemente Fe und Co gemäß (4.17) und Tabelle 4.3. Von oben nach unten wird die Austauschwechselwirkung J vergrößert. Im Hintergrund ist die Zustandsdichte des einfachen s -Schalenmodells zum Vergleich dargestellt. Details siehe Text.

Hubbard-Modells [Müller-Hartmann89]. Auffällig ist hierbei, dass sich für die zwei Spin-kanäle ein unterschiedliches Verhalten ergibt. Majoritäts- bzw. Minoritätskanal weisen stärkere bzw. schwächere Korrelationseffekte auf. Dies ist dadurch zu begründen, dass der Majoritätskanal nahezu vollständig gefüllt ist und Ladungsfluktuationen daher nahezu unterbunden sind. Im Fall intraorbitaler Wechselwirkung erfahren die Elektronen des Minoritätskanals dann nur einen nahezu statischen Ladungshintergrund. Umgekehrt ist die Füllung des Minoritätskanals sehr viel kleiner und näher bei der Halbfüllung. Folglich sind die Ladungsfluktuationen stärker, und die Elektronen des Majoritätskanals werden stärker an den Elektronen des Minoritätskanals gestreut.

4.3.4 Sphärische Symmetrie der Wechselwirkung

Für die Wahl $U \neq 0$ und $J = 0$ nehmen die Wechselwirkungsmatrixelemente U_{mnop} eine einfache Form an: Intra- und interorbitale Dichte-Dichte-Wechselwirkungsintegrale nehmen den gleichen Wert an. Im Vergleich zum diskutierten Fall einfacher intraorbitaler Wechselwirkung in Abschnitt 4.3.3 stellt dies eine bedeutende Zunahme der Wechselwirkungsmöglichkeiten für das Elektron dar, da es nun nicht mehr nur mit dem Elektron im selben, sondern auch mit allen Elektronen der anderen Orbitale des betroffenen Atoms in Wechselwirkung treten kann. Die Hinzunahme von $J \neq 0$ schwächt die interorbitale Dichte-Dichte-Wechselwirkung ab und generiert interorbitale Wechselwirkung mit einem anderen Charakter, wie z.B. der Austauschwechselwirkung oder Terme höherer Ordnung. In Abbildung 4.11 sind die Spektren für Majoritäts- und Minoritätsspinkanal für Co_2FeSi im Vergleich verschiedener U und relativ dazu verschiedener J dargestellt. Um die verschiedenen Modelle miteinander zu vergleichen, wird

$$U^* = \max_{mnop} |U_{mnop}| \quad (4.20)$$

als maximale Wechselwirkungsamplitude definiert und dient als Norm, um die verschiedenen (U, J) -Kombinationen zu vergleichen.

Im Fall $J = 0$ (Abb. 4.11a) führt die interorbitale Dichte-Dichte-Wechselwirkung zu einem erheblichen Ausschmieren der spektralen Gewichte; für Energien $\omega < 3 \text{ eV}$ verflachen die Gesamtzustandsdichte mit zunehmendem U^* sehr deutlich. Die im s -Schalenmodell identifizierbare Unterscheidung von Majoritäts- und Minoritätsspinkanal auf Grund der Lebensdauereffekte ist hier nicht mehr erkennbar, was aber sofort nachvollziehbar ist, weil die Elektronen des Minoritätsspinkanals nunmehr nicht allein an den Elektronen des Majoritätsspinkanals, der nahezu komplett gefüllt ist, streuen können, sondern auch an Elektronen gleicher Spinzahl, aber verschiedener orbitaler Quantenzahl. Daher werden alle Elektronen gleichermaßen gestreut und eine Differenzierung auf Grund der Lebensdauereffekte ist nicht mehr möglich. Auffällig ist außerdem die deutliche Verschiebung der Zustände in Richtung der Fermi-Kante, sodass die typische Heusler-Lücke zugestreut wird und die Rechnung deshalb die gesuchte Halbmetallizität des Materials nicht mehr wiedergibt. Dass die Verschiebungen deutlicher sind als beim s -Schalenmodell, wird durch die größere Zahl möglicher Wechselwirkungspartner verursacht. So nimmt die maximale Amplitude der Selbstenergie auf ihrer Diagonalen um einen Faktor

$$\frac{\max_{\omega, \alpha} |\Sigma_{\alpha\alpha}^{J=0}(\omega)|}{\max_{\omega, \beta} |\Sigma_{\beta\beta}^{s\text{-Schale}}(\omega)|} \sim 3.00 \quad (4.21)$$

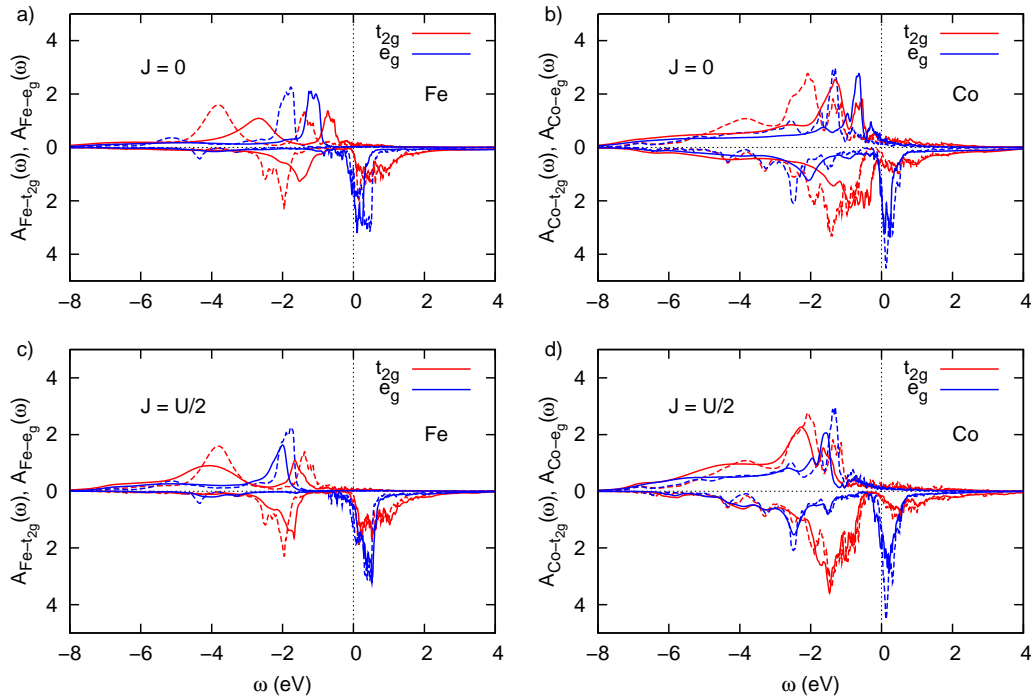


Abbildung 4.12: Vergleich der Zustandsdichten für e_g und t_{2g} -Zustände von Fe (links, (a), (c)) und Co (rechts, (b), (d)) für $J = 0$ (oben, (a), (c)) und $J = U/2$ (unten, (c), (d)) im Vergleich zu denen des s -Schalenmodells (gestrichelt). Während für $J = 0$ die Majoritätszustände in Richtung der Fermi-Kante verschoben werden (im Vergleich zum s -Schalenmodell), verursacht die Austauschwechselwirkung $J = U/2$ eine gegenläufige Verschiebung. Weitere Diskussion siehe Text.

zu. Prinzipiell lässt sich dieses Verhalten mit dem des s -Schalenmodells vergleichen, ist jedoch ungleich bedeutsamer. Neben dem Verschwinden der Heusler-Lücke ist die Verschiebung der Zustände auch für eine Reduktion des magnetischen Moments verantwortlich: So ist für den Fall $J = 0$ (mit $U^* = 3$ eV) das magnetische Moment $M_{L21}^{J=0} = 4.70\mu_B$ sehr viel kleiner als der Wert der Einteilchenbeschreibung (LDA-Rechnung) mit $M_{L21}^{LDA} = 5.30\mu_B$. Für dieses Verhalten sind im Detail die e_g -Zustände von Fe und Co verantwortlich (siehe Abb. 4.11a,b).

Nimmt man nun weitere Matrixelemente hinzu ($J = U/4$, Abb. 4.11b), bleibt die Heusler-Lücke auch bei relevanten Wechselwirkungsamplituden (mit $U^* \lesssim 3$ eV) offen. Erst für $U^* = 4$ eV beginnt sie, sich merklich zu schließen. Im Vergleich zum Experiment gibt die Rechnung aber auch hier kein halbmetallisches Verhalten wieder, der Bereich der Fermi-Kante ist von beiden Spinkanälen gleichermaßen mit Zuständen besetzt. Für $J = U/2$ (Abb. 4.11c) verstärkt sich dieses Verhalten. Im Vergleich mit dem s -Schalenmodell findet sich sogar ein gegenläufiger Trend, bei welchem Zustände unterhalb der Fermi-Kante im Majoritätskanal sogar hin zu kleineren Energien verschoben werden. Betrachtet man diesen Trend differenziert für e_g und t_{2g} -Zustände (Abb. 4.12) im Vergleich zum s -Schalenmodell,

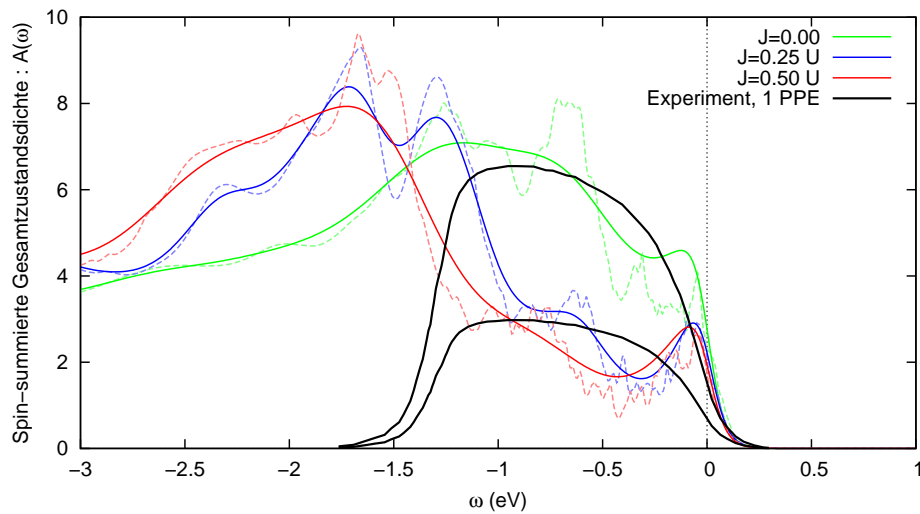


Abbildung 4.13: Vergleich der spin-summierten, besetzten Gesamtzustandsdichte von Experiment [Wüstenberg07] und Rechnungen für $U^* = 3$ eV und verschiedene Austauschkopplungen J . Die Energieauflösung der 1PPE-Messung ist nicht so hoch, daher werden die Zustandsdichten der Rechnung (hell, gestrichelt) künstlich etwas verbreitert (dunkel). Der Abbruch des Spektrums bei ~ 1.4 eV ist auf die Photonenenergie von $\hbar\omega = 5.9$ eV des verwendeten, gepulsten Ti:Saphir-Lasers zurückzuführen. Weitere Abweichungen auf Grund von Oberflächeneffekten sind im Besonderen nahe der Fermi-Kante zu erwarten. Das Zählergebnis der Messung ist zweifach eingezeichnet, um den Vergleich zu erleichtern. Weitere Diskussion siehe Text.

so wird deutlich, dass mit zunehmender Austauschwechselwirkung die Zustände des Majoritätsspinkanal hin zu niedrigeren Energien verschoben werden. Untersucht man die Selbstenergiebeiträge, welche die Verschiebung wesentlich verursachen, identifiziert man die statischen Anteile in der Selbstenergie, welche durch die Diagramme 1. Ordnung generiert werden. Im Besonderen tragen die durch die Austauschwechselwirkung erzeugten Fock-Diagramme wesentlich zur Verschiebung bei. Diese treten weder im einfacheren s -Schalenmodell noch im $J = 0$ Problem auf. Gleichmaßen führt die zunehmende Austauschwechselwirkung zu einer Verbreiterung der Lochzustände im Minoritätsspinkanal, welche in die Fermi-Kante hineinstreuen und dort die Halbmetallizität zerstören. Für dieses Verhalten sind im Wesentlichen die $\text{Co-}e_g$ -Zustände verantwortlich (siehe Abb. 4.12d).

4.3.5 Vergleich mit dem Experiment

Für die technisch interessanten Eigenschaften von Co_2FeSi sind im Besonderen die niederenergetischen Elektronenanregungen interessant, die teilweise mit der spin-aufgelösten Zustandsdichte in der Nähe der Fermi-Kante beschrieben werden können. Die Zustandsdichte unterhalb der Fermi-Kante lässt sich mit *1-photon photoemission* (1PPE) abtasten, die Zustandsdichte oberhalb der Fermi-Kante lässt sich spinaufgelöst mit *X ray absorption spectroscopy* (XAS) und *X ray magnetic circular dichroism* (XMCD) ausmessen. Bei-

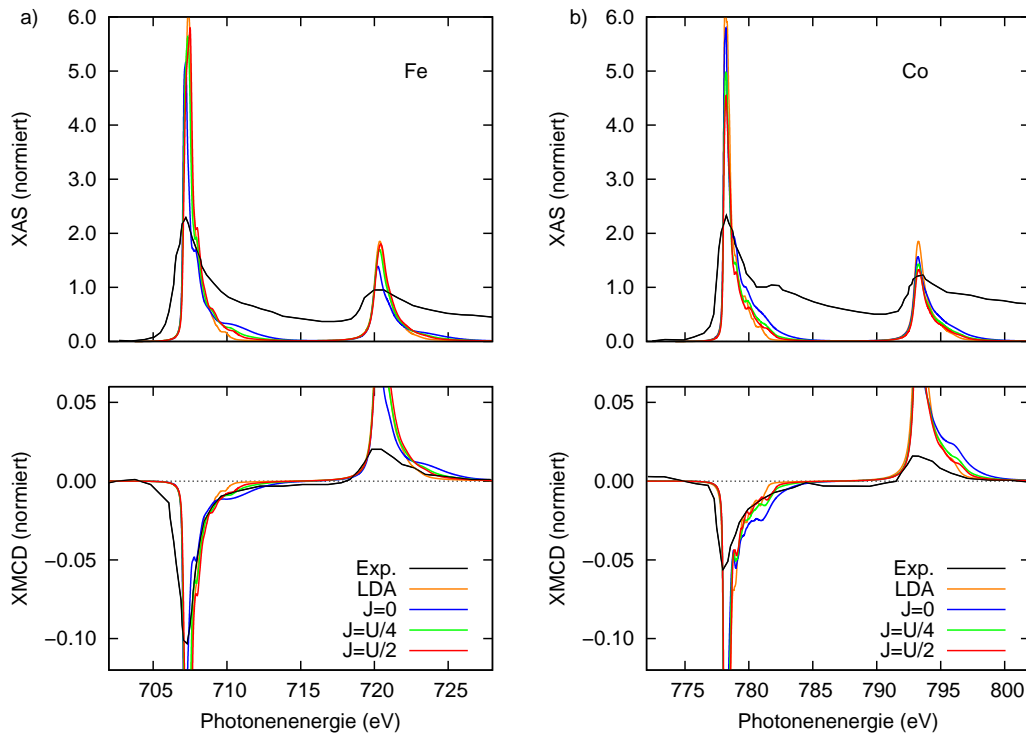


Abbildung 4.14: Vergleich der XMCD- (oben) und XAS-Spektren (unten) von Experiment [Wurmehl05] und Rechnung für $U^* = 3 \text{ eV}$ und verschiedenen Austauschkopplungen J und das LDA-Resultat. Die stückweise konstante Stufe im XAS-Resultat ist auf eine Untergrundintensität inelastisch gestreuter Elektronen in das Leitungsband zurückzuführen [Antonova06]. Weitere Diskussion siehe Text.

de Methoden vermessen prinzipbedingt nur oberflächennahe Zustände, während die hier durchgeführten Rechnungen streng nur weit im Festkörper gültig sind, d.h. fern jeder Kristallgrenze (Oberfläche oder Korngrenze, etc.). Trotzdem lassen sich im Vergleich verschiedener Rechnungen Trends identifizieren und Hinweise auf die korrekte Parametrisierung des Modells finden. So wird auch hier die Messung mit Rechnungen für verschiedene J -Werte verglichen.

In Abbildung 4.13 wird die spin-summierte Zustandsdichte für eine 1PPE-Messung [Wüstenberg07] mit der Rechnung für $U^* = 3 \text{ eV}$ und verschiedenen Austauschkopplungen J verglichen. Die Auflösung der experimentellen Daten ist zu schwach, um eine klare Aussage zu treffen, welche Austauschkopplung das Experiment am treffendsten wiedergibt. Im Besonderen die schwache Delle bei $\sim 0.3 \text{ eV}$ kann durch das Experiment nicht bestätigt werden. Dies kann der Tatsache geschuldet sein, dass die Rechnung Zustände in der Nähe der Fermi-Kante wiedergibt, die aber in der Nähe einer Oberfläche unterdrückt sind. Eine gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie kann nicht ausgemacht werden.

Im Vergleich dazu liefert die XAS/XMCD-Messung [Wurmehl05] sehr viel bessere Resultate (Abb. 4.14 für $U^* = 3 \text{ eV}$). Im XAS-Spektrum ist an der rechten Flanke der L_3 -Kante von Fe (Abb. 4.14a, $\omega \sim 707 \text{ eV}$) für die Rechnung mit $J = 0$ bei $\omega \sim 710 \text{ eV}$ eine deutli-

che Erhebung zu sehen. Die Rechnung $J = U/2$ zeigt einen stufenlosen Verlauf für XAS- und XMCD-Spektrum, in Übereinstimmung mit dem Experiment. Das XAS-Resultat fällt im Zwischenbereich nicht auf Null ab. Dies ist auf eine Untergrundintensität inelastisch gestreuter Elektronen in das Leitungsband zurückzuführen [Antonova06]. Man kann diese mittels einer flachen Funktion abziehen, die Abschätzung des Untergrunds ist aber empirisch und wird daher an dieser Stelle nicht vorgenommen. Für Co ist rechts der L_3 -Absorptionskante im Experiment ein für die L_{21} -Struktur typischer Satellit ($\omega \sim 782$ eV) zu sehen, der in der Rechnung für $J = 0$ nicht erkennbar ist. Für $J = U/2$ entsteht an der rechten Flanke bei etwas kleinerer Energie ($\omega \sim 780$ eV) ein qualitativ ähnliches Merkmal. Im XAS-Spektrum fällt die Übereinstimmung des $J = U/2$ -Ergebnis mit dem Experiment noch deutlicher aus. Hier findet sich an der L_3 - wie auch an der L_2 -Kante kein Satellit im Experiment, was die $J = U/2$ -Rechnung im Unterschied zur Rechnung bei $J = 0$ wiedergibt.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass sich ohne Austauschwechselwirkung keine Übereinstimmung mit dem Experiment finden lässt und erst mit der Hinzunahme von J Einklang erzielt wird. Hierbei wird deutlich, dass die Austauschwechselwirkung sehr entscheidend Einfluss auf die Niederenergieeigenschaften, im Besonderen die Halbmetallizität, hat. Gegenüber der DFT-Rechnung wird die Beschreibung aber kaum verbessert, das magnetische Moment der LDA+DMFT(PT)-Rechnung (bei $U^* = 3$ eV) $M_{L_{21}}^{J=0} = 4.70\mu_B$, $M_{L_{21}}^{J=U/4} = 4.99\mu_B$, $M_{L_{21}}^{J=U/2} = 5.04\mu_B$ ist gegenüber dem der LMTO-DFT $M_{L_{21}}^{LDA} = 5.30\mu_B$ sogar reduziert. Dieser Missstand ist auf die Co- e_g -Minoritätszustände zurückzuführen, welche in die Fermi-Kante hineinstreuen. Man kann spekulieren, ob sich das in der Rechnung verhindern ließe, wenn man die sphärische Symmetrie der Wechselwirkungsintegrale zugunsten einer kubischen Symmetrie aufgäbe und die sich dann ergebende größere Zahl Wechselwirkungsparameter besser abstimmt. Möglicherweise genügt aber auch die Beschreibung in 2. Ordnung Schwachkopplungstheorie bei der Störstellenlösung nicht, weil sie (wie in Abschnitt 2.1.1 diskutiert) auf Grund ihrer beschränkten Polstruktur die Austauschwechselwirkung nicht ideal beschreibt.

Die beobachteten Korrelationseffekte stimmen qualitativ mit denen für Halb-Heusler-Materialien (Abb. 4.4) überein und lassen sich prinzipiell auf der Grundlage eines künstlichen s -Schalenmodells verstehen (Abb. 4.9). Der Vergleich mit experimentellen Spektren liefert für die röntgenspektroskopischen Methoden eine gute Übereinstimmung, ist aber für die Ein-Photon-Emission zu indifferent, um Aussagen für die Theorie zu gewinnen.

Die theoretische Untersuchung des Voll-Heusler-Materials lässt sich sicherlich verbessern, wenn man die sphärische Symmetrie der Wechselwirkungsintegrale aufgibt und die Integrale entsprechend der kubischen Gittersymmetrie bestimmt. Für eine systematische Diskussion der Parameter ist deren Zahl zu groß, sodass es sinnvoll ist, die Integrale mit den Wellenfunktionen direkt zu bestimmen.

Daneben bestehen berechtigte Zweifel, ob der LMTO/NMTO-Hamiltonian einen geeigneten Ausgangspunkt für die LDA+DMFT-Rechnung von Co_2FeSi darstellt. Im Vergleich der verschiedenen DFT-Methoden wird deutlich, dass gerade bei zwei wichtigen Eigenschaften des Materials - der Halbmetallizität und dem magnetischen Moment - erhebliche Unterschiede bestehen und die LMTO/NMTO-Rechnung eine im Vergleich schlechte Beschreibung des Experiments liefert.

Für eine weiterführende Untersuchung ist die Bestimmung der Temperatureigenschaften, im Besonderen der Néel-Temperatur interessant. Durch Vergrößerung der Einheitszelle

lassen sich die Eigenschaften für einfache Dotierungsverhältnisse untersuchen. Von Interesse ist ebenfalls der Einfluss der Spin-Bahn-Kopplung für die enthaltenen $3d$ -Elemente. Gerade für die technische Anwendung ist der Einfluss von Verunreinigungen, wie sie sich in der Realität und im Experiment nur schwer vermeiden lassen, oder die Betrachtung von Grenz- und Oberflächeneffekten interessant.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Im Mittelpunkt der Arbeit stehen korrelierte elektronische Vielteilchensysteme, welche mit verschiedenen Methoden numerisch und analytisch untersucht werden. Ausgehend von der Definition des elektronischen Problems (1.2) werden ein Mehrstörstellen-Anderson-Modell und zwei Hubbard-Modelle sowie ein halbmetallischer Ferromagnet im Hinblick auf ihre Vielteilchenaspekte untersucht.

Zusammenfassung

In **Kapitel 2** wird das **Mehrstörstellen-Anderson-Modell** für zwei räumlich getrennte Störstellen in einem einfach-kubischen Gitter in zwei und drei Dimensionen untersucht. Die Ergebnisse werden einerseits gegen eine numerische Lösung mittels der *Enhanced Non-Crossing Approximation* validiert und, soweit möglich, mit analytischen Lösungen eines effektiven RKKY-Modells verglichen und bestätigt. Die Suszeptibilitäten und auch die Spektralfunktionen liefern ein kohärentes Bild der physikalischen Situation. Diese findet sich zwischen den zwei Grenzfällen, dem *Single Impurity Anderson-Modell* für weit voneinander entfernte und ungekoppelte Störstellen und dem atomaren Grenzfall zweier vom Band abgekoppelter Orbitale.

Für den ersten Grenzfall prägt sich auf beiden Störstellen ein separater Kondo-Effekt aus, der durch das dynamische Singulett des Störstellenelektrons mit den Bandelektronen gekennzeichnet ist. Der lokalisierte Elektronenspin wird dadurch abgeschirmt und induziert eine Spin-Welle im Leitungsband. In der Einteilchenspektralfunktion führt das zur Kondo-Resonanz an der Fermi-Kante.

Entgegengesetzt dazu steht der zweite Grenzfall des Mehrstörstellenproblems mit einer zwischen den Orbitalen der Störstellen agierenden effektiven Austauschwechselwirkung, welche die Entartung der Zweiteilchenzustände aufhebt und ein Singulett (respektive Triplett) zwischen den Störstellenelektronen erzeugt. Besonders interessant ist hierbei das Auftreten einer Lücke in der Einteilchenzustandsdichte an der Fermi-Kante, eines sogenannten Pseudo-Gaps, wie es für den ungeschirmten Singulettfall in der Literatur bekannt ist. Die Spinsuszeptibilität zeigt eine Resonanz bei der Anregungsenergie des Singuletts.

Neben der Untersuchung der Störstellen-Dynamik werden in diesem Abschnitt auch die Einflüsse des Gitters untersucht, indem der Abstand zweier Störstellen variiert wird. Die Verschiebung der Störstellen relativ zueinander führt zu räumlich auflösbaren Korrelationseffekten, die stark richtungsabhängig sind. Bemerkenswert ist hier die längerreichweitige Wechselwirkung der Störstellen für den zweidimensionalen Fall in der Diagonalrichtung.

Man kann erwarten, dass das Pseudo-Gap, wie es für einen ausgewählten Abstand zwischen den Störstellen nachgewiesen wurde, ähnlich stark vom Abstandsvektor abhängt wie die Korrelationen der Störstellenelektronen. Eine Untersuchung der Austauschwechselwirkung für größere Abstände $\|\underline{d}\|_1 > 1$, wie es in Abschnitt 2.2.1 dargelegt ist, kann mit dem verwendeten Störstellenlöser nicht adäquat stattfinden. Dennoch wird nachvollzieh-

bar, dass sich dieses Verhalten bei der Betrachtung eines Gittermodells übertragen lässt; ganz wie sich viele Eigenschaften des SIAM mit Hilfe der DMFT auf das Hubbard-Modell übertragen lassen.

Für das bekannte Hubbard-Modell werden in **Kapitel 3** zwei unterschiedliche Systeme untersucht: ein translationsinvariantes Zweiband-Hubbard-Modell und ein endliches Einband-Hubbard-Modell im Ortsraum.

Für ein translationsinvariantes Bethe-Gitter wird ein Zweiband-Hubbard-Modell, das **J_z -Modell**, in der Näherung durch die dynamische Molekularfeldtheorie (DMFT) im Hinblick auf die Abhängigkeit seiner Mott-Phasen von zwei zusätzlichen Parametern untersucht. Diese Parameter, Dotierung und Kristallfeldaufspaltung, fördern die Asymmetrie zwischen den zwei Bändern unterschiedlicher Bandbreite und erweitern das Metall-Isolator-Phasendiagramm um zwei zusätzliche Richtungen. Zentrales Resultat stellen die Phasendiagramme dar. Im Vergleich zu Einbandmodellen kommen im untersuchten J_z -Modell zusätzliche Phasen, sogenannte **orbital-selektive Mott-Phasen** (OSMP), hinzu, die abhängig von Wechselwirkung, Gesamtfüllung und Kristallfeldparameter einerseits metallischen und andererseits isolierenden Charakter haben. In diesen OSMP ergibt sich für Observablen, wie bandspezifische Füllung oder Doppelbesetzung, ein Pinning für eines der Bänder, d.h. die Observable bleibt unter Änderung der Dotierung oder des Kristallfeldparameters konstant. Die OSMP des breiten Bands wird hier erst zugänglich, nachdem die ionischen Einteilchenniveaus mittels der Kristallfeldaufspaltung relativ zueinander verschoben werden. Diese Eigenschaften lassen sich gut an Hand der betrachteten Spektraldichten bestätigen, wo sich die OSMP durch Lücken in der Einteilchenzustandsdichte des breiten respektive schmalen Bands äußert.

Die Resultate werden mit verschiedenen analytischen Näherungslösungen verglichen. Im Besonderen im Vergleich mit der analytischen Näherungslösung in Freier Theorie lassen sich generische Vielteilchen- und Korrelationseffekte von typischen Mehrband- und Einteilcheneffekten differenzieren. Der Vergleich macht deutlich, dass das Pinning der bandspezifischen Füllungen ohne dynamische Korrelationen verstanden werden kann und nur durch eine Aufspaltung in die Hubbard-Bänder bewirkt wird. Im Unterschied hierzu finden sich in den Spektralfunktionen der Quanten-Monte-Carlo-Lösung die Quasiteilchen- und Lebensdauereffekte wieder, die einerseits zur typischen Vielteilchenresonanz an der Fermi-Kante und andererseits zur Verbreiterung der Hubbard-Bänder führen. Vergleicht man die Spektralfunktionen des numerisch behandelten Ein- und Zweibandmodells, so wird deutlich, wie das jeweils zweite Band zu einer zusätzlichen Streuung der Elektronen und damit zu einer reduzierten Lebensdauer der Zustände führt.

Das zweite in **Kapitel 3** untersuchte Modell ist ein Hubbard-Modell im Ortsraum, eine **magneto-optische Falle**. Es wird mit dem in dieser Arbeit neu entwickelten Mehrband-Code untersucht. Der wesentliche Fortschritt gegenüber den häufig in der Literatur verwendeten *Real-Space*-DMFT-Methoden ist hier die explizite Mitnahme nicht-lokaler Prozesse, wie sie durch einen orts aufgelösten DMFT-Ansatz ausgeschlossen werden. Die DMFT-Näherung ist im Besonderen für niedrigdimensionale Systeme wie das hier betrachtete zweidimensionale Hubbard-Modell keine geeignete Näherungsstufe.

In 1. Ordnung kann für die z -antiferromagnetische Phase eine hervorragende Übereinstimmung für die Lösung mit den Ergebnissen der exakten Diagonalisierung festgestellt werden und so der Formalismus erfolgreich validiert werden. Im Ergebnis zeigt sich für die

magneto-optische Falle erwartungsgemäß eine Abschwächung oder sogar Unterdrückung der Magnetisierung bei Hinzunahme der 2. Ordnung der Schwachkopplungsstörungstheorie.

In **Kapitel 4** wird das für technische Anwendungen interessante **Heusler-Material Co_2FeSi** im Hinblick auf Korrelationseffekte untersucht. Hierzu wird zunächst die Beschreibung in einer effektiven Einteilchentheorie vorgenommen (Dichtefunktionaltheorie) und dann mit einer Vielteilchenbeschreibung, in der Näherung durch die DMFT, ergänzt. Im Fall der einfachen s -Schalennäherung für die Wechselwirkung werden die generischen Vielteilcheneffekte, die in der Selbstenergie ihren Ausdruck finden, deutlich.

Die Quasiteilchenrenormierung ist erwartungsgemäß klein. Qualitativ sind die gleichen Effekte auch bei der LDA+DMFT-Untersuchung verwandter Halb-Heusler-Materialien wie NiMnSb zu beobachten.

Berücksichtigt man eine Austauschwechselwirkung, so wird deutlich, dass eine quantitativ relevante Austauschwechselwirkung die Übereinstimmung mit dem Experiment verbessert. Die Hinzunahme der Vielteilcheneffekte führt zu keiner Zunahme des magnetischen Moments, verglichen mit dem Resultat der Dichtefunktionaltheorie. Dieses ist im Besonderen sehr viel kleiner als das des Experiments. Es ist dabei unklar, ob das methodische Defizit hier bei der Behandlung des Vielteilchenaspekts zu suchen ist oder ob nicht schon beim Ausgangspunkt der Vielteilchenbeschreibung, dem Ergebnis der Dichtefunktionaltheorie, erhebliche Unzulänglichkeiten auftreten. Für die spektroskopischen Experimente ist die Aussagekraft besser, es kann eine gute Übereinstimmung mit den röntgenspektroskopischen Methoden gefunden werden. Der Vergleich mit dem Photonemissionsexperiment ist wegen der schwachen experimentellen Auflösung weniger aussagekräftig.

Für die numerische Lösung des Störstellen-Anderson-Modells, der magneto-optische Falle und der LDA+DMFT-Methode wurde im Rahmen dieser Arbeit ein hocheffizienter Mehrband-Code neu entwickelt, der dank seiner allgemeinen Auslegung auf die drei sehr unterschiedlichen Probleme effizient angewandt werden kann. Von Vorteil ist hierbei der Einsatz von Realfrequenz-Green-Funktionen, welche die zentrale Bezugsgröße der Arbeit, die Einteilchen-Spektralfunktion, einfach und hochgenau ableitbar machen.

Ausblick

Das **Mehrstörstellen-Anderson-Modell** lässt sich in verschiedenen Richtungen weiter untersuchen. Die vielleicht interessanteste Option ist aber, die Störstellenlösung auf ein Gittermodell abzubilden und nicht-lokale Korrekturen zur DMFT-Lösung zu formulieren. Derartige Korrekturen führen zu einer impulsabhängigen Selbstenergie, welche richtungsabhängige Korrelationen beschreibt. Diese sind besonders im Kontext der Hochtemperatursupraleitung interessant.

Das J_z -**Modell** lässt sich in Fortsetzung dieser Arbeit auf seine Temperaturabhängigkeit untersuchen. Gerade die Vielteilcheneffekte in Form des bekannten Gitter-Kondo-Effektes sind stark temperaturabhängig. Es ist zu erwarten, dass die Kondo-Resonanz für höhere Temperaturen kollabiert und sich das spektrale Gewicht auf die Hubbard-Bänder verteilt. Im Vergleich mit dem Einband-Modell erwartet man zusätzliche Möglichkeiten, die gene-

rischen Vielteilcheneffekte von den typischen Mehrbandaspekten zu unterscheiden. Neben den in der Arbeit betrachteten Observablen lässt sich die Untersuchung aber auch auf Transportgrößen, insbesondere die optische Leitfähigkeit, erweitern. In Bezug auf das Experiment ist die Untersuchung von Systemen mit drei Bändern interessant, welche die t_{2g} -Orbitale des Ruthenium vollständig beschreiben können.

Die Untersuchung der **magneto-optischen Falle** mit Hilfe des Multiband-Codes steht erst an einem vielversprechenden Anfang. Neben der systematischen Untersuchung des z -Antiferromagneten in Bezug auf Fallenparameter, Teilchenzahl und Temperatur ist in der Fortentwicklung zu erwarten, dass auch die Ergebnisse für den xy -Antiferromagneten quantitativ verbessert werden können.

Die theoretische Untersuchung des **Heusler-Materials Co_2FeSi** lässt sich sicherlich verbessern, wenn man die sphärische Symmetrie der Wechselwirkungsintegrale aufgibt und die Integrale entsprechend der kubischen Gittersymmetrie bestimmt. Für eine systematische Diskussion der Parameter ist deren Zahl aber zu groß, sodass es sinnvoll ist, die Integrale mit den Wellenfunktionen direkt zu bestimmen.

Daneben bestehen berechtigte Zweifel, ob der LMTO/NMTO-Hamiltonian einen geeigneten Ausgangspunkt für die LDA+DMFT-Rechnung von Co_2FeSi darstellt. Im Vergleich der verschiedenen DFT-Methoden wird deutlich, dass gerade bei zwei wichtigen Eigenschaften des Materials, der Halbmetallizität und dem magnetischen Moment, erhebliche Unterschiede bestehen und die LMTO/NMTO-Rechnung eine im Vergleich schlechte Beschreibung des Experiments liefert.

Für eine weiterführende Untersuchung ist die Bestimmung der Temperatureigenschaften, im Besonderen der Néel-Temperatur, interessant. Durch Vergrößerung der Einheitszelle lassen sich die Eigenschaften für einfache Dotierungsverhältnisse untersuchen. Von Interesse ist ebenfalls der Einfluss der Spin-Bahn-Kopplung für die enthaltenen $3d$ -Elemente. Gerade für die technische Anwendung ist der Einfluss von Verunreinigungen, wie sie sich in der Realität und im Experiment nur schwer vermeiden lassen, oder die Betrachtung von Grenz- und Oberflächeneffekten relevant.

Die in der Arbeit diskutierten korrelierten Vielteilchenelektronensysteme werden größtenteils numerisch untersucht und gegebenenfalls mit analytischen Näherungsmethoden verglichen, welche die numerischen Ergebnisse im erwarteten Rahmen bestätigen. Neben Metall-Isolator-Übergängen und orbital-selektiven Mott-Phasen werden auch magnetische Phänomene betrachtet. Der Einfluss der Austauschwechselwirkung und der Effekt der Spinabschirmung werden im Störstellenmodell untersucht. Besonders interessant sind hier die Implikationen, die sich aus der Berücksichtigung der nicht-lokalen Korrelationen für ein Gittermodell ergeben. Den Abschluss bildet die Analyse der Korrelationsphänomene für ein realistisches Material mit einer großen Zahl relevanter Orbitale in der Einheitszelle.

A Anhang

A.1 Einteilchen-Green-Funktionen

Weil in dieser Arbeit die Green-Funktion die zentrale Beobachtungsgröße aller betrachteten Systeme ist, soll ihr Begriff in diesem Abschnitt abgeleitet und präzisiert werden. Im Besonderen werden in dieser Arbeit retardierte, avancierte und Matsubara-Green-Funktionen verwendet, die daher genau definiert und differenziert werden müssen. Letztlich sind diese Green-Funktionen nur verschiedene Ausprägungen derselben analytischen Funktion, das eine Mal ausgewertet an der reellen Achse, das andere Mal an der imaginären Achse. Je nach Problemstellung aber ist die Verwendung der einen oder anderen Variante opportun. Speziell die numerische Bestimmung der verschiedenen Green-Funktionen gestaltet sich unterschiedlich aufwändig. So ist die Bestimmung der an der reellen Achse definierten, retardierten (avancierten) Green-Funktion für viele Anwendungen komplizierter (im Vergleich zur Bestimmung der Matsubara-Green-Funktion), aber die Ableitung der Spektralfunktionen aus dieser Green-Funktion technisch sehr viel einfacher. Im Vergleich dazu lassen sich die Green-Funktionen im Matsubara-Formalismus numerisch einfacher bestimmen, die Auswertung der Spektralfunktion jedoch erfordert den Einsatz technisch aufwändiger Methoden zur analytischen Fortsetzung (siehe Abschnitt A.5).

Die formale Einleitung geschieht in aller Kürze. Detaillierte Betrachtungen finden sich in der Fachliteratur [Negele98, Gasser01]. Zur Motivation und einführenden Beschreibung wird hier der Kubo-Formalismus [Kubo57] gewählt, der in linearer Antwort den Einfluss einer äußeren, zeitabhängigen Störung auf ein System im thermodynamischen Gleichgewicht beschreibt. Dieser Zugang führt sehr natürlich auf den Begriff der Green-Funktion.

Ein physikalisches System selbst wird durch die Observablen $\{\hat{A}_i\}$ beschrieben, die sich auf Grund einer Störung $\hat{W}(t)$ ändern können. Die zeitabhängige Störung lässt sich in der Basis der Operatoren des Systems $\{\hat{A}_i\}$ entwickeln

$$\hat{W}(t) := - \sum_j \hat{A}_j f_j(t) \quad (\text{A.1})$$

mit der Bedingung, dass $f_j(t) \xrightarrow{t \rightarrow -\infty} 0$. Der statistische Operator genügt dann in der Wechselwirkungsdarstellung der Bewegungsgleichung

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = [\hat{W}(t), \hat{\rho}(t)] \quad (\text{A.2})$$

mit der Anfangsbedingung $\hat{\rho}(t) \xrightarrow{t \rightarrow -\infty} \hat{\rho}_0$. Aufintegrieren liefert

$$\hat{\rho}(t) - \hat{\rho}_0 = \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' [\hat{W}(t'), \hat{\rho}(t')] \quad , \quad (\text{A.3})$$

und in erster Ordnung der Störungstheorie gilt

$$\hat{\rho}^1(t) = \hat{\rho}_0 + \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' [\hat{W}(t'), \hat{\rho}_0] \quad . \quad (\text{A.4})$$

Für den Erwartungswert des Operators ergibt sich dann in linearer Antwort

$$\begin{aligned}
 \langle \hat{A}_i^1 \rangle(t) &= \text{Tr} \left(\hat{\rho}^1(t) \hat{A}_i \right) \\
 &= \langle \hat{A}_{i,0} \rangle + \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \text{Tr} \left([\hat{W}(t'), \hat{\rho}_0] \hat{A}_i \right) = \\
 &= \langle \hat{A}_{i,0} \rangle + \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \langle [\hat{A}_i(t), \hat{W}(t')] \rangle \\
 &= \langle \hat{A}_{i,0} \rangle + \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \langle [\hat{A}_i(t), \hat{W}(t')] \rangle \\
 &= \langle \hat{A}_{i,0} \rangle + \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \langle [\hat{A}_i(t), \hat{A}_j(t')] \rangle f_j(t')
 \end{aligned}$$

die Kubo-Formel, welche die Änderung der Observablen unter dem Einfluss der Störung $\hat{W}(t)$ beschreibt. Fasst man die Änderung der Observablen neu und definiert die retardierte¹ zweizeitige Green-Funktion [Bogoljubow59], unter Zuhilfenahme der Heaviside-Funktion $\theta(t)$

$$G_{\hat{A}_i, \hat{W}}^r(t, t') \equiv \frac{1}{i\hbar} \theta(t-t') \langle [\hat{A}_i(t), \hat{W}(t')] \rangle \quad (\text{A.5})$$

$$= -\frac{i}{\hbar} \theta(t-t') \langle [\hat{A}_i(t), \hat{A}_j(t')] \rangle f_j(t') \quad , \quad (\text{A.6})$$

so wird deutlich, dass die Green-Funktion die Änderung der Observablen unter dem Einfluss einer Störung beschreibt²

$$\langle \hat{A}_i^1 \rangle(t) = \langle \hat{A}_{i,0} \rangle - \int_{-\infty}^{\infty} dt' G_{\hat{A}_i, \hat{W}}^r(t, t') \quad . \quad (\text{A.7})$$

Damit ist die Aufgabe, die Mittelwerte der Operatoren \hat{A}_i^1 für ein gestörtes Gleichgewicht zu berechnen, auf die Berechnung reiner Gleichgewichtsgrößen reduziert.

Verallgemeinert man die Idee der Green-Funktion [Kubo57, Bogoljubow59] und lässt weitere Zeitordnungen und neben dem Kommutator auch den Anti-Kommutator zu, so lassen sich retardierte und avancierte Kommutator- respektive Antikommutator-Green-Funktion definieren

$$\begin{aligned}
 G_{\hat{A}\hat{B}, \eta}^r(t, t') &\equiv -\frac{i}{\hbar} \theta(t-t') \langle [\hat{A}(t), \hat{B}(t')]_{\eta} \rangle \quad , \\
 G_{\hat{A}\hat{B}, \eta}^a(t, t') &\equiv \frac{i}{\hbar} \theta(t'-t) \langle [\hat{A}(t), \hat{B}(t')]_{\eta} \rangle
 \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

mit den Operatoren $\hat{A}(t)$ und $\hat{B}(t')$ in Heisenbergdarstellung. Über den Parameter η wird zwischen Kommutator- und Antikommutator-Green-Funktion unterschieden, da

$$[\hat{A}, \hat{B}]_{\eta} = \hat{A}\hat{B} - \eta\hat{B}\hat{A} \quad , \quad (\text{A.9})$$

¹Retardiert heißt die Green-Funktion deshalb, weil der Zustand zum Zeitpunkt t nur von Störungen zu vorangegangenen Zeiten t' beeinflusst werden kann.

²Die Definition der Green-Funktion ist in der Literatur keineswegs einheitlich und unterscheidet sich im Detail.

wobei η beliebig festgelegt werden darf und kein Zwang besteht, beispielsweise im Fall bosonischer Operatoren etwa $\eta = 1$ zu wählen. Mit dem Wickschen Zeitordnungsoperator $T_\eta(\hat{A}(t)\hat{B}(t')) \equiv \theta(t-t')\hat{A}(t)\hat{B}(t') + \eta\theta(t'-t)\hat{B}(t')\hat{A}(t)$ definiert man zusätzlich das chronologische Produkt der Operatoren, die kausale Green-Funktion

$$G^k(t, t') \equiv -\frac{i}{\hbar} \langle T_\eta \hat{A}(t)\hat{B}(t') \rangle \quad . \quad (\text{A.10})$$

Eine Wick-Rotation $t \rightarrow -i\tau$ überführt Operatoren und Green-Funktionen auf die imaginäre Achse und definiert die Matsubara-Green-Funktion [Matsubara55]

$$\begin{aligned} \hat{A}(\tau) &\equiv e^{\hat{H}\tau/\hbar} \hat{A} e^{-\hat{H}\tau/\hbar} \quad , \\ G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\tau, \tau') &\equiv -\frac{1}{\hbar} \langle T_\tau \hat{A}(\tau)\hat{B}(\tau') \rangle \quad . \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

Auch ist zu beachten, dass $0 \leq \tau \leq \hbar\beta$ und infolge der Abhängigkeit von τ und τ' der Definitionsbereich für $G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\tau, \tau')$ mit $[-\hbar\beta, \hbar\beta]$ bestimmt wird. Außerhalb dieses Intervalls wird $G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\tau, \tau')$ periodisch fortgesetzt.

Falls das System im thermodynamischen Gleichgewicht ist, ergibt sich wegen der Zyklizität der Spurbildung ganz formal, dass die Green-Funktionen (A.8), (A.10) und (A.11) nur von der Zeitdifferenz $t-t'$, beziehungsweise $\tau-\tau'$ abhängen. In diesem Fall bietet es sich an, die Zeiten über eine Fourier-Transformation in die Frequenzdarstellung³ zu überführen

$$G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^{r/a}(\omega) = \int dt' e^{i\omega t'} G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^{r/a}(t') \quad , \quad (\text{A.12})$$

$$G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\omega_n) = \int_0^{\hbar\beta} d\tau e^{i\omega_n \tau} G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\tau) \quad . \quad (\text{A.13})$$

Weil die Matsubara-Green-Funktion nur auf einem festen Intervall definiert ist (und außerhalb periodisch fortgesetzt wird), ergeben sich nur bestimmte diskrete Frequenzen, die sogenannten Matsubara-Frequenzen ω_n .

Nach dem Theorem von Bogoliubov und Parasiuk [Bogoljubow56] haben die retardierte Green-Funktion $G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^r(\omega)$ und die avancierte Green-Funktion $G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^a(\omega)$ eine analytische Fortsetzung in die obere (oder untere) Halbebene. In diesem Fall gelten für die Green-Funktionen die Kramers-Kronig Relationen, die Imaginär- und Realteil miteinander assoziieren. Es lässt sich des Weiteren zeigen, dass die retardierte und avancierte Green-Funktion mit der Matsubara-Green-Funktion einfach über die Ersetzung $\omega \pm i\delta \rightarrow i\omega_n$ zusammenhängen

$$G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^r(\omega), G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^a(\omega) \xrightarrow{\omega \pm i\delta \rightarrow i\omega_n} G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\omega_n) \quad . \quad (\text{A.14})$$

Somit sind retardierte, avancierte und Matsubara-Green-Funktion nur verschiedene Darstellungen der gleichen analytischen Funktion, welche durch $G(z)$ in der gesamten komplexen Ebene definiert ist. Ausgewertet für verschiedene Argumente ergeben sich avancierte,

³Tatsächlich oszillieren die Green-Funktionen für große t stark, sodass die Fourier-Transformierte gar nicht existiert. Die Laplace-Transformierte $G_{\hat{A}\hat{B},\eta}(z) = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{\frac{i}{\hbar}zt} \begin{cases} G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^r(t') & \text{Im } z > 0 \\ G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^a(t') & \text{Im } z < 0 \end{cases}$ ist aber wohldefiniert, sodass retardierte und avancierte Green-Funktionen immer als $G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^{r/a}(\omega \pm i\delta)$ ausgewertet werden können.

retardierte und Matsubara-Green-Funktion

$$G_{\hat{A}\hat{B},\eta}(z) \Rightarrow \begin{cases} z = \omega + i\delta & : G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^r(\omega + i\delta) \\ z = \omega - i\delta & : G_{\hat{A}\hat{B},\eta}^a(\omega - i\delta) \\ z = i\omega_n & : G_{\hat{A}\hat{B}}^M(i\omega_n) \quad . \end{cases} \quad (\text{A.15})$$

Die Spektralfunktion $\rho_{\hat{A}\hat{B}}$ lässt sich definieren über die Hilbert-Transformation, derart, dass

$$G_{\hat{A}\hat{B},\eta}(z) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega)}{z - \omega} \quad (\text{A.16})$$

ist. Hieraus ergibt sich sofort

$$\rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega) = \lim_{\delta \rightarrow 0} \frac{1}{2\pi i} \left(G_{\hat{A}\hat{B},\eta}(\omega - i\delta) - G_{\hat{A}\hat{B},\eta}(\omega + i\delta) \right) \quad . \quad (\text{A.17})$$

Die Spektralfunktion misst damit gerade die Unstetigkeit des Imaginärteils zwischen retardierter und avancierter Green-Funktion an der reellen Achse. Der Realteil hingegen verläuft stetig an der reellen Achse. Falls $\hat{B} = \hat{A}^\dagger$ gilt, ist die Spektralfunktion reell und positiv semi-definit. Des Weiteren ist mit der Definition (A.16) sofort das Grenzverhalten $G_{\hat{A}\hat{B},\eta}(z) \xrightarrow{|z| \rightarrow \infty} \|\rho_{\hat{A}\hat{B}}\|/z$ einsichtig.

Die Erwartungswerte bei endlicher Temperatur ergeben sich für fermionische Green-Funktionen aus der Spektralfunktion zu

$$\langle \hat{B}\hat{A} \rangle = \int d\omega f_\beta(\omega) \rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega) \quad (\text{A.18})$$

mit der Fermi-Funktion $f_\beta(\omega) = 1/[1 + \exp(\beta\omega)]$ bei der Temperatur β . Die Spektralfunktionen selbst sind normiert

$$\langle [\hat{A}, \hat{B}]_\eta \rangle = \int d\omega \rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega) \quad . \quad (\text{A.19})$$

Für $\hat{A} \equiv \hat{c}_\alpha^\dagger$ und $\hat{B} \equiv \hat{c}_\beta$ (mit Quantenzahlen α und β) ergeben sich sogenannte *Einteilchen-Green-Funktionen*.

Für einen besonders einfachen, bilinearen Hamiltonian ergibt sich⁴ die Resonanzstruktur des Eigenwertspektrums in Form der Green-Funktion

$$\hat{H} = \sum_{\alpha} \epsilon_{\alpha} \hat{n}_{\alpha} \quad (\text{A.20})$$

$$\implies G_{\hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta}(z) = \frac{\delta_{\alpha\beta}}{z - \epsilon_{\alpha}} \quad . \quad (\text{A.21})$$

Führt man im System eine Wechselwirkung ein, so ändert sich die Polstruktur der meromorphen Einteilchen-Green-Funktion; zusätzliche Pole oder Bereichsschnitte (*branch cuts*) kommen im Allgemeinen hinzu. Dies kann auf unterschiedliche Arten dargestellt werden,

⁴Man erhält die Green-Funktion sehr einfach über die Methode der Bewegungsgleichungen (siehe beispielweise [Gasser01]). Für bilineare Hamiltonians schließt sich die Entwicklung mit dem ersten Entwicklungsschritt.

beispielsweise in Form einer rationalen Funktion $G(z) = P(z)/Q(z)$ oder aber in Form einer Kettenbruchentwicklung im Argument⁵

$$G(z) = \frac{1}{z - a_1 - \frac{b_1}{z - a_2 - \frac{b_2}{z - a_3 - \frac{b_3}{\dots}}}} \equiv \frac{1}{z - a_1 - \Sigma(z)} . \quad (\text{A.22})$$

Die Abweichung der Green-Funktion vom wechselwirkungsfreien Fall (A.21) führt zu einer veränderten Polstruktur, die in der *Selbstenergie* $\Sigma(z)$ absorbiert wird. In Gleichung (A.22) wird der Charakter der Selbstenergie deutlich: Die Selbstenergie erfasst die Abweichungen auf Grund der Wechselwirkungen und verschwindet sogar mit der Wechselwirkung ($\Sigma(z) \xrightarrow{\hat{V}_{\text{int}} \rightarrow 0} 0$). Alle Einflüsse der Wechselwirkung sind damit in der Selbstenergie enthalten. In diesem Sinne stellt die Selbstenergie ein natürliches Maß für die Abweichung vom wechselwirkungsfreien System dar.

A.2 Hartree-Fock-Lösung für das J_z -Modell

Für das J_z -Modell (Abschnitt 3.3) werden die numerischen Quanten-Monte-Carlo-Rechnungen mit zwei verschiedenen analytischen Untersuchungen des Modells verglichen. Die Lösung in Freier Theorie wird schon in Abschnitt 3.3.1 dargestellt. In diesem Anhang soll die Lösung in Hartree-Fock-Näherung beschrieben werden.

Der Hamiltonian (3.12) mit $\Delta = 0$ lautet in Hartree-Fock-Näherung (großkanonisch)

$$\begin{aligned} \hat{H}^{HF} = & - \sum_{\langle ij \rangle m \sigma} t_m \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{jm\sigma} - \mu N \\ & + U \sum_{im} \left[\hat{n}_{im\uparrow} \langle \hat{n}_{im\downarrow} \rangle + \hat{n}_{im\downarrow} \langle \hat{n}_{im\uparrow} \rangle - \langle \hat{n}_{im\uparrow} \rangle \langle \hat{n}_{im\downarrow} \rangle \right] \\ & + \sum_{i\sigma\sigma'} \left(U' - \delta_{\sigma\sigma'} J_z \right) \left[\hat{n}_{i1\sigma} \langle \hat{n}_{i2\sigma'} \rangle + \hat{n}_{i2\sigma'} \langle \hat{n}_{i1\sigma} \rangle - \langle \hat{n}_{i1\sigma} \rangle \langle \hat{n}_{i1\sigma'} \rangle \right] . \quad (\text{A.23}) \end{aligned}$$

Weil der Zustand translationsinvariant angenommen wird, ergibt sich $\langle \hat{n}_{im\sigma} \rangle = \bar{n}_{m\sigma}$, und weil das System paramagnetisch angenommen wird, ist $\bar{n}_{m\sigma} = \frac{1}{2} \bar{n}_m$. Der Hamiltonian (A.23) lautet dann

$$\begin{aligned} \hat{H}^{HF} = & - \sum_{\langle ij \rangle m \sigma} t_m \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{jm\sigma} - \mu N \\ & + U \sum_{im} \left[\frac{1}{2} \bar{n}_m \left(\hat{n}_{im\uparrow} + \hat{n}_{im\downarrow} \right) - \left(\frac{1}{2} \bar{n}_m \right)^2 \right] \\ & + \sum_{i\sigma\sigma'} \left(U' - \delta_{\sigma\sigma'} J_z \right) \left(\frac{1}{2} \bar{n}_1 \hat{n}_{i2\sigma'} + \frac{1}{2} \bar{n}_2 \hat{n}_{i1\sigma'} - \frac{1}{4} \left(\bar{n}_1 \bar{n}_2 \right) \right) \\ = & - \sum_{\langle ij \rangle m \sigma} t_m \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{jm\sigma} - C \mathcal{N} \\ & + \sum_{i\sigma\sigma'} \left[\frac{1}{2} U \bar{n}_m - \mu + \sum_{\sigma'} \left(U' - \delta_{\sigma\sigma'} J_z \right) \left(\frac{1}{2} \bar{n}_m \right) \right] \end{aligned}$$

⁵Ganz allgemein stellt $(z - \hat{A})^{-1}$ einen Resolventenoperator dar, dessen Green-Funktion $G_\psi(z) = \langle \psi | (z - \hat{A})^{-1} | \psi \rangle$ als Resolvente bezeichnet wird und die allgemein in einen Kettenbruch entwickelt werden kann.

mit der Energieverschiebung $C = \frac{1}{4}U \sum_m (\bar{n}_m)^2 + \frac{1}{4} \sum_{\sigma\sigma'} (U' - \delta_{\sigma\sigma'} J_z) \bar{n}_1 \bar{n}_2$ und der Zahl der Gitterplätze $\mathcal{N} = \sum_i 1$. Ausführen der Summe über die Spins σ' liefert

$$\begin{aligned} \hat{H}^{HF} = & - \sum_{\langle ij \rangle m \sigma} t_m \hat{c}_{im\sigma}^\dagger \hat{c}_{jm\sigma} - C \mathcal{N} \\ & + \sum_{im\sigma} \hat{n}_{im\sigma} \left[\frac{1}{2} U \bar{n}_m - \mu + \sum_{\sigma'} (U' - \delta_{\sigma\sigma'} J_z) \left(\frac{1}{2} \bar{n}_{\bar{m}} \right) \right] . \end{aligned}$$

In dieser Einteilchenbeschreibung führt die Fourier-Transformation für ein translationsinvariantes Gitter auf

$$\hat{H}^{HF} = \sum_{\underline{k} m \sigma} (\epsilon_{\underline{k}} - \mu_m) \hat{n}_{\underline{k} m \sigma} - C \mathcal{N}$$

mit dem renormierten chemischen Potential

$$\mu_m = \mu - \frac{1}{2} U \bar{n}_m - (U' - \frac{1}{2} J_z) \bar{n}_{\bar{m}} .$$

Zur quantitativen Auswertung dieser analytischen Lösung müssen die Teilchenzahlen \bar{n}_m selbstkonsistent bestimmt werden. Typischerweise geschieht die Lösung in einem iterativen Zyklus, d.h. man startet mit frei gewählten Teilchenzahlen und bestimmt damit neue Zustandsdichten, respektive Teilchenzahlen, die dann selbst als Ausgangspunkt für eine neue Iteration dienen. Wie bei den meisten anderen iterativen Lösungsstrategien ist auch hier der Parameterraum, in welchem das Verfahren einfach konvergiert, beschränkt. Es gibt Parametersätze, für welche das Iterationsverfahren instabil ist. Für ein endliches Hubbard-Modell in Hartree-Fock-Näherung wurden Fixpunktuntersuchungen der Lösung vorgenommen, die eine kritische Schwelle U/t identifizieren, unterhalb derer das Iterationsverfahren für die Hartree-Fock-Lösung streng konvergiert [Gottwald08]. Genauso ergeben sich für die numerische Lösung dieses Problems kritische Wechselwirkungen U , unterhalb derer das Iterationsverfahren immer konvergiert. Oberhalb dieser wird die Konvergenz für bestimmte Parametersätze und Startwerte schlechter und für manche Parameterregimes unmöglich.

Diese Schwelle lässt sich verschieben und damit die Konvergenz verbessern, wenn man die Teilchenzahlen relaxiert, d.h. die Teilchenzahl der neuen Iteration i als Funktion (wenigstens) zweier vorangegangener Iteration $i-1$ und $i-2$ bestimmt

$$\bar{n}_m^i = (1 - \alpha) \Phi_m(\bar{n}_1^{i-1}, \bar{n}_2^{i-1}) + \alpha \bar{n}_m^{i-2} . \quad (\text{A.24})$$

Hier ist $\Phi_m(\bar{n}_1, \bar{n}_2)$ jenes Funktional, welches aus zwei Teilchenzahlen \bar{n}_1 und \bar{n}_2 eine neue Teilchenzahl gemäß den Hartree-Fock-Gleichungen für das gewählte Problem bestimmt. Durch die Relaxation verbessert sich die Konvergenz deutlich.

Eine weitere Verbesserung erhält man, wenn man den Relaxationskoeffizienten α zufällig in jeder Iteration neu bestimmt (die maximale Variation sollte so gewählt werden, dass immer $1 - \alpha > 0$ gilt). Damit verhindert man eine Oszillation des Verfahrens im Lösungsraum, wie es bei nichtlinearen Problem für feste α auftreten kann.

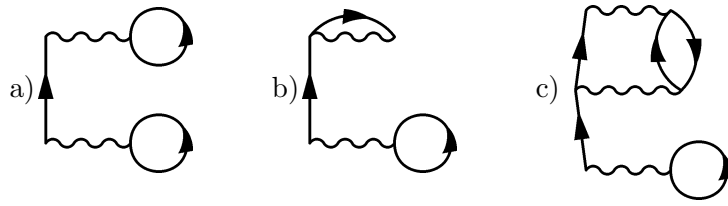


Abbildung A.1: Beispiele für einteilchen-reduzible Diagramme. Die zwei Diagramme links (a, b) sind 2. Ordnung, das rechte (c) ist 3. Ordnung. Ein einteilchen-reduzibles Diagramm kann durch Schnitt eines einzelnen Propagators in mehrere reduzible und/oder irreduzible Diagramme zerlegt werden.

A.3 Numerische Auswertung von Diagrammen

Im Rahmen einer diagrammatischen Störungstheorie, wie sie in Abschnitt 2.1.1 vorgestellt und durch die Diagramme in Abbildung 2.2 definiert wird, müssen die einzelnen Diagramme in der Regel numerisch bestimmt werden. Exemplarisch sollen in diesem Abschnitt das Vorgehen und die numerische Auswertung für das Hartree-Diagramm, das Fock-Diagramm und das Dichte-Dichte-Diagramm 2. Ordnung illustriert werden (Abb. 2.2a, b und c). Der Fortschritt einer diagrammatischen Störungstheorie gegenüber einer nicht-diagrammatischen Störungstheorie ist, dass die einzelnen Beiträge zur Selbstenergie unterscheidbaren Prozessen zugeordnet werden können und man einen systematischen Weg zur Bestimmung der Selbstenergiebeiträge erhält. Die Beiträge lassen sich mit Hilfe von Feynman-Diagrammen konstruieren und in algebraische Ausdrücke rückübersetzen [Mattuck76, Fetter71]. Zur Bestimmung der Selbstenergie müssen nur die einteilchen-irreduziblen Diagramme berechnet werden. Einteilchen-reduzible Beiträge, wie in Abbildung A.1 dargestellt, werden durch die Dyson-Gleichung berücksichtigt.

Die Diagramme lassen sich mit Hilfe des Spektralanteils der Green-Funktion (A.16) bestimmen. Dies hat bei der numerischen Behandlung Vorteile, da der spektrale Anteil $\rho(\omega) \propto \text{Im } G(\omega \pm i\delta)$ von Realfrequenz-Green-Funktionen $G(\omega \pm i\delta)$ schneller als ihr Realteil mit der Frequenz abfällt als ihr Realteil (für Systeme mit endlicher Bandbreite exponentiell oder stärker). Die Temperaturabhängigkeit geht über Fermi-Frequenzen $\omega_n = (2n + 1) \frac{\pi}{\beta}$ und Bose-Frequenzen $\bar{\omega}_n = 2n \frac{\pi}{\beta}$ in den Formalismus ein. Bei der Auswertung der Diagramme sind folgende Relationen hilfreich

$$\lim_{\eta \rightarrow 0} \frac{1}{\beta} \sum_{i\omega_n} \frac{e^{i\omega_n \eta}}{i\omega_n - x} = -f_\beta(x) \quad (\text{A.25})$$

$$\frac{1}{\beta} \sum_n (i\omega_n - x)^{-1} (i\omega_n - y)^{-1} = \frac{f_\beta(x) - f_\beta(y)}{x - y} \quad (\text{A.26})$$

$$f_\beta(i\bar{\omega}_n + x) = f_\beta(x) \quad (\text{A.27})$$

$$f_\beta(i\omega_n + x) = -b_\beta(x) \quad (\text{A.28})$$

$$b_\beta = \frac{f_\beta}{1 - 2f_\beta} \quad (\text{A.29})$$

mit der Fermi- $f_\beta(x) = 1/[\exp(\beta x) + 1]$ und der Bose-Funktion $b_\beta(x) = 1/[\exp(\beta x) - 1]$.

Im Weiteren wird von der Einstein'schen Summenkonvention Gebrauch gemacht, sodass über doppelt vorkommende innere Indizes summiert wird.

Das Hartree-Diagramm berechnet sich mit den Diagrammregeln für die Matsubara-Störungstheorie [Fetter71]



$$G_{n\sigma, o\sigma'}(i\omega_\alpha) \quad : \quad (\text{A.30})$$

$$\begin{aligned} \Sigma_{m\kappa, p\kappa'}^{\text{Hartree}} &= -U_{mnop} \frac{1}{\beta} \sum_{\alpha} \int d\epsilon \frac{\rho_{n\sigma, o\sigma'}(\epsilon) e^{i\omega_\alpha \eta}}{i\omega_\alpha - \epsilon + \mu} \\ &= -\frac{U_{mnop}}{\beta} \int d\epsilon \rho_{n\sigma, o\sigma'}(\epsilon) \sum_{\alpha} \frac{e^{i\omega_\alpha \eta}}{i\omega_\alpha - \epsilon + \mu} \\ &\stackrel{(\text{A.25})}{=} +U_{mnop} \int d\epsilon \rho_{n\sigma, o\sigma'}(\epsilon) f_{\beta}(\epsilon - \mu) \\ &= +U_{mnop} n_{n\sigma, o\sigma'} \quad , \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

mit den Einteilchenerwartungswerten

$$n_{m\sigma, n\sigma'} = \int d\omega \rho_{m\sigma, n\sigma'}(\omega) f_{\beta}(\omega) \quad .$$

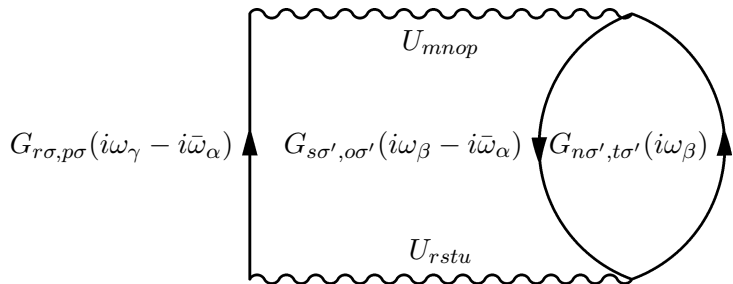
Ganz analog ergibt sich das Fock-Diagramm zu



$$G_{m\sigma, o\sigma'}(i\omega_\alpha) \quad : \quad (\text{A.32})$$

$$\begin{aligned} \Sigma_{n\kappa, p\kappa'}^{\text{Fock}} &= U_{mnop} \frac{1}{\beta} \sum_{\alpha} \int d\epsilon \frac{\rho_{m\sigma, o\sigma'}(\epsilon) e^{i\omega_\alpha \eta}}{i\omega_\alpha - \epsilon + \mu} \\ &= \dots \\ &= -U_{mnop} n_{m\sigma, o\sigma'} \quad . \end{aligned} \quad (\text{A.33})$$

Das Dichte-Dichte-Diagramm 2. Ordnung bestimmt sich wie folgt



$$G_{r\sigma, p\sigma}(i\omega_\gamma - i\bar{\omega}_\alpha) \quad G_{s\sigma', o\sigma'}(i\omega_\beta - i\bar{\omega}_\alpha) \quad G_{n\sigma', t\sigma'}(i\omega_\beta) \quad (\text{A.34})$$

$$\begin{aligned}
 & \Sigma_{m\kappa, u\kappa'}^{\text{DD}}(i\omega_\gamma) \\
 = & U_{mnop} U_{rstu} \frac{(-1)}{\beta^2} \int d\underline{\epsilon} \sum_{\alpha\beta} \frac{\rho_{r\sigma, p\sigma}(\epsilon_1)}{i(\omega_\gamma - \bar{\omega}_\alpha) - \epsilon_1 + \mu} \cdot \frac{\rho_{s\sigma', o\sigma'}(\epsilon_2)}{i(\omega_\beta - \bar{\omega}_\alpha) - \epsilon_2 + \mu} \cdot \frac{\rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3)}{i\omega_\beta - \epsilon_3 + \mu} \\
 = & -U_{mnop} U_{rstu} \int d\underline{\epsilon} \rho_{r\sigma, p\sigma}(\epsilon_1) \rho_{s\sigma', o\sigma'}(\epsilon_2) \rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3) \frac{1}{\beta} \sum_{\alpha} \left(i(\omega_\gamma - \bar{\omega}_\alpha) - \epsilon_1 + \mu \right)^{-1} \\
 & \cdot \underbrace{\frac{1}{\beta} \sum_{\beta} \left(i\omega_\beta - (i\bar{\omega}_\alpha + \epsilon_2 - \mu) \right)^{-1} \left(i\omega_\beta - (\epsilon_3 - \mu) \right)^{-1}}_{= \frac{f_\beta(\epsilon_3 - \mu) - f_\beta(i\bar{\omega}_\alpha + \epsilon_2 - \mu)}{\epsilon_3 + \mu - i\bar{\omega}_\alpha - \epsilon_2 - \mu} = \frac{f_\beta(\epsilon_2 - \mu) - f_\beta(\epsilon_3 - \mu)}{i\bar{\omega}_\alpha + \epsilon_2 - \epsilon_3}} \\
 = & U_{mnop} U_{rstu} \int d\underline{\epsilon} \rho_{r\sigma, p\sigma}(\epsilon_1) \rho_{s\sigma', o\sigma'}(\epsilon_2) \rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3) \left[f_\beta(\epsilon_2 - \mu) - f_\beta(\epsilon_3 - \mu) \right] \\
 & \cdot \frac{1}{\beta} \sum_{\alpha} (-1) \left(i(\omega_\gamma - \bar{\omega}_\alpha) - \epsilon_1 + \mu \right)^{-1} \left(i\bar{\omega}_\alpha + \epsilon_2 - \epsilon_3 \right)^{-1} .
 \end{aligned}$$

Um an dieser Stelle die Summation über die Bose-Frequenzen $\bar{\omega}_\alpha$ zu umgehen, kann man diese in zwei Fermi-Frequenzen aufteilen $\bar{\omega}_\alpha = \omega_{\alpha'} + \omega_\lambda$

$$\begin{aligned}
 \Sigma_{m\kappa, u\kappa'}^{\text{DD}}(i\omega_\gamma) & = U_{mnop} U_{rstu} \int d\underline{\epsilon} \rho_{r\sigma, p\sigma}(\epsilon_1) \rho_{s\sigma', o\sigma'}(\epsilon_2) \rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3) \left[f_\beta(\epsilon_2 - \mu) - f_\beta(\epsilon_3 - \mu) \right] \\
 & \cdot \underbrace{\frac{1}{\beta} \sum_{\alpha'} \left(i\omega_{\alpha'} - (i\omega_\gamma - \epsilon_1 + \mu + i\omega_\lambda) \right)^{-1} \left(i\omega_{\alpha'} - (\epsilon_3 - \epsilon_2 + i\omega_\lambda) \right)^{-1}}_{\substack{\text{(A.26)} \frac{f_\beta(i\omega_\gamma - \epsilon_1 + \mu + i\omega_\lambda) - f_\beta(\epsilon_3 - \epsilon_2 + i\omega_\lambda)}{i\omega_\gamma - \epsilon_1 + \mu + i\omega_\lambda - \epsilon_3 + \epsilon_2 - i\omega_\lambda} \text{(A.27), (A.28)} \frac{f_\beta(-\epsilon_1 + \mu) - b_\beta(\epsilon_3 - \epsilon_2)}{i\omega_\gamma - \epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_3 + \mu}} \\
 & = U_{mnop} U_{rstu} \int d\underline{\epsilon} \rho_{r\sigma, p\sigma}(\epsilon_1) \rho_{s\sigma', o\sigma'}(\epsilon_2) \rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3) \left(i\omega_\gamma - \epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_3 + \mu \right)^{-1} \\
 & \cdot \left[f_\beta(\epsilon_2 - \mu) - f_\beta(\epsilon_3 - \mu) \right] \cdot \left[f_\beta(\mu - \epsilon_1) + b_\beta(\epsilon_3 - \epsilon_2) \right] .
 \end{aligned}$$

Mit Hilfe von (A.29) lässt sich zeigen, dass

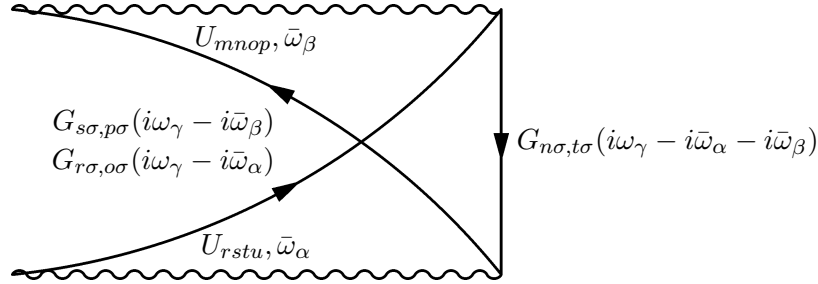
$$\begin{aligned}
 & \left[f_\beta(\epsilon_2 - \mu) - f_\beta(\epsilon_3 - \mu) \right] \cdot \left[f_\beta(\mu - \epsilon_1) + b_\beta(\epsilon_3 - \epsilon_2) \right] \\
 = & \left[f_\beta(\epsilon_1 - \mu) f_\beta(-\epsilon_2 + \mu) f_\beta(\epsilon_3 - \mu) + f_\beta(-\epsilon_1 + \mu) f_\beta(\epsilon_2 - \mu) f_\beta(-\epsilon_3 + \mu) \right] \\
 = & \left[f_\beta(\epsilon_1 - \mu) (1 - f_\beta(\epsilon_2 - \mu)) f_\beta(\epsilon_3 - \mu) + (1 - f_\beta(\epsilon_1 - \mu)) f_\beta(\epsilon_2 - \mu) (1 - f_\beta(\epsilon_3 - \mu)) \right]
 \end{aligned}$$

gilt. Setzt man nun das Ergebnis analytisch in der äußeren Frequenz $i\omega_\gamma \rightarrow z \rightarrow \omega \pm i\delta$ fort, so erhält man

$$\begin{aligned}
 & \Sigma_{m\kappa, u\kappa'}^{\text{DD}}(i\omega_\gamma) \tag{A.35} \\
 = & U_{mnop} U_{rstu} \int d\underline{\epsilon} \frac{\rho_{r\sigma, p\sigma}(\epsilon_1) \rho_{s\sigma', o\sigma'}(\epsilon_2) \rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3)}{z - \epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_3 + \mu} \\
 & \cdot \left[f_\beta(\epsilon_1 - \mu) (1 - f_\beta(\epsilon_2 - \mu)) f_\beta(\epsilon_3 - \mu) + (1 - f_\beta(\epsilon_1 - \mu)) f_\beta(\epsilon_2 - \mu) (1 - f_\beta(\epsilon_3 - \mu)) \right] .
 \end{aligned}$$

Dieses Ergebnis ist schon für diagonale orbitale Struktur aus der Literatur [Martín-Rodero82, Potthoff97] bekannt.

Für das Austauschdiagramm ergibt sich



$$\begin{aligned}
 & \Sigma_{mk, uk'}^{\text{Austausch}}(i\omega_\gamma) \\
 = & U_{mnop} U_{rstu} \frac{1}{\beta^2} \\
 & \cdot \int d\underline{\epsilon} \sum_{\alpha\beta} \frac{\rho_{r\sigma, o\sigma}(\epsilon_1)}{i(\omega_\gamma - \bar{\omega}_\alpha) - \epsilon_1 + \mu} \cdot \frac{\rho_{n\sigma, t\sigma}(\epsilon_2)}{i(\omega_\gamma - \bar{\omega}_\alpha - \bar{\omega}_\beta) - \epsilon_2 + \mu} \cdot \frac{\rho_{s\sigma, p\sigma}(\epsilon_3)}{i(\omega_\gamma - \bar{\omega}_\beta) - \epsilon_3 + \mu} \\
 = & \dots \\
 = & U_{mnop} U_{rstu} \int d\underline{\epsilon} \frac{\rho_{r\sigma, o\sigma}(\epsilon_1) \rho_{n\sigma, t\sigma}(\epsilon_2) \rho_{s\sigma, p\sigma}(\epsilon_3)}{z - \epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_3 + \mu} \\
 & \cdot \left[-f_\beta(\epsilon_1 - \mu)(1 - f_\beta(\epsilon_2 - \mu))f_\beta(\epsilon_3 - \mu) - (1 - f_\beta(\epsilon_1 - \mu))f_\beta(\epsilon_2 - \mu)(1 - f_\beta(\epsilon_3 - \mu)) \right].
 \end{aligned} \tag{A.36}$$

Die Berechnung der Diagramme (A.35) und (A.36) über eine mehrdimensionale Integration ist aufwändig und ungenau. Wegen der speziellen algebraischen Struktur der Diagramme (A.35) und (A.36) lässt sich die mehrdimensionale Integration jedoch schrittweise durchführen, sodass die Integration auch über mehrere Faltungen durchführbar ist. Der Fortschritt liegt in einer um mehrere Größenordnungen höheren Geschwindigkeit für die numerische Auswertung⁶, bei gleichzeitig deutlich verbesserter Präzision.

Im Folgenden wird die numerische Auswertung des Diagramms (A.35) auf der reellen Achse für $z = \omega \pm i\delta$ mit Hilfe einer mehrfachen Faltung dargelegt. Man findet

$$\begin{aligned}
 & U_{mnop} U_{rstu} \int d\underline{\epsilon} \frac{\rho_{r\sigma, p\sigma}(\epsilon_1) \rho_{s\sigma', o\sigma'}(\epsilon_2) \rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3)}{z - \epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_3 + \mu} \\
 & \cdot \left[f_\beta(\epsilon_1 - \mu)(1 - f_\beta(\epsilon_2 - \mu))f_\beta(\epsilon_3 - \mu) + (1 - f_\beta(\epsilon_1 - \mu))f_\beta(\epsilon_2 - \mu)(1 - f_\beta(\epsilon_3 - \mu)) \right] \\
 = & U_{mnop} U_{rstu} \int d\epsilon_1 \int d\epsilon_2 \rho_{r\sigma, p\sigma}(\epsilon_1) \rho_{s\sigma', o\sigma'}(\epsilon_2) \\
 & \cdot \left(f_\beta(\epsilon_1 - \mu)(1 - f_\beta(\epsilon_2 - \mu)) \underbrace{\left[\int d\epsilon_3 \frac{\rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3) f_\beta(\epsilon_3 - \mu)}{\tau - \epsilon_3 \pm i\delta} \right]_{\tau = \omega - \epsilon_1 + \epsilon_2 + \mu}}_{\equiv A_+(\tau)} \right. \\
 & \left. (1 - f_\beta(\epsilon_1 - \mu))f_\beta(\epsilon_2 - \mu) \underbrace{\left[\int d\epsilon_3 \frac{\rho_{n\sigma', t\sigma'}(\epsilon_3)(1 - f_\beta(\epsilon_3 - \mu))}{\tau - \epsilon_3 \pm i\delta} \right]_{\tau = \omega - \epsilon_1 + \epsilon_2 + \mu}}_{\equiv A_-(\tau)} \right)
 \end{aligned}$$

⁶Zeitvorteil etwa bei einem Faktor $10^3 - 10^4$

$$\begin{aligned}
&= U_{mnop} U_{rstu} \int d\epsilon_1 \rho_{r\sigma,p\sigma}(\epsilon_1) \\
&\quad \cdot \left(f_\beta(\epsilon_1 - \mu) \underbrace{\left[\int d\epsilon_2 \rho_{s\sigma',o\sigma'}(\epsilon_2) (1 - f_\beta(\epsilon_2 - \mu)) A_+(\tau' + \epsilon_2) \right]}_{\equiv B_+(\tau')} \right)_{\tau'=\omega-\epsilon_1+\mu} \\
&\quad \cdot \left((1 - f_\beta(\epsilon_1 - \mu)) \underbrace{\left[\int d\epsilon_2 \rho_{s\sigma',o\sigma'}(\epsilon_2) f_\beta(\epsilon_2 - \mu) A_-(\tau' + \epsilon_2) \right]}_{\equiv B_-(\tau')} \right)_{\tau'=\omega-\epsilon_1+\mu} \\
&= U_{mnop} U_{rstu} \\
&\quad \cdot \left(\underbrace{\left[\int d\epsilon_1 \rho_{r\sigma,p\sigma}(\epsilon_1) f_\beta(\epsilon_1 - \mu) B_+(\tau'' - \epsilon_1) \right]}_{\equiv C_+(\tau'')} \right)_{\tau''=\omega+\mu} \\
&\quad \cdot \left(\underbrace{\left[\int d\epsilon_1 \rho_{r\sigma,p\sigma}(\epsilon_1) (1 - f_\beta(\epsilon_1 - \mu)) B_+(\tau'' - \epsilon_1) \right]}_{\equiv C_-(\tau'')} \right)_{\tau''=\omega+\mu} \\
&= U_{mnop} U_{rstu} [C_+(\omega + \mu) + C_-(\omega + \mu)] \quad . \tag{A.37}
\end{aligned}$$

Für die Implementierung im Programmcode werden die Größen $A_+(\tau)$, $A_-(\tau)$, $B_+(\tau')$, $B_-(\tau')$, $C_+(\tau'')$, $C_-(\tau'')$ nacheinander und zuletzt das Diagramm selbst bestimmt. Für (A.36) ergibt sich die Vorschrift analog.

Zur numerischen Bestimmung der Funktionen wird ein adaptiver Algorithmus verwendet, der die abgetasteten Stützstellen in mehreren Durchläufen optimiert. Für typische Anwendungen genügt es, die Funktionen mit 300 – 1500 nicht-äquidistanten Punkten abzutasten. Der minimale Stützstellenabstand ist dabei (je nach Situation) $\sim 10^{-5}$ der Intervallbreite. Verglichen mit einer äquidistanten Stützstellenwahl werden also um den Faktor 10 – 100 weniger Punkte benötigt. Weil für die notwendigen Faltungen der numerische Aufwand etwa quadratisch mit der Zahl der Stützstellen eingeht, ist der Aufwand durch das adaptive Verfahren bei vergleichbarer Präzision sehr viel kleiner als für ein Verfahren auf äquidistantem Gitter.

Der Konvergenzfaktor δ beeinflusst das Ergebnis, kann aber für die meisten numerischen Anwendungen so klein gewählt werden, dass sein Einfluss vernachlässigt werden darf. In Abbildung A.2 ist (A.37) für eine einfach-kubische Zustandsdichte ($\rho_{r\sigma,p\sigma} = \rho_{s\sigma',o\sigma'} = \rho_{n\sigma',t\sigma'} = \rho_{3D-SC}$) für verschiedene δ ausgewertet ($U_{mnop} = U_{rstu} = 1$). Für $\delta \lesssim 10^{-3}$ liegen die Resultate in Linienbreite übereinander und sind kaum zu differenzieren. Für die in dieser Arbeit bestimmten Diagramme wird in der Regel $\delta \sim 10^{-4}$ gewählt.

Alternativ zu diesem Vorgehen werden in der Literatur auch andere Methoden zur Bestimmung von Feynman-Diagrammen 2. Ordnung angegeben. Das Diagramm selbst lässt sich sehr einfach auf der imaginären Achse bestimmen (siehe bspw. [Georges96]). Zur Verwendung in einer Realfrequenzrechnung muss es dann aber aufwändig analytisch fortgesetzt werden (siehe Abschnitt A.5). In [Kajueter96a] findet sich ein Ansatz, der mit Hilfe des Keldysh-Formalismus eine Selbstenergie bestimmt. Hier tritt aber an verschiedenen Stellen eine diskrete Fourier-Transformation mit den bekannten numerischen Defiziten [Brigham85] auf.

Es sei darauf hingewiesen, dass die Diagramme letztlich zur Lösung eines Mehrstör-

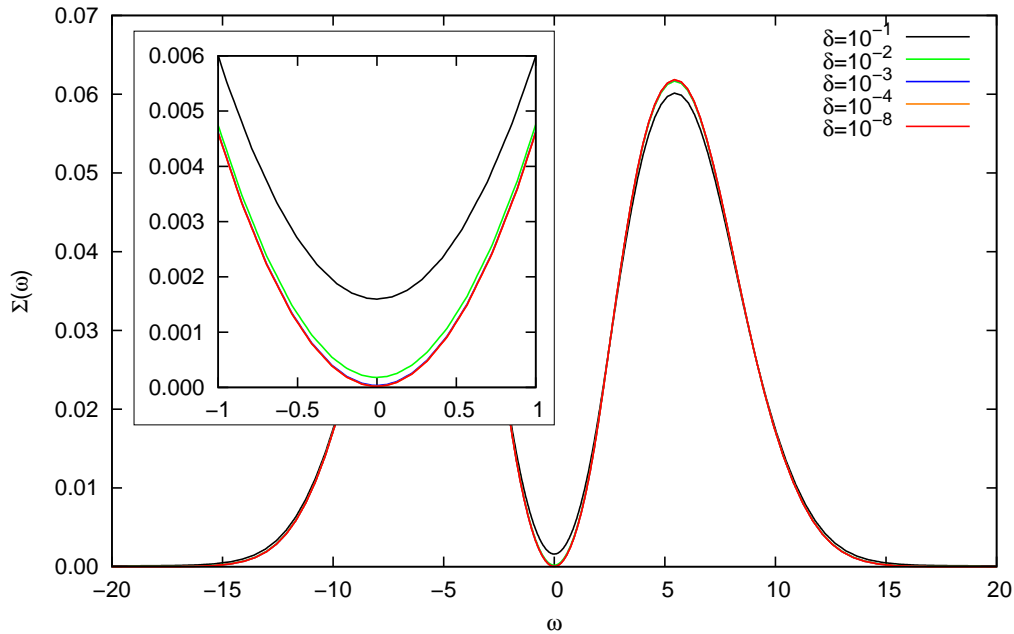


Abbildung A.2: Imaginärteil des Selbstenergiendiagramms (A.37), ausgewertet für die Zustandsdichte eines einfach-kubischen Gitters (3D) in allen drei Spektralfunktionen für verschiedene Parameter δ . Für $\delta \lesssim 10^{-3}$ liegen die Resultate in Linienbreite übereinander und sind kaum zu unterscheiden. Im Inset ist eine Vergrößerung des Bereichs um die Fermi-Kante herum dargestellt.

stellenproblems verwandt werden und die eingehenden Propagatoren daher \underline{k} -unabhängig sind und nur von der Energievariablen abhängen. Würde man das volle Problem mit \underline{k} -abhängigen Diagrammen lösen und damit eine \underline{k} -abhängige, nicht-lokale Selbstenergie bestimmen, so müssten noch zusätzliche Integrationen im \underline{k} -Raum durchgeführt werden. Diese Einschränkung aber ist in der Praxis nicht wesentlich, weil der gewählte Ansatz für Störstellen-Anderson-Modelle (Abschnitte 2, 2.2) im Rahmen der DMFT für periodische Festkörper (Abschnitt 3.2) und auch auf endliche, ortsaufgelöste Modellsysteme (Abschnitt 3.4) anwendbar ist.

A.4 Verfahren zur Summation über die Brillouin-Zone

Zur Bestimmung der lokalen Green-Funktion (3.8) muss eine mehrdimensionale Summation über die Brillouin-Zone durchgeführt werden. Dies stellt numerisch ein erhebliches Problem dar und ist im Vergleich zu einer eindimensionalen Summation ungleich schwieriger durchzuführen und mit größerem Fehler behaftet. Führt man eine solche Summe *brute force*⁷ aus, so bieten sich für Dimensionen $D \leq 3$ analytische Integrationsmethoden an, wie beispielsweise des Algorithmus *dcuhre* [Berntsen91]. Alternativ hierzu lassen sich auch Monte-Carlo Methoden verwenden, die sich typisch für stark singuläre Integranden oder Dimensionen $D > 3$ anbieten (siehe auch 2.1.2).

⁷Engl. *brute force* : rohe Gewalt. Eine numerische Behandlung *brute force* durchzuführen, heißt, sie ohne mögliche Vereinfachung und unter Inkaufnahme erheblichen Aufwands zu erledigen.

Für Situationen, in welchen die Green-Funktion (3.8) diagonal ist, lässt sich die Summation über die Brillouin-Zone in eine Hilbert-Transformation überführen. Bekanntermaßen lässt sich die Zustandsdichte $\rho_0(\epsilon)$ im *tight-binding*-Grenzfall darstellen als

$$\rho_0(\epsilon) = \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} \delta(\epsilon - \epsilon_{\underline{k}}) \quad (\text{A.38})$$

für eine Dispersion $\epsilon_{\underline{k}}$. Es ergibt sich damit die summierte Green-Funktion (3.8) wesentlich vereinfacht zu

$$\begin{aligned} G_{\alpha\alpha}(z) &= \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} G_{\alpha\alpha}(\underline{k}, z) = \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} \left(z + \mu - \epsilon_{\alpha\alpha}(\underline{k}) - \Sigma_{\alpha\alpha}(z) \right)^{-1} \\ &= \int d\epsilon \rho_0(\epsilon) \left(z + \mu - \epsilon - \Sigma_{\alpha\alpha}(z) \right)^{-1} . \end{aligned} \quad (\text{A.39})$$

Die summierte Green-Funktion kann so über eine sehr einfache, eindimensionale Faltung bestimmt werden.

Für allgemeine Mehrbandsysteme ist ein solches Vorgehen nicht möglich. Man kann die Integration, respektive Summation, in Gleichung (3.8) dennoch stark vereinfachen, wenn man die Symmetrien des Systems in der Brillouin-Zone berücksichtigt und sich auf eine vorher festgelegte Menge an ausgewählten Vektoren $\{\underline{k}_i\}$ beschränkt. Das unterscheidet sich von der im Anfang des Abschnitts genannten *brute force*-Methode dadurch, dass die Stützstellen der Integration nicht in jeder DMFT-Iteration generiert werden, sondern von vorneherein auf fixe Stützstellen in der Brillouin-Zone festgelegt werden. Mit einer fixen Menge an Stützstellen wird (3.8) zu

$$\frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} \underline{G}(\underline{k}, z) = \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} \left((z + \mu) \underline{1} - \underline{\epsilon}(\underline{k}) - \underline{\Sigma}(z) \right)^{-1} \quad (\text{A.40})$$

$$= \frac{1}{V_B} \sum_{\{\underline{k}_i\}} w_i \left((z + \mu) \underline{1} - \underline{\epsilon}(\underline{k}_i) - \underline{\Sigma}(z) \right)^{-1} \quad (\text{A.41})$$

mit den Integrationsgewichten $\{w_i\}$. Die Stützstellen \underline{k}_i und Gewichte w_i können nun für ein gewähltes $\underline{\epsilon}(\underline{k})$ optimal gewählt werden, mit der Veränderung der Selbstenergie $\underline{\Sigma}(z)$ im Iterationszyklus werden sie aber nicht weiter optimiert. In dieser Arbeit werden auch sehr große Mehrorbitalsysteme behandelt, sodass in (3.7) und (3.8) Matrixfunktionen mit vielen Einträgen eingehen (siehe Abschnitt 4), bei denen für jedes abgetastete Paar z und \underline{k} eine Inversion durchgeführt werden muss. Diese Prozedur ist aber aufwändig, sodass einerseits die Zahl der notwendigen Frequenzen $z = \omega \pm i\delta$ optimiert wird und andererseits aber auch die Zahl der notwendigen Stützstellen im \underline{k} -Raum. Die Zahl der Stützstellen im \underline{k} -Raum lässt sich im Vorhinein der DMFT-Prozedur optimieren. In Rahmen dieser Arbeit wird ein Verfahren entwickelt, welches die Symmetrien automatisch identifiziert und darüber hinaus die Stützstellen weiter optimiert, sodass man mit einer deutlich kleineren Menge an Stützstellen (als vor der Optimierung) noch immer eine adäquate Beschreibung der Dispersion erhält. Dieses Verfahren wird nachfolgend beschrieben und abgeleitet.

Die freie \underline{k} -summierte Einteilchen-Green-Funktion lautet in diskretisierter Näherung

$$\underline{G}_0(z) = \frac{1}{V_B} \sum_{\underline{k}} ((z + \mu) \underline{1} - \underline{\epsilon}(\underline{k}))^{-1} \quad (\text{A.42})$$

$$\approx \sum_{i=1}^N w_i \left((z + \mu) \underline{1} - \underline{\epsilon}_i \right)^{-1} \quad (\text{A.43})$$

mit $\underline{\epsilon}(\underline{k}_i) \equiv \underline{\epsilon}_i$ und der Zahl der Summanden N . Definiert man mit

$$A_{ij} = \left\| \underline{\epsilon}_i - \underline{\epsilon}_j \right\| \quad (\text{A.44})$$

einen Abstand zwischen zwei Matrizen, wobei es gleichgültig ist, welche Norm $\|\cdot\|$ verwendet wird, so gilt

$$A_{ij} = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \underline{\epsilon}_i = \underline{\epsilon}_j \quad . \quad (\text{A.45})$$

Verfährt man nach dieser Maßgabe und fasst die entsprechenden Summanden zusammen, so erfasst man algorithmisch die relevanten Symmetrien und vereinfacht die Summation (A.43).

Im Fall einer LDA+DMFT-Rechnung (siehe Abschnitt 4.2) ergeben sich die einzelnen Matrizen $\underline{\epsilon}_i$ aus einer Dichtefunktionalrechnung, welche die Kristallsymmetrien numerisch nicht perfekt auflöst⁸, d.h. zwischen zwei Matrizen, welche der Symmetrie gemäß äquivalent sein müssten, findet sich ein Abstand $A_{ij} > 0$. Es liegt dann nahe, das Gleichheitskriterium aufzuweichen und nur

$$A_{ij} < \delta \quad \text{mit } \delta \ll 1 \quad (\text{A.46})$$

zu fordern. Für die Indexmenge $\{i\}$ für die Matrizen $\{\underline{\epsilon}_i\}$, deren Abstand $A_{ij} < \delta$ genügt, muss nun ein Repräsentant $\tilde{\underline{\epsilon}}_{\{i\}}$ mit dem Gewicht $\tilde{w}_{\{i\}}$ bestimmt werden, der an ihrer statt in die Summe (A.43) eingeht. In diesem Fall wird der gewichtete Mittelwert

$$\tilde{\underline{\epsilon}}_{\{i\}} = \sum_{\{i\}} w_i \underline{\epsilon}_i \quad , \quad (\text{A.47})$$

$$\tilde{w}_{\{i\}} = \sum_{\{i\}} w_i \quad (\text{A.48})$$

gewählt, weil er konvex ist und im Fall gleicher Gewichte den Mittelwert erhält. In jedem Schritt des iterativen Verfahrens werden zwei Matrizen zu einer repräsentativen Matrix zusammengefasst, sodass sich mit jedem Schritt die Zahl der Summanden für die Summe (A.43) um eins reduziert.

Am Ende steht der Menge $\{(w_i, \underline{\epsilon}_i)\}$ (mit N Elementen) die neue Menge $\{(\tilde{w}_i, \tilde{\underline{\epsilon}}_{\{i\}})\}$ (mit N' Elementen und $N' < N$) gegenüber. Man hat also die Menge $\{(w_i, \underline{\epsilon}_i)\}$ in N' Äquivalenzklassen zerlegt mit Repräsentanten jeder einzelnen Klasse $(\tilde{w}_i, \tilde{\underline{\epsilon}}_{\{i\}})$. Als Abbruchkriterium kann nun einerseits der maximale Fehler δ gewählt werden oder die maximale Anzahl von Summanden N' .

⁸Das Problem ist im Zusammenhang mit der später beschriebenen LMTO/NMTO-Methode aufgetreten.

Die Frage ist nun, inwiefern die Summe (A.43) durch ein solches Vorgehen überhaupt sinnvoll genähert werden kann

$$\sum_{i=1}^N w_i \left((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\epsilon}}_i \right)^{-1} \stackrel{\text{gute Näherung?}}{\approx} \sum_{i=1}^{N'} \tilde{w}_i \left((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\tilde{\epsilon}}}_i \right)^{-1} \quad (\text{A.49})$$

und ob nicht schon für beliebig kleine δ ein beliebig großer Fehler entstehen kann. Der Ausdruck $\left((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\epsilon}}_i \right)^{-1}$ ist durch seine Pole bestimmt, welche wiederum den Eigenwerten der Matrix $\underline{\underline{\epsilon}}_i$ zugeordnet werden können. Aufgrund der Konstruktion (A.47) ist klar, dass jede Matrix einer Äquivalenzklasse innerhalb eines Kreises mit dem Radius δ um ihren Repräsentanten liegt

$$\left\| \underline{\underline{\tilde{\epsilon}}}_{\{i\}} - \underline{\underline{\epsilon}}_j \right\| < \delta \quad \text{mit } j \in \{i\} \quad . \quad (\text{A.50})$$

Auf Grund von Ostrowskis Theorem über die Stetigkeit der Eigenwerte [Wilkinson65] gilt für den Eigenwert λ_k der Matrix $\underline{\underline{\tilde{\epsilon}}}_{\{i\}}$ und den Eigenwert λ'_k der Matrix $\underline{\underline{\epsilon}}_j = \underline{\underline{\tilde{\epsilon}}}_{\{i\}} + \delta \underline{\underline{M}}_j$

$$|\lambda_k - \lambda'_k| < (n + 2)(n^2 \delta)^{1/n} \quad (\text{A.51})$$

mit der Zeilenzahl n , dass sich ihr Abstand stetig mit dem Fehler δ entwickelt. Damit führt die gewählte Mittelung (A.47) zu einer stetigen Modifikation der Polstruktur der Summanden in (A.43) und

$$\left| \sum_{i=1}^N w_i \left((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\epsilon}}_i \right)^{-1} - \sum_{i=1}^{N'} \tilde{w}_i \left((z + \mu) \underline{\underline{1}} - \underline{\underline{\tilde{\epsilon}}}_i \right)^{-1} \right| < \mathcal{O}(\delta^{1/n}) \quad (\text{A.52})$$

für kleine δ . Für große n wird sich die Polstruktur deutlicher ändern, sodass das Verfahren schlechter funktioniert. In Abb. A.4 zeigt sich, dass es für das betrachtete System gut funktioniert.

An dieser Stelle soll noch einmal darauf hingewiesen werden, dass ein solches Verfahren nur sinnvoll ist, wenn man in Rahmen eines DMFT-Zyklus die gleiche Summation mehrfach (d.h. in jeder Iteration) ausführen muss. In diesem Fall ist es problemlos möglich, die Zahl der Stützstellen im Vorhinein zu optimieren. Es ist auch klar, dass mit einer von Null verschiedenen Selbstenergie $\Sigma_{\gamma\delta}(z) \neq 0$ die Stützstellenwahl suboptimal wird. Dann verschiebt die Selbstenergie die Pole der freien Green-Funktion und die Abstände A_{ij} verändern sich. Aber dieses Problem findet sich gleichermaßen bei der numerischen Auswertung von Gl. (A.39) mit einer diskretisierten, freien Zustandsdichte $\rho_0(\epsilon)$ für den Quasi-Einbandfall.

Der Vorteil des Konzepts besteht darin, dass die Stützstellenauswahl nicht auf Basis der Strukturen im $\underline{\underline{k}}$ -Raum getroffen wird, sondern auf Grund der Ähnlichkeiten⁹ der Dispersion $\underline{\underline{\epsilon}}(\underline{\underline{k}})$. Somit werden die Strukturen im Wertebereich und nicht im Definitionsbereich beachtet. Man ist damit in der Lage, die Äquivalenzflächen der Dispersion zusammenzufassen. Der Unterschied in der Herangehensweise wird in Abbildung A.3 dargestellt. Hier findet sich die Abbildung einer analytisch bekannten (oder auch sehr fein diskretisierten)

⁹Das beinhaltet nicht nur die Symmetrien, sondern darüber hinaus auch Bereiche der Brillouin-Zone, bei denen die Dispersion wertemäßig ähnlich ist.

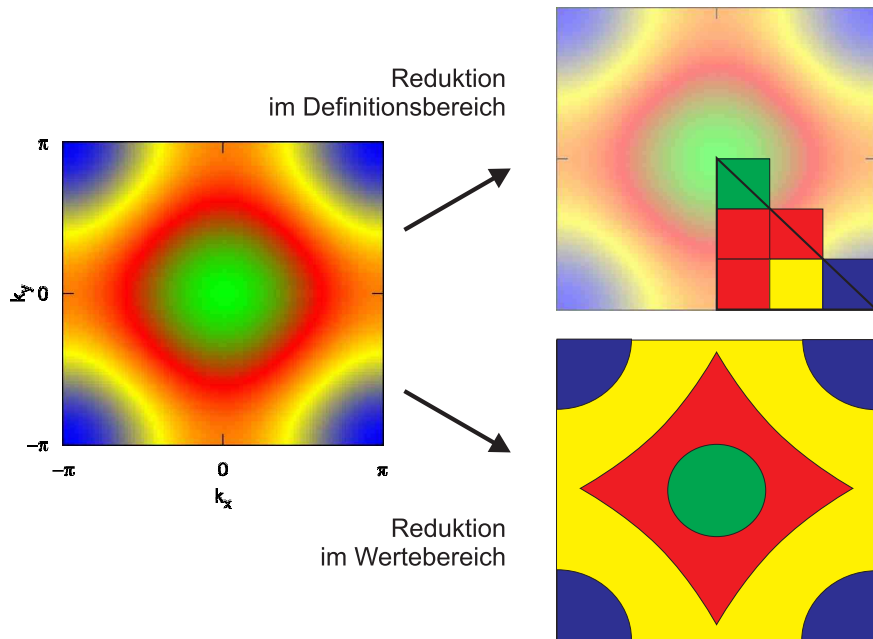


Abbildung A.3: Darstellung des Diskretisierungskonzepts. Links ist eine analytisch bekannte Dispersion dargestellt, deren Wert durch eine Farbkodierung kenntlich gemacht wird. Rechts findet sich die Diskretisierung auf nur vier Punkte (verschiedene Farben). Die Diskretisierung im Definitionsbereich führt, trotz Beachtung der Symmetrien, zu einer vergleichbar schlechteren Darstellung der Funktion. Im unteren Bild ist die Reduktion im Hinblick auf den Wertebereich durchgeführt, wie es durch das Verfahren geschieht, ohne die Symmetrien explizit einzuführen. Diese werden aber implizit erfasst und führen zu einer besseren Beschreibung des Ausgangsproblems im Vergleich zur üblichen Diskretisierungsform.

Dispersion auf der linken Seite. Der Wert ist in der Farbabstufung kenntlich gemacht. Die Diskretisierung (oder Reduktion) erfasst das Problem deutlich schlechter, falls man bei herkömmlichem Vorgehen Stützstellen im Definitionsbereich sucht und findet, als wenn man es für die Dispersion im Wertebereich tut. In herkömmlichen Anwendungen spielt das selten eine Rolle, weil die Integration im DMFT-Zyklus sehr wenig Rechenzeit kostet und man in Gl. (A.39) die Diskretisierung beliebig fein wählen kann, ohne einen nennenswerten zeitlichen Mehraufwand hervorzurufen. Für allgemeine Mehrbandsysteme ist dieser Aufwand aber relevant, sodass das beschriebene Reduktionsverfahren die Effizienz maßgeblich steigert.

In Abbildung A.4 sind die integrierten Einteilchenspektren (und im Inset unten rechts die Einteilchenspektren) für verschiedene Reduktionen für $N' = 2048, 1024, 512, 384$ dargestellt. Ganz offensichtlich funktioniert das Verfahren sehr gut und liefert auch mit einer deutlich kleineren Punktezahl eine gute Näherung. Im dargestellten Problem wird aus einer NMTO-Rechnung der Hamiltonian extrahiert, der dort für eine vorher festgelegte Punktezahl $N = 4096$ im \underline{k} -Raum bestimmt wird. Eine derartig große Punktezahl wird in der Literatur als angemessen betrachtet, um Spektren und andere Einteilchengrößen hochgenau zu beschreiben.

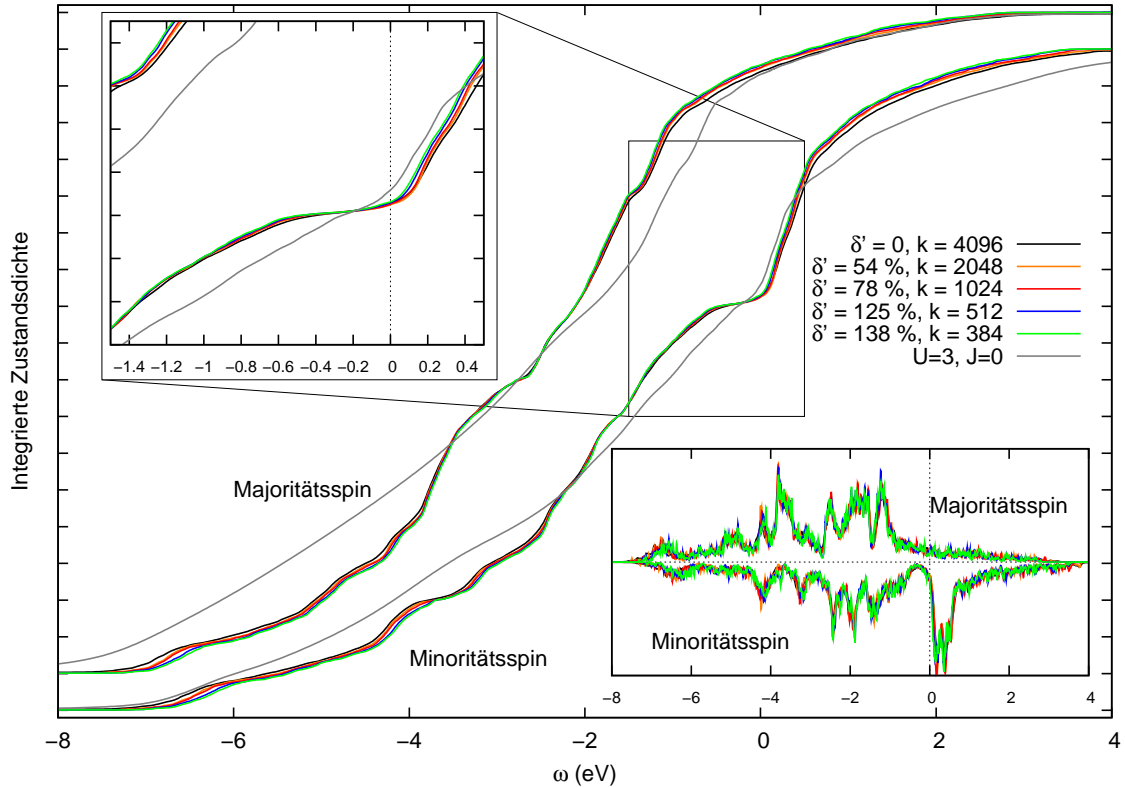


Abbildung A.4: Integrierte Einteilchenspektren für verschiedene Reduktionen der Stützstellenzahl im Vergleich mit dem Hamiltonian aus der NMTO-Rechnung. Das Inset links oben zeigt eine Vergrößerung für den Bereich um die Fermi-Kante herum. Im Inset rechts unten sind die Einteilchenspektren zu sehen, welche für einen Vergleich etwas unübersichtlich sind. Für eine LDA+DMFT-Rechnung, für welche das Konzept erarbeitet wurde, führen Lebensdauer-effekte zu typischen Verbreiterungen der Einteilchenanregungen und damit zu einem Ausschmieren der Spektren. Insofern stellt das Inset die ungünstige Situation dar, die für DMFT-Resultate untypisch ist. Zu beachten ist, dass der numerische Aufwand bei der Summation des k -Raums linear mit der Zahl der Stützstellen skaliert und sich durch das Verfahren dieser Aufwand problemlos um eine Größenordnung verringern lässt. Für den betrachteten Fall reduziert sich die aufgewendete Rechenzeit von etwa 300 Prozessorminuten (für $N = 4096$) auf etwa 30 Prozessorminuten (für $N = 384$) ohne deutliche Qualitätseinbußen. Zum Vergleich dazu ist in Grau das Ergebnis für ein wechselwirkendes System dargestellt. Offensichtlich ist der Einfluss der Optimierung unerheblich.

Zu beachten ist, dass der numerische Aufwand bei der Summation des k -Raums linear mit der Zahl der Stützstellen skaliert und sich durch das Verfahren dieser Aufwand problemlos um eine Größenordnung verringern lässt. Der in der Abbildung A.4 angegebene Fehler δ' wird mit

$$\delta' - 1 \equiv \frac{\max_{i,j} \left\| \underline{\epsilon}_j - \tilde{\underline{\epsilon}}_j \right\|}{\max_{i,j} \left\| \underline{\epsilon}_j - \underline{\epsilon}_j \right\|} \quad (\text{A.53})$$

angegeben und definiert eine obere Grenze für die Zunahme des maximalen Abstands A_{ij} im Vergleich zum abgeschätzten Fehler, der sich durch die Diskretisierung in der NMTO-Rechnung ergibt. Für den betrachteten Fall reduziert sich die aufgewendete Rechenzeit von etwa 300 Prozessorminuten (für $N = 4096$) auf etwa 30 Prozessorminuten (für $N' = 384$). Für eine DMFT-Rechnung mit typischer Wechselwirkung reduziert sich der Anteil der Rechenzeit für die Summation von 64% auf nur noch 15%.

Gleichermaßen führt die Optimierung zu keinen nennenswerten Qualitätseinbußen. In Abb. A.4 ist zum Vergleich die integrierte Zustandsdichte für ein System mit Wechselwirkung dargestellt (graue Linien). Der Einfluss der Optimierung für die Summation ist gegenüber den typischen Effekten, die sich auf Grund der Wechselwirkungen ergeben, zu vernachlässigen.

A.5 Analytische Fortsetzung mit der Maximum-Entropie-Methode (MEM)

In der Festkörpertheorie werden viele Probleme unter Verwendung von Green-Funktionen (A.15) gelöst (siehe dazu Abschnitt A.1). Für Quanten-Monte-Carlo (QMC) Methoden lassen sich keine Einteilchen-Green-Funktionen an der reellen Frequenzachse bestimmen. Aber genau dort ist das Verhalten der Einteilchen-Green-Funktion von besonderem Interesse, weil sich die Spektralfunktion (A.17)

$$\rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega) = -\frac{1}{\pi} G_{\hat{A}\hat{B}}(\omega + i0^+) \quad (\text{A.54})$$

direkt mit Experimenten vergleichen lässt. In Abschnitt 4.3.5 werden die Spektren für das Voll-Heusler-Material Co_2FeSi mit experimentellen Resultaten für Photoemission und Röntgenspektroskopie (*X ray absorption spectroscopy*, XAS und *X ray magnetic circular dichroism*, XMCD) verglichen. Darüber hinaus lässt an Hand der Spektralfunktion die metallische bzw. isolierende Phase identifizieren (siehe Abschnitt 3.3).

Die analytische Fortsetzung der Green-Funktion ist sehr einfach, wenn man ihre analytische Struktur explizit kennt. Dann lässt sich die Fortsetzung durch die Ersetzung $i\omega_n \rightarrow z \rightarrow \omega + i0^+$ direkt vornehmen, so geschehen bei der Formulierung der in der Arbeit verwendeten Diagramme (siehe Anhang A.3).

Sofern die Green-Funktion an der reellen Frequenzachse numerisch bekannt ist, ergibt sich sehr einfach aus der Spektraldarstellung (A.16) die analytische Fortsetzung in die komplexe Ebene. Mit Padé-Approximanten lassen sich numerische Daten mit Hilfe expliziter analytischer Darstellungen auch in der komplexen Ebene wiedergeben [Baker75]. So entwickelt beispielsweise Thieles reziproke Differenzenmethode Datenpunkte über verschiedene Rekursionsformeln in eine explizite Kettenbruchdarstellung.

Allgemein ist das Problem der analytischen Fortsetzung von imaginären zu reellen Frequenzen aber schlecht konditioniert, sodass sich kleine Fehler in den Ausgangsdaten dramatisch auf das Ergebnis auswirken können und die Padé-Approximation kein sonderlich geeignetes Verfahren darstellt.

Für Daten, die sich aus einer Quanten-Monte-Carlo (QMC)-Simulation ergeben, ist das auf Grund der statistischen Fehler gegeben, sodass eine analytische Fortsetzung mit Hilfe einer Padé-Approximation nicht immer geeignet ist.

Stochastische Optimierung stellt eine weitere Möglichkeit zur analytischen Fortsetzung dar und kann die nachfolgend beschriebene Maximum-Entropie-Methode (MEM) in der Qualität des Ergebnisses übertreffen [Fehske07]. Dafür sind aber kleine statistische Fehler nötig, und der Zeitaufwand liegt zwei Größenordnungen über der für die MEM.

Die MEM ist eine sehr allgemeine Methode zur Rekonstruktion von Wahrscheinlichkeitsdichten aller Art für unvollständige und verrauschte Ausgangsdaten. Sie wird sehr erfolgreich angewandt bei der Datenrekonstruktion, wie sie in der Datenverarbeitung, Bildverarbeitung oder Computertomographie (3D-Rekonstruktion) gebraucht wird.

Als Standard-Verfahren hat sich die nachfolgend beschriebene MEM durchgesetzt. Eine gute Ableitung und Darstellung findet sich in [Jarrell96].

Aus der QMC-Simulation resultiert die in der Zeit aufgelöste Imaginärzeit-Green-Funktion $G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\tau)$ (siehe auch Gl. A.13), welche über

$$G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega K_{\beta}(\omega, \tau) \rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega) \quad , \quad (\text{A.55})$$

$$K_{\beta}(\omega, \tau) := \frac{\exp(-\tau\omega)}{1 + \exp(-\beta\omega)} \quad (\text{A.56})$$

mit der Spektralfunktion in Zusammenhang steht.

An dieser Darstellung wird deutlich, warum die analytische Fortsetzung schlecht konditioniert ist. Die Kernel-Funktion (A.56) wird für große Frequenzen ω exponentiell klein, sodass sich Merkmale der Spektralfunktion nur wenig auf die Green-Funktion auswirken. Umgekehrt können bereits kleine Fehler in der Green-Funktion einen sehr großen Fehler in der Spektralfunktion verursachen. Zu beachten ist hierbei, dass sich in einer diskretisierten Darstellung von $G_{\hat{A}\hat{B}}^M(\tau)$ auch ein Interpolationsfehler ergibt, der sich zwar durch verbesserte Interpolation reduzieren lässt, aber grundsätzlich unvermeidlich ist. Für niedrige Frequenzen ist das unproblematisch, hier lässt sich das Spektrum $\rho_{\hat{A}\hat{B}}(\omega)$ sehr genau bestimmen.

Für adjungierte Operatoren $\hat{B} = \hat{A}^{\dagger}$ ist die Spektralfunktion normiert und positiv definit, sodass man sie als Wahrscheinlichkeitsfunktion interpretieren kann. Nimmt man für die numerischen diskreten Daten $\bar{G}_{\hat{A}\hat{A}^{\dagger}} \equiv \bar{G}$ zunächst an, dass systematische Fehler und Autokorrelation vernachlässigbar sind, so sind die verbleibenden Fehler statistischer Natur, und man kann annehmen, dass die Fehler gauss-verteilt sind

$$P(\bar{G}|\rho) \propto e^{-\frac{\chi^2}{2}} \quad . \quad (\text{A.57})$$

Der Abstand χ^2 misst die quadratische Abweichung der mit dem Spektrum $\rho_{\hat{A}\hat{A}^{\dagger}}(\omega) \equiv \rho$ berechneten Green-Funktion (A.55) von der gemessenen Green-Funktion \bar{G} . Die *likelihood*-Funktion $P(\bar{G}|\rho)$ ist offenbar nicht geeignet, das wahrscheinlichste Spektrum zu finden,

¹⁰Für bosonische Green-Funktionen, wie die Zweiteilchen-Green-Funktionen (bspw. Spin-Spin- oder Strom-Strom-Korrelationsfunktionen), lautet der Kernel $K_{\beta}(\omega, \tau) := \frac{\exp(-\tau\omega)}{1 - \exp(-\beta\omega)}$ [Jarrell96].

dessen Green-Funktion (A.55) mit der gemessenen Green-Funktion \bar{G} vereinbar ist. Mit Hilfe des Bayes'schen Theorems

$$P(\rho|\bar{G})P(\bar{G}) = P(\bar{G}|\rho)P(\rho) \quad (\text{A.58})$$

wird diese mit der *a posteriori*-Wahrscheinlichkeit $P(\rho|\bar{G})$ verknüpft. Weil nun \bar{G} im Rahmen einer Suche nach dem optimalen Spektrum ρ konstant ist, ist $P(\bar{G})$ konstant und $P(\rho|\bar{G})$ ergibt sich allein aus der gemessenen Wahrscheinlichkeit $P(\bar{G}|\rho)$ und der *a priori*-Wahrscheinlichkeit $P(\rho)$ des Spektrums ρ . Diese wird durch ein Standardmodell $m(\omega)$ maximiert und lässt sich als Shannon-Jaynes Entropiefunktional $S[\rho, m]$ des Spektrums formulieren

$$P(\rho) = e^{\alpha S[\rho, m]} \quad (\text{A.59})$$

$$\text{mit } S[\rho, m] = \int d\omega (\rho(\omega) - m(\omega) - \rho(\omega) \ln(\rho(\omega)/m(\omega))) \quad (\text{A.60})$$

mit dem Lagrange-Parameter α .

Zusammenfassend ergibt sich die *a posteriori*-Wahrscheinlichkeit

$$P(\rho|\bar{G}) = e^{\alpha S[\rho, m] - \frac{1}{2} \chi^2[\bar{G}, \rho]}, \quad (\text{A.61})$$

die für die numerische Anwendung maximiert werden muss. Mit Hilfe des Parameters α lässt sich die Nähe der Lösung zum Standardmodell einstellen. Damit könne gewisse Eigenschaften der Lösung wie deren Glattheit verstärkt werden.

Die in dieser Arbeit mit der MEM bestimmten Spektren werden mit einem Programm auf Basis des in [Sandvik95] vorgestellten Schemas erhalten, welches annimmt, dass die in \bar{G} eingehenden Daten unkorreliert sind.

Sind aber die Operatoren \hat{A} und \hat{B} nicht adjungiert, so kann die Spektralfunktion auch ein wechselndes Vorzeichen haben und ihre Interpretation als Wahrscheinlichkeitsverteilung ist ungültig. Folglich lassen sich mit der MEM keine nicht-diagonalen Spektralfunktionen, wie sie in Abbildung 4.8 für einen Realfrequenzformalismus dargestellt sind, rekonstruieren.

A.6 Vergleich verschiedener DMFT-Methoden

In diesem Abschnitt wird das Einband-Hubbard-Modell mit verschiedenen Störstellenlösern zum Vergleich gerechnet. Hierbei beschränkt sich die Betrachtung auf den paramagnetischen, halbgefüllten Fall ($n_\sigma = 0.5$), um den Mott-Übergang im Einbandfall auflösen zu können. Die Ergebnisse werden für eine Bethe-Gitter mit Hybridisierungsamplitude $t = 0.5$ und folglich einer Bandbreite $W = 2$ bei einer Temperaturen $T = 1/40$ (NRG bei etwas höherer Temperatur $T = 1/36$) für verschiedene Hubbard-Wechselwirkungen U bestimmt. Verglichen werden hier iterierte Störungstheorie 2. Ordnung (IPT) (siehe Abschnitt 2.1.1), Hirsch-Fye-Quanten-Monte-Carlo (HF-QMC) (siehe Abschnitt 2.1.2), *Extended Non-Crossing Approximation*¹¹ (ENCA) [Pruschke88, Keiter90] und *Numerical Renormalization Group* [Wilson75].

¹¹Die ENCA berücksichtigt gegenüber der einfachen NCA(SNCA) [Grew83, Bickers87] zusätzliche Vertexkorrekturen, welche unter anderem die Auflösung der Kondoskala verbessern.

Für den einfachen Fall einer s -Schale bei Halbfüllung reduziert sich der in Abschnitt 2.1.1 diskutierte Schwachkopplungsansatz auf die in der Literatur bekannte IPT. Um Spektralfunktionen zu erhalten, muss für HF-QMC zusätzlich eine analytische Fortsetzung durchgeführt werden. Für die NRG müssen die Eigenwertspektren künstlich verbreitert werden. IPT und ENCA lösen die Spektralfunktionen direkt auf. Was die benötigte Rechenzeit der Methoden angeht, unterscheiden sich die Methoden im Aufwand erheblich: Die Rechenzeit für die IPT liegt im niedrigen Minutenbereich für eine Rechnung, für die ENCA müssen wenige Stunden und für eine genaue QMC-Rechnung schon Rechenzeiten in der Größenordnung von Tagen auf einem Einzelprozessor veranschlagt werden. Im Detail hängt die Rechenzeit vom Konvergenzverhalten innerhalb der DMFT-Iterationen ab, was wiederum von den eingestellten Parametern abhängt. Der Aufwand der diagrammatischen Methoden IPT und ENCA ist nahezu temperaturunabhängig, während der Aufwand der HF-QMC-Methode mit $1/T^3$ eher ungünstig für Tieftemperaturmessungen skaliert.

Die Rechnungen mit der Störungstheorie werden mit dem Mehrband-Code des Autors durchgeführt, der auch bei dem Störstellenmodell (Abschnitt 2.2), den LDA+DMFT-Rechnungen (Abschnitt 4) und der magneto-optischen Falle (Abschnitt 3.4) eingesetzt wird. Der in der Arbeitsgruppe gebräuchliche HF-QMC-Code wird bei der Auswertung des Zweibandmodells (Abschnitt 3.3) verwendet und ist seit 1992 in stetiger Fortentwicklung. Hier werden, um den systematischen Trotter-Fehler zu verdeutlichen, jeweils zwei Rechnungen mit $\Delta\tau = 0.30$ und $\Delta\tau = 0.40$ durchgeführt. Die ENCA-Rechnungen werden durch den Autor mit einem Programmcode von Dr. Schmitt [Schmitt09, Schmitt08, Grewe08] durchgeführt, die NRG-Ergebnisse werden mit einem Programm von Prof. Anders [Anders09] erzeugt und von Dr. Schmitt [Schmitt09] zur Verfügung gestellt.

In Abbildung A.5 sind Spektralfunktionen des Einband-Hubbard-Modells für verschiedene Wechselwirkungen U dargestellt. Systematisch ist das Resultat in IPT rot, HF-QMC orange/blau, ENCA grün und NRG schwarz dargestellt, für die Temperatur $T = 1/40$ (für die NRG bei $T = 1/36$).

Für sehr schwache Wechselwirkungen $U = 0.50$ (Abb. A.5a) liegen die Ergebnisse fast aller Methoden gut übereinander. Die ENCA-Lösung, im Grenzfall unendlicher Wechselwirkung exakt, weicht hier deutlich ab. Für die HF-QMC-Spektren ist eine Vertiefung der Spektren an der Fermi-Kante zu beobachten (Abb. A.5a, Inset), die auch in A.5b erkennbar ist, für die HF-QMC-Lösung mit $\Delta\tau = 0.4$, für größere Wechselwirkungen aber nicht. Es ist hier zu vermuten, dass es sich um ein Artefakt der analytischen Fortsetzung handelt. Für etwas größere Wechselwirkung $U = 1.50$ (Abb. A.5b) liegen IPT- und HF-QMC-Daten nahezu perfekt übereinander. HF-QMC betont mit abnehmendem $\Delta\tau$ die Minima zwischen Kondo-Resonanz und Hubbard-Bändern etwas deutlicher. Bei der ENCA-Lösung ist die Breite der Kondo-Resonanz kleiner, das dort fehlende spektrale Gewicht findet sich in den Hubbard-Bändern wieder. Für $U = 0.50$ und $U = 1.50$ erfüllt die Selbstenergie in der ENCA-Lösung auch nicht mehr die korrekten analytischen Eigenschaften, dort werden Korrekturen im Bereich der Fermi-Kante vorgenommen¹².

Für eine Wechselwirkung $U = 2.00$, knapp unterhalb der kritischen Wechselwirkung (Abb. A.5c), ergeben alle Methoden eine metallische Lösung mit deutlicher Trennung der Hubbard-Bänder von der Vielteilchenresonanz in der Mitte. Der Trotter-Fehler ist auch hier kaum identifizierbar, die HF-QMC-Spektren liegen innerhalb der Linienbreite übereinander. Im Vergleich dazu löst auch die IPT den Bereich um die Fermi-Kante herum

¹²Die schwache Wechselwirkung führt im Rahmen von DMFT(ENCA)-Lösungen zu negativen Spektralanteilen in der Zustandsdichte. Diese müssen korrigiert werden.

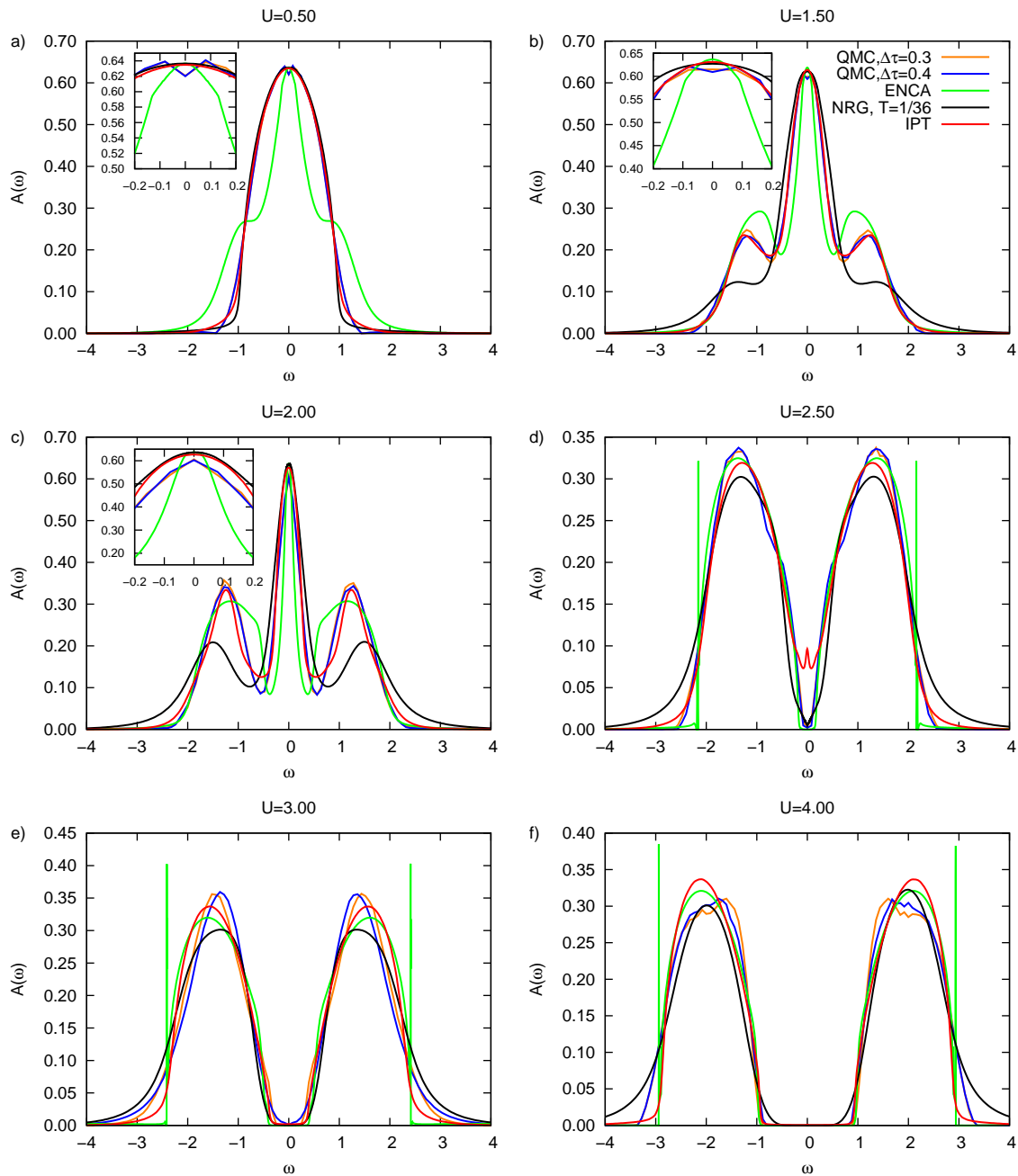


Abbildung A.5: Spektralfunktionen eines Einband-Hubbard-Modells in DMFT Näherung mit unterschiedlicher Behandlung des effektiven Gitterplatzes im Störstellenproblem. Die Lösungen der verschiedenen Störstellenlöser sind farbko-diert, so ist das Ergebnis mit Schwachkopplungsstörungstheorie (IPT) rot gefärbt, jenes für ENCA grün, NRG schwarz und das QMC-Ergebnis in Orange ($\Delta\tau = 0.30$) und in Blau ($\Delta\tau = 0.40$) dargestellt. Die Legende ist für alle Abbildungen gleich, wird aber aus Platzgründen nur in (b) abgebildet. Die Temperatur ist für alle Lösungen $T = 1/40$, bis auf die NRG-Lösungen, dort ist $T = 1/36$.

deckungsgleich auf, die Lücken zwischen Bändern und Resonanz sind weniger tief. ENCA- und NRG-Lösung zeigen die schon in Abb. A.5b augenfälligen Unterschiede: Die ENCA-Lösung hat weniger Gewicht an der Fermi-Kante, welches sich in den Hubbard-Bändern wiederfindet, bei der NRG-Lösung verflachen die Hubbard-Bänder in lange Ausläufer bei hohen Energien.

Bei einer Wechselwirkung $U = 2.50$ (Abb. A.5d), knapp oberhalb der kritischen Wechselwirkung für den Mott-Übergang, sind ENCA-Lösung, HF-QMC-Lösung übereinstimmend in einer isolierenden Phase. Die IPT-Lösung zeigt eine leicht metallische Phase, der Übergang lässt sich aber hier schon für etwas größeres U erahnen. Für die NRG-Lösung lässt sich die Phase nicht eindeutig identifizieren, es ist keine deutliche Lücke zu sehen, das Spektralgewicht an der Fermi-Kante ist aber sehr klein. In der ENCA-Lösung zeigen sich deutliche Artefakte an den Außenseiten der Hubbard-Bänder, deren Ursache unklar ist. Schwierigkeiten bei der numerischen Behandlung können aber nicht ausgeschlossen werden. Bei den HF-QMC-Lösungen sind in den Spektren kleine Zacken zu sehen, die auf die analytische Fortsetzung zurückzuführen sind. Auch hier ist der Trotter-Fehler vernachlässigbar. Die Übereinstimmung bei den Hubbard-Bändern ist gut.

In der klar isolierenden Phase $U = 3.00$ (Abb. A.5e) sind alle Lösungen erwartungsgemäß isolierend. Beim Vergleich der zwei HF-QMC-Lösungen wird ein Trotter-Fehler deutlich, die zwei Lösungen unterscheiden sich. Für die Lösung bei $\Delta\tau = 0.40$ finden sich an den inneren Flanken der Hubbard-Bänder kleine Stufen, die wahrscheinlich ein Artefakt der analytischen Fortsetzung sind. Auch sind klare Unterschiede für große Frequenzen sichtbar; die Ausläufer der Hubbard-Bänder sind für größeres $\Delta\tau$ länger. Das ENCA-Resultat zeigt auch hier unerklärte Peaks an den äußeren Flanken der Hubbard-Bänder. Die NRG löst eine Lücke auf, die etwas größer als die der HF-QMC-Rechnung ist, aber etwas kleiner als die der ENCA-Lösung ist. Sie stimmt aber hier mit der IPT-Lösung überein. Die IPT-Lösung zeigt eine Lücke, die sehr nahe an der Lückenbreite der HF-QMC-Lösung ist, hat aber viel schwächer akzentuierte Ausläufer der Hubbard-Bänder für große Frequenzen.

Für sehr große U (Abb. A.5f) sind beide Hubbard-Bänder durch eine Lücke getrennt, deren Breite mit HF-QMC-, IPT- und ENCA-Lösung übereinstimmt. Die Lückenbreite ist für die NRG-Lösung kleiner; die Ausläufer sind bei großen Frequenzen am deutlichsten ausgeprägt. Für HF-QMC zeigen sich an den Flanken der inneren Hubbard-Bänder Abhängigkeiten vom Diskretisierungsparameter $\Delta\tau$; für große Frequenzen stimmen die Spektren für beide $\Delta\tau$ aber sehr gut überein. Beide HF-QMC-Lösungen zeigen kleine Zacken an den Gipfeln der Hubbard-Bänder, die auch hier auf die analytische Fortsetzung zurückzuführen sind. Die IPT-Lösung zeigt die höchsten Hubbard-Bänder und liefert (wie auch in Abbildung A.5e im Vergleich zu HF-QMC-Lösung) schwächer ausgeprägte Ausläufer bei hohen Frequenzen.

In diesem Abschnitt werden vier Methoden bei der Lösung des Störstellenproblems innerhalb eines einfachen Hubbard-Modells in DMFT-Näherung verglichen. Es zeigt sich, dass alle Methoden den Mott-Übergang qualitativ richtig auflösen und die Separation eines metallischen Bands in die zwei Hubbard-Bänder abbilden können. Für die ENCA-Lösung sind bei schwacher Wechselwirkung Defizite deutlich erkennbar. Es kommen bei stärkerer Wechselwirkung deutliche Artefakte an den äußeren Flanken der Hubbard-Bänder hinzu, deren Ursprung unklar ist. Die HF-QMC-Lösungen sind für kleine Wechselwirkungen U nur schwach vom systematischen Trotter-Fehler abhängig und stimmen gut überein. Für große U ergeben sich deutliche Unterschiede in den Lösungen verschiedener Diskretisierung $\Delta\tau$, im Besonderen unterscheiden sich die Flanken der Hubbard-Bänder. Mit

zunehmendem U nehmen die Zacken in den Spektren der HF-QMC-Lösung zu, was auf die analytische Fortsetzung zurückzuführen ist. Die IPT-Lösung stimmt für nahezu alle Wechselwirkungen gut mit der HF-QMC-Lösung überein und ist für kleine bis mittlere U (Abb. A.5a-c) nahezu deckungsgleich. Bekanntlich unterschätzt sie die kritische Wechselwirkung des Mott-Übergangs und zeigt bei $U = 2.50$ (Abb. A.5d) als einzige eine noch leicht metallische Phase. Für große Wechselwirkungen löst sie dann aber auch wieder die Lückenbreite in guter Übereinstimmung mit den anderen Methoden auf.

Literaturverzeichnis

- [Affleck08] Affleck, I., L. Borda, and H. Saleur, Phys. Rev. B **77** (2008) 180404. doi:10.1103/PhysRevB.77.180404.
- [Anders09] Anders, F., 2009, Private communication. TU Dortmund.
- [Andersen75] Andersen, O. K., Phys. Rev. B **12** (1975) 3060. doi:10.1103/PhysRevB.12.3060.
- [Andersen98] Andersen, O. K., T. Saha-Dasgupta, R. Tank, C. Arcangeli, O. Jepsen, and G. Krier, Electronic Structure and Physical Properties of Solids : Developing the MTO Formalism (Springer, 1998).
- [Andersen07] Andersen, B. M. and G. M. Bruun, Phys. Rev. A **76** (2007) 041602(R). doi:10.1103/PhysRevA.76.041602.
- [Anderson58] Anderson, P. W., Phys. Rev. **109** (1958) 1492. doi:10.1103/PhysRev.109.1492.
- [Anderson61] Anderson, P. W., Phys. Rev. **124** (1961) 41. doi:10.1103/PhysRev.124.41.
- [Anderson78] Anderson, P. W., Rev. Mod. Phys. **50** (1978) 191. doi:10.1103/RevModPhys.50.191.
- [Anisimov91] Anisimov, V. I., J. Zaanen, and O. K. Andersen, Phys. Rev. B **44** (1991) 943. doi:10.1103/PhysRevB.44.943.
- [Anisimov93] Anisimov, V. I., I. V. Solovyev, M. A. Korotin, M. T. Czyżyk, and G. A. Sawatzky, Phys. Rev. B **48** (1993) 16929. doi:10.1103/PhysRevB.48.16929.
- [Anisimov97] Anisimov, V. I., A. I. Poteryaev, M. A. Korotin, A. O. Anokhin, and G. Kotliar, J. Phys.: Condens. Matter **9** (1997) 7359. doi:10.1088/0953-8984/9/35/010.
- [Anisimov02] Anisimov, V., I. Nekrasov, D. Kondakov, T. Rice, and M. Sigrist, Eur. Phys. J. B **25** (2002) 191. doi:10.1140/epjb/e20020021.
- [Antonova06] Antonova, V. N., O. Jepsen, A. N. Yaresko, and A. P. Shpak, Journal of Applied Physics **100** (2006) 043711. doi:10.1063/1.2234809.
- [Arnow82] Arnow, D. M., M. H. Kalos, M. A. Lee, and K. E. Schmidt, J. Chem. Phys. **77** (1982) 5562. doi:10.1063/1.443762.

- [Baibich88] Baibich, M. N., J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. **61** (1988) 2472. doi:10.1103/PhysRevLett.61.2472.
- [Baker75] Baker, G. A., Essentials of Padé Approximants (Academic Press, 1975).
- [Bardeen57] Bardeen, J., L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Phys. Rev. **108** (1957) 1175. doi:10.1103/PhysRev.108.1175.
- [Barth72] von Barth, U. and L. Hedin, J. Phys. C: Solid State Phys. **5** (1972) 1629. doi:10.1088/0022-3719/5/13/012.
- [Baym62] Baym, G., Phys. Rev. **127** (1962) 1391. doi:10.1103/PhysRev.127.1391.
- [Bergmann08] Bergmann, G., Phys. Rev. B **77** (2008) 104401. doi:10.1103/PhysRevB.77.104401.
- [Berntsen91] Berntsen, J., T. O. Espelid, and A. Genz, ACM Transactions on Mathematical Software **17** (1991) 452 .
- [Bickers87] Bickers, N. E., Rev. Mod. Phys. **59** (1987) 845. doi:10.1103/RevModPhys.59.845.
- [Biermann05] Biermann, S., L. de' Medici, and A. Georges, Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 206401. doi:10.1103/PhysRevLett.95.206401.
- [Binasch89] Binasch, G., P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, Phys. Rev. B **39** (1989) 4828. doi:10.1103/PhysRevB.39.4828.
- [Biroli02] Biroli, G. and G. Kotliar, Phys. Rev. B **65** (2002) 155112. doi:10.1103/PhysRevB.65.155112.
- [Bloch29] Bloch, F., Zeitschrift für Physik **57** (1929) 545. doi:10.1007/BF01340281.
- [Blümer02] Blümer, N., 2002. Ph.D. thesis, University of Augsburg.
- [Blümer07a] Blümer, N., Phys. Rev. B **76** (2007) 205120. doi:10.1103/PhysRevB.76.205120.
- [Blümer07b] Blümer, N., C. Knecht, K. Požgajčić, and P. G. J. van Dongen, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **310** (2007) 922. doi:10.1016/j.jmmm.2006.10.525.
- [Blümer08a] Blümer, N., Computer Simulations in Statistical Physics (2008).
- [Blümer08b] Blümer, N., arXiv **0801.1222**.
- [Blümer09] Blümer, N., 2009. Private communication. Universität Mainz.
- [Bogoljubow56] Bogoljubow, N. N. and O. S. Parasiuk, Doklady Akademii Nauk SSSR **109** (1956) 717.

- [Bogoljubow59] Bogoljubow, N. N. and S. W. Tjablikow, Doklady Akademii Nauk SSSR **126** (1959) 53.
- [Borda07] Borda, L., Phys. Rev. B **75** (2007) 041307. doi:10.1103/PhysRevB.75.041307.
- [Brigham85] Brigham, E. O., FFT - Schnelle Fourier Transformation (R. Oldenbourg Verlag, München, 1985).
- [Broyden65] Broyden, C. G., Mathematics of Computation **19** (1965) 577. ISSN 00255718.
- [Bulla08] Bulla, R., T. A. Costi, and T. Pruschke, Reviews of Modern Physics **80** 395. doi:10.1103/RevModPhys.80.395.
- [Bünemann07] Bünemann, J., D. Rasch, and F. Gebhard, J. Phys.: Condens. Matter **19** (2007) 436206. doi:10.1088/0953-8984/19/43/436206.
- [Bünemann09] Bünemann, J., 2009. Habilitationsschrift, Philipps-Universität Marburg.
- [Ceperley80] Ceperley, D. M. and B. J. Alder, Phys. Rev. Lett. **45** (1980) 566. doi:10.1103/PhysRevLett.45.566.
- [Chandrasekharan99] Chandrasekharan, S. and U.-J. Wiese, Phys. Rev. Lett. **83** (1999) 3116. doi:10.1103/PhysRevLett.83.3116.
- [Chioncel03] Chioncel, L., M. I. Katsnelson, R. A. de Groot, and A. I. Lichtenstein, Phys. Rev. B **68** (2003) 144425. doi:10.1103/PhysRevB.68.144425.
- [Costi07] Costi, T. A. and A. Liebsch, Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 236404. doi:10.1103/PhysRevLett.99.236404.
- [Craig04] Craig, N. J., J. M. Taylor, E. A. Lester, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, Science **304** (2004) 565. doi:10.1126/science.1095452.
- [Dagotto94] Dagotto, E., Rev. Mod. Phys. **66** (1994) 763. doi:10.1103/RevModPhys.66.763.
- [de'Medici05] de'Medici, L., A. Georges, and S. Biermann, Phys. Rev. B (Condensed Matter and Materials Physics) **72** 205124. doi:10.1103/PhysRevB.72.205124.
- [Ebert91] Ebert, H. and G. Schütz, J. Appl. Phys. **69** (1991) 4627. doi:10.1063/1.348303.
- [Evertz03] Evertz, H. G., Advances in Physics **52** (2003) 1. doi:10.1080/0001873021000049195.
- [Eyert96] Eyert, V., J Comput Phys **124** (1996) 271. doi:10.1006/jcph.1996.0059.

- [Fabrizio05] Fabrizio, M. and E. Tosatti, Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 106403. doi:10.1103/PhysRevLett.94.106403.
- [Farhi01] Farhi, E., J. Goldstone, S. Gutmann, J. Lapan, A. Lundgren, and D. Preda, Science **292** (2001) 472. doi:10.1126/science.1057726.
- [Fazekas99] Fazekas, P., Lecture Notes on Electron Correlation and Magnetism (World Scientific, 1999).
- [Fecher06] Fecher, G. H., H. C. Kandpal, S. Wurmehl, C. Felser, and G. Schön-hense, J. Appl. Phys. **99** (2006) 08J106. doi:10.1063/1.2167629.
- [Fehske07] Fehske, H., R. Schneider, and A. Weiße (Editors), Computational Many-Particle Physics. Number 739 in Lecture Notes in Physics (Springer, Berlin, 2007).
- [Felser07] Felser, C., G. H. Fecher, and B. Balke, Angewandte Chemie **119** (2007) 680. doi:10.1002/ange.200601815.
- [Ferrero05] Ferrero, M., F. Becca, M. Fabrizio, and M. Capone, Phys. Rev. B **72** (2005) 205126. doi:10.1103/PhysRevB.72.205126.
- [Ferrero07] Ferrero, M., L. D. Leo, P. Lecheminant, and M. Fabrizio, Journal of Physics: Condensed Matter **19** (2007) 433201. doi:10.1088/0953-8984/19/43/433201.
- [Ferrero09] Ferrero, M., P. S. Cornaglia, L. D. Leo, O. Parcollet, G. Kotliar, and A. Georges, Phys. Rev. B (Condensed Matter and Materials Physics) **80** 064501. doi:10.1103/PhysRevB.80.064501.
- [Fetter71] Fetter, A. and J. Walecka, Quantum Theory of Many-Particle Systems (McGraw-Hill, 1971).
- [Fölling07] Fölling, S., S. Trotzky, P. Cheinet, M. Feld, R. Saers, A. Widera, T. Müller, and I. Bloch, Science **448** (2007) 1029. doi:10.1126/science.1150841.
- [Galanakis02a] Galanakis, I., J. Phys.: Condens. Matter **14** (2002) 6329. doi:10.1088/0953-8984/14/25/303.
- [Galanakis02b] Galanakis, I. and P. H. Dederichs, Phys. Rev. B **66** (2002) 174429. doi:10.1103/PhysRevB.66.174429.
- [Gasser01] Gasser, W., E. Heiner, and K. Elk, Greensche Funktionen in Festkörper- und Vielteilchenphysik (Wiley, 2001).
- [Gebhard95] Gebhard, F., Modelle und Methoden für den Mott-Übergang (Philipps-Universität Marburg, 1995).
- [Georges96] Georges, A., G. Kotliar, W. Krauth, and M. J. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. **68** (1996) 13. doi:10.1103/RevModPhys.68.13.

-
- [Gillessen09] Gillessen, M. and R. Dronskowski, *J. Comput. Chem.* **30** (2009) 1290. doi:10.1002/jcc.21152.
- [Gorelik09] Gorelik, E. V. and N. Blümer, *Phys. Rev. A* **80** (2009) 051602(R). doi:10.1103/PhysRevA.80.051602.
- [Gottwald08] Gottwald, T. and P. G. J. van Dongen, *The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems* **61** (2008) 277. doi:10.1140/epjb/e2008-00084-2.
- [Gottwald09] Gottwald, T. and P. G. J. van Dongen, *Phys. Rev. A* **80** (2009) 033603. doi:10.1103/PhysRevA.80.033603.
- [Greiner02] Greiner, M., O. Mandel, T. Esslinger, T. W. Hänsch, and I. Bloch, *Nature* **415** (2002) 39. doi:10.1038/415039a.
- [Grenzebach06] Grenzebach, C., F. B. Anders, and G. Czycholl, *Phys. Rev. B* **74** (2006) 195119. doi:10.1103/PhysRevB.74.195119.
- [Grewe83] Grewe, N., *Z. Phys. B* **53** (1983) 271.
- [Grewe96] Grewe, N., 1996. Eine lokale Theorie des Festkörpers. Technical report, TU Darmstadt.
- [Grewe08] Grewe, N., S. Schmitt, T. Jabben, and F. B. Anders, *J. Phys.: Condens. Matter* **20** (2008) 365217. doi:10.1088/0953-8984/20/36/365217.
- [Groot83] de Groot, R. A., F. M. Mueller, P. G. v. Engen, and K. H. J. Buschow, *Phys. Rev. Lett.* **50** (1983) 2024. doi:10.1103/PhysRevLett.50.2024.
- [Groot90] de Groot, F. M. F., J. C. Fuggle, B. T. Thole, and G. A. Sawatzky, *Phys. Rev. B* **42** (1990) 5459. doi:10.1103/PhysRevB.42.5459.
- [Gull07] Gull, E., P. Werner, A. Millis, and M. Troyer, *Phys. Rev. B* **76** (2007) 235123. doi:10.1103/PhysRevB.76.235123.
- [Gunnarsson76] Gunnarsson, O. and B. I. Lundqvist, *Phys. Rev. B* **13** (1976) 4274. doi:10.1103/PhysRevB.13.4274.
- [Gutzwiller63] Gutzwiller, M. C., *Phys. Rev. Lett.* **10** (1963) 159. doi:10.1103/PhysRevLett.10.159.
- [Hanssen86] Hanssen, K. E. H. M. and P. E. Mijnarends, *Phys. Rev. B* **34** (1986) 5009. doi:10.1103/PhysRevB.34.5009.
- [Harris67] Harris, A. B. and R. V. Lange, *Phys. Rev.* **157** (1967) 295. doi:10.1103/PhysRev.157.295.
- [Held99] Held, K., 1999. Ph.D. thesis, University of Augsburg.

- [Held01] Held, K., G. Keller, V. Eyert, D. Vollhardt, and V. I. Anisimov, Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 5345. doi:10.1103/PhysRevLett.86.5345.
- [Held06] Held, K., I. A. Nekrasov, G. Keller, V. Eyert, N. Blümer, A. K. McMahan, R. T. Scalettar, T. Pruschke, V. I. Anisimov, and D. Vollhardt, Phys. Stat. Sol. (b) **243** (2006) 2599. doi:10.1002/pssb.200642053.
- [Hettler98] Hettler, M. H., A. N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, T. Pruschke, and H. R. Krishnamurthy, Phys. Rev. B **58** (1998) R7475. doi:10.1103/PhysRevB.58.R7475.
- [Hettler00] Hettler, M. H., M. Mukherjee, M. Jarrell, and H. R. Krishnamurthy, Phys. Rev. B **61** (2000) 12739. doi:10.1103/PhysRevB.61.12739.
- [Heusler03] Heusler, F., Verh. Dtsch. Phys. Ges. **5** (1903) 219.
- [Hewson66] Hewson, A. C., Phys. Rev. **144** (1966) 420. doi:10.1103/PhysRev.144.420.
- [Hewson93] Hewson, A. C., The Kondo Problem to Heavy Fermions (Cambridge University Press, Cambridge, 1993).
- [Hirsch83] Hirsch, J. E., Phys. Rev. B **28** (1983) 4059. doi:10.1103/PhysRevB.28.4059.
- [Hirsch86] Hirsch, J. E. and R. M. Fye, Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 2521. doi:10.1103/PhysRevLett.56.2521.
- [Hohenberg64] Hohenberg, P. and W. Kohn, Phys. Rev. **136** (1964) B864. doi:10.1103/PhysRev.136.B864.
- [Hubbard63] Hubbard, J., Proc. Roy. Soc. A **276** (1963) 238.
- [Hubbard64a] Hubbard, J., Proc. Roy. Soc. A **277** (1964) 237.
- [Hubbard64b] Hubbard, J., Proc. Roy. Soc. A **281** (1964) 401.
- [Inaba05a] Inaba, K., A. Koga, S.-I. Suga, and N. Kawakami, Phys. Rev. B (Condensed Matter and Materials Physics) **72** 085112. doi:10.1103/PhysRevB.72.085112.
- [Inaba05b] Inaba, K., A. Koga, S.-I. Suga, and N. Kawakami, J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 2393. doi:10.1143/JPSJ.74.2393.
- [Inaba06] Inaba, K. and A. Koga, Phys. Rev. B (Condensed Matter and Materials Physics) **73** 155106. doi:10.1103/PhysRevB.73.155106.
- [Inaba07] Inaba, K. and A. Koga, J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 094712. doi:10.1143/JPSJ.76.094712.
- [Ishida98] Ishida, K., H. Mukuda, Y. Kitaoka, K. Asayama, Z. Q. Mao, Y. Mori, and Y. Maeno, Nature **396** (1998) 658. doi:10.1038/25315.

-
- [Izumida00] Izumida, W. and O. Sakai, Phys. Rev. B **62** (2000) 10260. doi:10.1103/PhysRevB.62.10260.
- [Jabben09] Jabben, T., 2009. Private communication. TU Darmstadt.
- [Jakobi05] Jakobi, E., 2005. Master's thesis, Technical University of Darmstadt.
- [Jakobi09] Jakobi, E., N. Blümer, and P. G. J. van Dongen, Phys. Rev. B **80** (2009) 115109. doi:10.1103/PhysRevB.80.115109.
- [Jarrell92] Jarrell, M., Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 168. doi:10.1103/PhysRevLett.69.168.
- [Jarrell96] Jarrell, M. and J. E. Gubernatis, Physics Reports **269** (1996) 133. doi:10.1016/0370-1573(95)00074-7.
- [Jeong01] Jeong, H., A. M. Chang, and M. R. Melloch, Science **293** (2001) 2221. doi:10.1126/science.1063182.
- [Jiang08] Jiang, Z.-T. and Q.-Z. Han, Phys. Rev. B **78** (2008) 035307. doi:10.1103/PhysRevB.78.035307.
- [Jones87] Jones, B. A. and C. M. Varma, Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 843. doi:10.1103/PhysRevLett.58.843.
- [Jones89] Jones, R. O. and O. Gunnarsson, Rev. Mod. Phys. **61** (1989) 689. doi:10.1103/RevModPhys.61.689.
- [Joo01] Joo, J. and V. Oudovenko, Phys. Rev. B **64** (2001) 193102. doi:10.1103/PhysRevB.64.193102.
- [Jördens08] Jördens, R., N. Strohmaier, K. Günter, H. Moritz, and T. Esslinger Nature **455** (2008) 204. doi:10.1038/nature07244.
- [Kajueter96a] Kajueter, H., 1996. Ph.D. thesis, Rutgers University, New Jersey.
- [Kajueter96b] Kajueter, H. and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **77** (1996) 131. doi:10.1103/PhysRevLett.77.131.
- [Kanamori63] Kanamori, J., Prog. Theor. Phys. **30** (1963) 275. doi:10.1143/PTP.30.275.
- [Kandpal06] Kandpal, H. C., G. H. Fecher, C. Felser, and G. Schönhense, Phys. Rev. B **73** (2006) 094422. doi:10.1103/PhysRevB.73.094422.
- [Katsnelson00] Katsnelson, M. I. and A. I. Lichtenstein, Phys. Rev. B **61** (2000) 8906. doi:10.1103/PhysRevB.61.8906.
- [Katsnelson08] Katsnelson, M. I., V. Y. Irkhin, L. Chioncel, A. I. Lichtenstein, and R. A. de Groot, Rev. Mod. Phys. **80** (2008) 315. doi:10.1103/RevModPhys.80.315.

- [Keiter70] Keiter, H. and J. C. Kimball, Phys. Rev. Lett. **25** (1970) 672. doi:10.1103/PhysRevLett.25.672.
- [Keiter90] Keiter, H. and Q. Qin, Physica B: Condensed Matter **163** (1990) 594. doi:10.1016/0921-4526(90)90279-4.
- [Knecht02] Knecht, C., 2002. Master's thesis, University of Mainz.
- [Knecht05] Knecht, C., N. Blümer, and P. G. J. van Dongen, Phys. Rev. B **72** (2005) 081103. doi:10.1103/PhysRevB.72.081103.
- [Knecht06] Knecht, C., 2006. PhD thesis, University of Mainz.
- [Koga04] Koga, A., N. Kawakami, T. M. Rice, and M. Sgrist, Phys. Rev. Letters **92** 216402. doi:10.1103/PhysRevLett.92.216402.
- [Koga05] Koga, A., N. Kawakami, T. Rice, and M. Sgrist, Physica B: Condensed Matter **359-361** (2005) 1366. doi:10.1016/j.physb.2005.01.414.
- [Kohn65] Kohn, W. and L. J. Sham, Phys. Rev. **140** (1965) A1133. doi:10.1103/PhysRev.140.A1133.
- [Kotliar01] Kotliar, G., S. Y. Savrasov, G. Pálsson, and G. Biroli, Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 186401. doi:10.1103/PhysRevLett.87.186401.
- [Kotliar06] Kotliar, G., S. Y. Savrasov, K. Haule, V. S. Oudovenko, O. Parcollet, and C. A. Marianetti, Rev. Mod. Phys. **78** (2006) 865. doi:10.1103/RevModPhys.78.865.
- [Kübler83] Kübler, J., A. R. William, and C. B. Sommers, Phys. Rev. B **28** (1983) 1745. doi:10.1103/PhysRevB.28.1745.
- [Kübler84] Kübler, J., Physica B & C **127B** (1984) 257.
- [Kubo57] Kubo, R., J. Phys. Soc. Jpn. **12** (1957) 570. doi:10.1143/JPSJ.12.570.
- [Kubo62] Kubo, R., J. Phys. Soc. Jpn. **17** (1962) 1100. doi:10.1143/JPSJ.17.1100.
- [Kuramoto85] Kuramoto, Y. and C. Horie, J. Magn. Magn. Mater. **47-48** (1985) 343. doi:10.1016/0304-8853(85)90434-2.
- [Lee02] Lee, J. S., Y. S. Lee, T. W. Noh, S.-J. Oh, J. Yu, S. Nakatsuji, H. Fukazawa, and Y. Maeno, Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 257402. doi:10.1103/PhysRevLett.89.257402.
- [Leo04] Leo, L. D. and M. Fabrizio, Phys. Rev. B **69** (2004) 245114. doi:10.1103/PhysRevB.69.245114.
- [Lichtenstein00] Lichtenstein, A. I. and M. I. Katsnelson, Phys. Rev. B **62** (2000) R9283. doi:10.1103/PhysRevB.62.R9283.

-
- [Lichtenstein01] Lichtenstein, A. I., M. I. Katsnelson, and G. Kotliar, Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 067205. doi:10.1103/PhysRevLett.87.067205.
- [Lieb68] Lieb, E. H. and F. Y. Wu, Phys. Rev. Lett. **20** (1968) 1445. doi:10.1103/PhysRevLett.20.1445.
- [Liebsch03] Liebsch, A., Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 226401. doi:10.1103/PhysRevLett.91.226401.
- [Liebsch05] Liebsch, A., Phys. Rev. Letters **95** 116402. doi:10.1103/PhysRevLett.95.116402.
- [Loram93] Loram, J. W., K. A. Mirza, J. R. Cooper, and W. Y. Liang, Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 1740. doi:10.1103/PhysRevLett.71.1740.
- [MacDonald98] MacDonald, A. H., T. Jungwirth, and M. Kasner, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 705. doi:10.1103/PhysRevLett.81.705.
- [Maeno02] Maeno, Y., H. Hashimoto, K. Yoshida, S. Nishizaki, T. Fujita, J. G. Bednorz, and F. Lichtenberg, Nature **372** (2002) 532. doi:10.1038/372532a0.
- [Mahan00] Mahan, G. D., Many-Particle Physics (Plenum Publishers, 2000).
- [Mahlert03] Mahlert, S. J.-S., 2003. Ph.D. thesis, Marburg an der Lahn.
- [Maier05] Maier, T., M. Jarrell, T. Pruschke, and M. H. Hettler, Rev. Mod. Phys. **77** (2005) 1027. doi:10.1103/RevModPhys.77.1027.
- [Martín-Rodero82] Martín-Rodero, A., F. Flores, M. Baldo, and R. Pucci, Solid State Communications **44** (1982) 911. doi:10.1016/0038-1098(82)90303-9.
- [Martín-Rodero86] Martín-Rodero, A., E. Louis, F. Flores, and C. Tejedor, Phys. Rev. B **33** (1986) 1814. doi:10.1103/PhysRevB.33.1814.
- [Matsubara55] Matsubara, T., Progress of Theoretical Physics **14** (1955) 351. doi:10.1143/PTP.14.351.
- [Mattuck76] Mattuck, R. D., A Guide to Feynman Diagrams in the Many-Body Problem (Dover, 1976).
- [Mavropoulos07] Mavropoulos, P. and I. Galanakis, J. Phys.: Condens. Matter **19** (2007) 315221. doi:10.1088/0953-8984/19/31/315221.
- [Mermin65] Mermin, N. D., Phys. Rev. **137** (1965) A1441. doi:10.1103/PhysRev.137.A1441.
- [Mermin66] Mermin, N. D. and H. Wagner, Phys. Rev. Lett. **17** (1966) 1133. doi:10.1103/PhysRevLett.17.1133.
- [Metropolis53] Metropolis, N., A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, and A. H. Teller, J. Chem. Phys. **21** (1953) 1087. doi:10.1063/1.1699114.

- [Metzner89] Metzner, W. and D. Vollhardt, Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 324. doi:10.1103/PhysRevLett.62.324.
- [Metzner91] Metzner, W., Phys. Rev. B **43** (1991) 8549. doi:10.1103/PhysRevB.43.8549.
- [Mitchell09] Mitchell, A. K., T. F. Jarrold, and D. E. Logan, Phys. Rev. B **79** (2009) 085124. doi:10.1103/PhysRevB.79.085124.
- [Müller-Hartmann89] Müller-Hartmann, E., Zeitschrift für Physik B **76** (1989) 211. doi:10.1007/BF01312686.
- [Nakatsuji00a] Nakatsuji, S. and Y. Maeno, Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 2666. doi:10.1103/PhysRevLett.84.2666.
- [Nakatsuji00b] Nakatsuji, S. and Y. Maeno, Phys. Rev. B **62** (2000) 6458. doi:10.1103/PhysRevB.62.6458.
- [Negele98] Negele, J. W. and H. Orland, Quantum Many-Particle Systems (Perseus Publishing, 1998).
- [Nekrasov06] Nekrasov, I. A., K. Held, G. Keller, D. E. Kondakov, T. Pruschke, M. Kollar, O. K. Andersen, V. I. Anisimov, and D. Vollhardt, Phys. Rev. B **73** (2006) 155112. doi:10.1103/PhysRevB.73.155112.
- [Ng00] Ng, K. K. and M. Sigrist, Europhys. Lett. **49** (2000) 473. doi:10.1209/epl/i2000-00173-x.
- [Nishimoto06] Nishimoto, S., T. Pruschke, and R. Noack, J. Phys.: Condens. Matter **18** (2006) 981. doi:10.1088/0953-8984/18/3/015.
- [Nyquist28] Nyquist, H., Trans. AIEE **47** (1928) 617.
- [Oles84] Oles, A. M. and G. Stollhoff, Phys. Rev. B **29** (1984) 314. doi:10.1103/PhysRevB.29.314.
- [Perdew92] Perdew, J. P., J. A. Chevary, S. H. Vosko, K. A. Jackson, M. R. Pederson, D. J. Singh, and C. Fiolhais, Phys. Rev. B **46** (1992) 6671. doi:10.1103/PhysRevB.46.6671.
- [Potthoff97] Potthoff, M., T. Wegner, and W. Nolting, Phys. Rev. B **55** (1997) 16132. doi:10.1103/PhysRevB.55.16132.
- [Potthoff01] Potthoff, M., Phys. Rev. B **64** (2001) 165114. doi:10.1103/PhysRevB.64.165114.
- [Pruschke88] Pruschke, T. and N. Grewe, Z. Phys. B **74** (1988) 439. doi:10.1007/BF01311391.
- [Pruschke01] Pruschke, T., W. Metzner, and D. Vollhardt, J. Phys.: Condens. Matter **13** (2001) 9455. doi:10.1088/0953-8984/13/42/306.

- [Rice70] Rice, T. M. and D. B. McWhan, IBM Journal of Research and Development **14** (1970) 251.
- [Rombouts99] Rombouts, S. M. A., K. Heyde, and N. Jachowicz, Phys. Rev. Lett. **82** (1999) 4155. doi:10.1103/PhysRevLett.82.4155.
- [Rozenberg97] Rozenberg, M. J., Phys. Rev. B **55** (1997) R4855. doi:10.1103/PhysRevB.55.R4855.
- [Rubtsov05] Rubtsov, A. N., V. V. Savkin, and A. I. Lichtenstein, Phys. Rev. B **72** (2005) 035122. doi:10.1103/PhysRevB.72.035122.
- [Ruderman54] Ruderman, M. A. and C. Kittel, Phys. Rev. **96** (1954) 99. doi:10.1103/PhysRev.96.99.
- [Rüegg05] Rüegg, A., M. Indergand, S. Pilgram, and M. Sigrist, Eur. Phys. J. B **48** (2005) 55. doi:10.1140/epjb/e2005-00382-1.
- [Sandvik91] Sandvik, A. W. and J. Kurkijärvi, Phys. Rev. B **43** (1991) 5950. doi:10.1103/PhysRevB.43.5950.
- [Sandvik95] Sandvik, A. W. and D. J. Scalapino, Phys. Rev. B **51** (1995) 9403. doi:10.1103/PhysRevB.51.9403.
- [Sandvik97] Sandvik, A. W., Phys. Rev. B **56** (1997) 11678. doi:10.1103/PhysRevB.56.11678.
- [Schiró08] Schiró, M., M. Capone, M. Fabrizio, and C. Castellani, Phys. Rev. B (Condensed Matter and Materials Physics) **77** 104522. doi:10.1103/PhysRevB.77.104522.
- [Schmitt08] Schmitt, S., Excitations, Two-Particle Correlations and Ordering Phenomena in Strongly Correlated Electron Systems from a Local Point of View (TU Darmstadt, 2008).
- [Schmitt09] Schmitt, S., 2009. Private communication. TU Dortmund.
- [Schneider06] Schneider, H., G. Jakob, M. Kallmayer, H. J. Elmers, M. Cinchetti, B. Balke, S. Wurmehl, C. Felser, M. Aeschlimann, and H. Adrian, Phys. Rev. B **74** (2006) 174426. doi:10.1103/PhysRevB.74.174426.
- [Serene91] Serene, J. W. and D. W. Hess, Phys. Rev. B **44** (1991) 3391. doi:10.1103/PhysRevB.44.3391.
- [Shannon49] Shannon, C. E., Proc. Institute of Radio Engineers **37** (1949) 10.
- [Sigrist04] Sigrist, M. and M. Troyer, Eur. Phys. J. B **39** (2004) 207. doi:10.1140/epjb/e2004-00183-0.
- [Skomski02] Skomski, R. and P. A. Dowben, Europhys. Lett. **58** (2002) 544. doi:10.1209/epl/i2002-00430-0.

- [Snoek08] Snoek, M., I. Titvinidze, C. Töke, K. Byczuk, and W. Hofstetter, *New Journal of Physics* **10** (2008) 093008. doi:10.1088/1367-2630/10/9/093008.
- [Steiner92] Steiner, M. M., R. C. Albers, and L. J. Sham, *Phys. Rev. B* **45** (1992) 13272. doi:10.1103/PhysRevB.45.13272.
- [Steiner94] Steiner, M. M., R. C. Albers, and L. J. Sham, *Phys. Rev. Lett.* **72** (1994) 2923. doi:10.1103/PhysRevLett.72.2923.
- [Sugano70] Sugano, S., Y. Tanabe, and H. Kamimura, *Multiplets of Transition-Metals Ions in Crystals*, volume 33 of *Pure and Applied Physics* (Academic Press, New York, 1970).
- [Suzuki76] Suzuki, M., *Progress of Theoretical Physics* **56** (1976) 1454. doi:10.1143/PTP.56.1454.
- [Tasaki98] Tasaki, H., *Journal of Physics: Condensed Matter* **10** (1998) 4353. doi:10.1088/0953-8984/10/20/004.
- [Trotter59] Trotter, H. F., *Proc. Am. Math. Soc.* **10** (1959) 545.
- [Trotzky08] Trotzky, S., P. Cheinet, S. Fölling, M. Feld, U. Schnorrberger, A. M. Rey, A. Polkovnikov, E. A. Demler, M. D. Lukin, and I. Bloch, *Science* **319** (2008) 295. doi:10.1126/science.1150841.
- [Troyer05] Troyer, M. and U.-J. Wiese, *Phys. Rev. Lett.* **94** (2005) 170201. doi:10.1103/PhysRevLett.94.170201.
- [Ulmke95] Ulmke, M., V. Janiš, and D. Vollhardt, *Phys. Rev. B* **51** (1995) 10411. doi:10.1103/PhysRevB.51.10411.
- [van Dongen94a] van Dongen, P. G. J., *Phys. Rev. B* **49** (1994) 7904. doi:10.1103/PhysRevB.49.7904.
- [van Dongen94b] van Dongen, P. G. J., *Phys. Rev. B* **50** (1994) 14016. doi:10.1103/PhysRevB.50.14016.
- [van Dongen06] van Dongen, P. G. J., C. Knecht, and N. Blümer, *Phys. Stat. Sol. B* **244** (2006) 2331. doi:10.1002/pssb.200674632.
- [Vladimir90] Vladimir, M. I. and V. A. Moskalenko, *Theor. Math. Phys.* **82** (1990) 301. doi:10.1007/BF01029224.
- [Voruganti92] Voruganti, P., A. Golubentsev, and S. John, *Phys. Rev. B* **45** (1992) 13945. doi:10.1103/PhysRevB.45.13945.
- [Vosko80] Vosko, S. H. and L. Wilk, *Phys. Rev. B* **22** (1980) 3812. doi:10.1103/PhysRevB.22.3812.
- [Wang07] Wang, W., *Phys. Rev. B* **76** (2007) 115114. doi:10.1103/PhysRevB.76.115114.

- [Werner05] Werner, F., O. Parcollet, A. Georges, and S. R. Hassan, Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 056401. doi:10.1103/PhysRevLett.95.056401.
- [Werner06] Werner, P., A. Comanac, L. de' Medici, M. Troyer, and A. J. Millis, Phys. Rev. Lett. **97** (2006) 076405. doi:10.1103/PhysRevLett.97.076405.
- [Werner07] Werner, P. and A. J. Millis, Phys. Rev. Letters **99** 126405. doi:10.1103/PhysRevLett.99.126405.
- [Wijs01] de Wijs, G. A. and R. A. de Groot, Phys. Rev. B **64** (2001) 020402. doi:10.1103/PhysRevB.64.020402.
- [Wilkinson65] Wilkinson, J. H., The Algebraic Eigenvalue Problem (Oxford University Press, 1965).
- [Wilson31] Wilson, A. H., Proc. R. Soc. Lond. A **133** (1931) 458. doi:10.1098/rspa.1931.0162.
- [Wilson75] Wilson, K. G., Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 773. doi:10.1103/RevModPhys.47.773.
- [Wolf01] Wolf, S. A., D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, Science **294** (2001) 1488. doi:10.1126/science.1065389.
- [Wurmehl05] Wurmehl, S., G. H. Fecher, H. C. Kandpal, V. Ksenofontov, C. Felser, H.-J. Lin, and J. Morais, Phys. Rev. B **72** (2005) 184434. doi:10.1103/PhysRevB.72.184434.
- [Wüstenberg07] Wüstenberg, J.-P., M. Cinchetti, M. Sánchez-Albaneda, M. Bauer, and M. Aeschlimann, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **316** (2007) 411. ISSN 0304-8853. doi:10.1016/j.jmmm.2007.02.164. Proceedings of the Joint European Magnetic Symposia.
- [Xi Dai06] Xi Dai, Z. F., Gabriel Kotliar, cond-mat/0611075 .
- [Yosida75] Yosida, K. and K. Yamada, Progress of Theoretical Physics **53** (1975) 1286. doi:10.1143/PTP.53.1286.
- [Žitko06] Žitko, R. and J. Bonča, Phys. Rev. B **74** (2006) 045312. doi:10.1103/PhysRevB.74.045312.
- [Žitko08] Žitko, R. and J. Bonča, Phys. Rev. B **77** (2008) 245112. doi:10.1103/PhysRevB.77.245112.
- [Žitko09] Žitko, R., arXiv **0908.0613v1**.
- [Zöflf00] Zöflf, M. B., T. Pruschke, J. Keller, A. I. Poteryaev, I. A. Nekrasov, and V. I. Anisimov, Phys. Rev. B **61** (2000) 12810. doi:10.1103/PhysRevB.61.12810.

- [Žutić04] Žutić, I., J. Fabian, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **76** (2004) 323. doi:10.1103/RevModPhys.76.323.
- [Zwierlein06] Zwierlein, M. W., A. Schirotzek, C. H. Schunck, and W. Ketterle, Science **311** (2006) 492. doi:10.1126/science.1122318.